

**НАЦИОНАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ЦЕНТР
«КУРЧАТОВСКИЙ ИНСТИТУТ»**



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

Диссертация на соискание ученой степени кандидата технических наук

Научный руководитель:
д.т.н. Краюшкин А.В.

Москва – 2023 г.

ОГЛАВЛЕНИЕ

| | |
|--|-----|
| ВВЕДЕНИЕ..... | 4 |
| ГЛАВА 1. ОСОБЕННОСТИ ВЫХОДА ПРОДУКТОВ ДЕЛЕНИЯ ИЗ ТОПЛИВА | 11 |
| 1.1 Специфика выхода радионуклидов из топлива..... | 11 |
| 1.2 Историческая справка..... | 16 |
| 1.3 Состояние вопроса исследования, основные проблемы и подходы к описанию..... | 20 |
| ГЛАВА 2. РАЗРАБОТКА МОДЕЛИ ВЫХОДА РН ИЗ ТОПЛИВА. ПРОГРАММНАЯ РЕАЛИЗАЦИЯ .. | 24 |
| 2.1 Модификация программы <i>CHAIN</i> | 24 |
| 2.2 Описание расчетной модели | 26 |
| 2.2.1 Основные уравнения..... | 26 |
| 2.2.2 Теплофизический блок программы | 32 |
| 2.2.3 Блок-схема программы | 37 |
| 2.2.4 Сходимость и устойчивость численного решения..... | 39 |
| 2.2.5 Граничные условия | 42 |
| 2.2.6 Аналитическое решение уравнения диффузии в <i>r</i> -геометрии..... | 49 |
| 2.2.7 Влияние центрального отверстия в топливной таблетке на выход РН..... | 52 |
| 2.3 Выбор коэффициента диффузии для задачи аварийного разогрева топлива | 55 |
| ГЛАВА 3. ВЕРИФИКАЦИЯ ПОЛУЧЕННОЙ РАСЧЕТНОЙ МОДЕЛИ | 63 |
| 3.1 Выход летучих продуктов деления из топлива | 66 |
| 3.1.1 Аварийный нагрев топлива | 66 |
| 3.1.1.1 Расчет выходов ГПД для упрощенных тестов <i>FUMEX</i> [73] | 69 |
| 3.1.2 Нормальная работа реактора..... | 71 |
| 3.1.2.1 Расчеты по экспериментам на реакторе СМ-2 | 73 |
| 3.1.2.2 Выход криптона из топлива РБМК | 74 |
| 3.1.2.3 Выход РН из топлива герметичных твэлов ВВЭР | 76 |
| 3.2 Выход продуктов деления пониженной летучести из топлива..... | 79 |
| 3.2.1 Аварийный нагрев топлива | 79 |
| 3.2.1.1 Эксперименты серии VI..... | 80 |
| 3.2.1.2 Эксперименты серии VR | 85 |
| 3.2.1.3 Эксперименты ФЭИ..... | 89 |
| 3.2.1.4 Параметры, влияющие на выход радионуклидов | 91 |
| ГЛАВА 4. ПРИМЕНЕНИЕ МОДЕЛИ ДЛЯ АНАЛИЗА ВОЗМОЖНЫХ РАДИАЦИОННЫХ ПОСЛЕДСТВИЙ АВАРИЙ..... | 97 |
| 4.1 Выход продуктов деления из топлива РБМК при нормальной эксплуатации | 97 |
| 4.1.1 Взаимосвязь предела по активности йода в теплоносителе РБМК и числа дефектных твэлов.. | 98 |
| 4.1.2 Влияние неравномерности энерговыделения на выход РН..... | 101 |
| 4.2 Выход радиоактивных веществ при реактивных авариях | 108 |
| 4.2.1 Оценка выхода при всплеске мощности | 109 |
| 4.2.2 Оценка всплеска температуры при всплеске энерговыделения | 110 |

| | |
|---|-----|
| 4.3 Оценка массы топлива в кладке РБМК в результате аварии | 113 |
| 4.4 Модуль расчета выхода РВ в аварии с полным обесточиванием энергоблока | 120 |
| ЗАКЛЮЧЕНИЕ | 135 |
| СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ..... | 139 |
| СПИСОК ИЛЛЮСТРАЦИЙ..... | 149 |
| СПИСОК ТАБЛИЦ | 150 |

ВВЕДЕНИЕ

Анализ радиационных последствий аварий является важной частью анализа безопасности АЭС. В реакторе основная часть ПД, накапливающихся в результате реакции деления, содержится внутри тепловыделяющих элементов. Обширная утечка радиации может произойти только при повреждении или разрушении твэлов. В результате воздействия высокой температуры оболочки твэл (являющиеся одним из защитных барьеров на пути выхода накопленных ПД в окружающую среду) могут потерять герметичность. При этом радионуклиды, накопленные под оболочкой, выходят в контур циркуляции теплоносителя и, частично вследствие неплотностей в контуре, в помещения АЭС и далее в окружающую среду.

Специфика проектных и запроектных (в особенности тяжелых, т.е. с повреждением твэлов выше максимального проектного предела [1]) аварий на АЭС заключается в потенциальном выбросе радиоактивных веществ в окружающую среду и вытекающих из этого радиологических и экологических последствиях. Эти радиоактивные вещества включают продукты деления (ПД), продукты коррозии (ПК) и активации (ПА), тяжелые ядра, такие как уран и трансурановые элементы. Большинство запроектных либо тяжелых аварий могут сопровождаться сильным разогревом ядерного топлива, поэтому возникает вопрос о количественной оценке выхода продуктов деления из топлива при повышении его температуры для определения в дальнейшем состава и активности выброса и, как следствие, оценки радиационного воздействия на население и персонал. Можно заметить, что при предшествующей аварии нормальной работе под оболочкой твэл находится ~1% летучих РН. При повреждении оболочек именно это количество выходит из топлива и определяет дозовую нагрузку на персонал и население. Однако при последующем нагреве топлива из диоксида может выйти до 100% РН.

После аварии на американском реакторе ТМІ эксперты стали задумываться об изучении, моделировании, прогнозировании запроектных, тяжелых аварий. События на ЧАЭС, а после на АЭС Фукусима-1, привели к пониманию, что

данная тема будет актуальна всегда. Во время аварии на Фукусиме персоналу на энергоблоках пришлось перечитывать аварийные инструкции, однако в них не оказалось никаких указаний, относящихся к такой запроектной аварии как полное длительное обесточивание. Более того, документация была составлена исходя из того, что будут доступны все критически важные показания приборов [2]. Независимая комиссия, рассматривавшая аварию на Фукусиме, обратила внимание на «миф о безопасности» [2] атомной отрасли, приведший к тому, что запроектные, тяжёлые аварии на станциях не рассматривались как вероятные, и никакая подготовка к ним не велась.

Начиная с 2011 года на Российских АЭС с РУ типа РБМК вводились дополнительные меры по предотвращению и управлению запроектными авариями. В 2019 году были утверждены новые руководства по управлению запроектными авариями. Также необходимо добавить, что обновление руководств идет до сих пор.

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 сдерживанию аварии 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 РН, но и РН с пониженной степенью летучести. Вклад в радиационные последствия при авариях РН с пониженной степенью летучести редко рассматривается вследствие недостаточной информации о скорости и степени выхода.

Вследствие этого тема исследования представляется актуальной.

Цель: разработать математическую модель и программное средство для оценки выхода продуктов деления из топлива при авариях на реакторе РБМК для анализа радиационной безопасности.

Задачи исследования:

- 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

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

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 технического обоснования Руководств по управлению запроектными авариями на Ленинградской, Курской и Смоленской атомных станциях, а также в материалы обоснований безопасности АЭС с РУ РБМК.

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

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

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.

Достоверность результатов работы

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»).

Апробация работы и публикации

Основные положения работы представлены и обсуждены на следующих научных конференциях:

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.

Основные положения работы описаны в статьях:

1. 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.
2. 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.
3. Smirnova A.K., Krayushkin A. V. Modernization of the CHAIN code for fission gas release calculation, Journal of Physics: Conference Series 1689, 2020.

4. 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, 2023, вып. 5 (в редакции).
5. 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 (в редакции).

По результатам работы получено 3 свидетельства о РИД:

1. 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.
2. 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.
3. 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.

Структура и объем работы

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

ГЛАВА 1. ОСОБЕННОСТИ ВЫХОДА ПРОДУКТОВ ДЕЛЕНИЯ ИЗ ТОПЛИВА

1.1 Специфика выхода радионуклидов из топлива

Ядерное топливо РБМК состоит из циркониевой оболочки и таблеток, заполненных спеченным поликристаллическим топливом – диоксидом урана (UO_2). Около 15% накопленных ПД это благородные газы ксенон и криптон, которые имеют очень низкую растворимость в диоксиде урана. Топливная таблетка является первым барьером для высвобождения продуктов деления. Выход газообразных продуктов деления из топливной таблетки в зазор ухудшает теплопроводность зазора, что приводит к повышению температуры топлива в центре, дальнейшее газовыделение может приводить к повышению давления под оболочкой твэла. Циркониевая оболочка предназначена, в том числе, для удерживания вышедших из топлива ПД.

В реакторе основная часть ПД, накапливающихся в результате реакции деления, содержится внутри тепловыделяющих элементов. Обширная утечка радиации может произойти только при повреждении или разрушении тепловыделяющих элементов (твэлов), в которых содержатся накопленные ПД. В результате воздействия высокой температуры оболочки твэл (являющиеся вторым защитным барьером на пути выхода накопленных ПД в окружающую среду) могут потерять герметичность. При этом радионуклиды, накопленные под оболочкой, выходят в контур циркуляции теплоносителя и, частично, вследствие неплотностей в контуре, в помещения АЭС и далее в окружающую среду.

Выход продуктов деления из топлива на начальном этапе определяется микроструктурой топлива, его температурой и глубиной выгорания. Инертные радиоактивные газы, главным образом Xe и Kr , относительно легко выходят из топлива вместе с летучими элементами I и Cs . Слаболетучие элементы также могут выходить из топливной матрицы при разогреве до высоких температур. По степени летучести можно выделить несколько основных групп РН [3]:

– газообразные (ксенон и криптон) и летучие ПД: йод, цезий, бром, рубидий, теллур, сурьма и серебро (однако серебро не всегда включается в эту

группу). Почти все эти продукты полностью выходят из топлива при температуре 2300°C. Скорость выхода этих элементов увеличивается в окислительных условиях;

– среднелетучие ПД: молибден, родий, барий, палладий и технеций. Данные РН характеризуются высоким уровнем выхода (иногда эквивалентны уровням летучих ПД), но при этом РН очень чувствительны к окислительно-восстановительным условиям (парциальному давлению кислорода) окружающей среды, а также могут удерживаться конструкционными материалами реактора;

– низколетучие ПД: стронций, иттрий, ниобий, рутений, лантан, церий и европий. Они характеризуются низким процентом выхода. Тем не менее, значения выхода могут достигать гораздо более высоких уровней для топлива с очень высоким уровнем выгорания (более 70 МВт·сут/кг) или при определенных условиях (в том числе окислительно-восстановительных);

– нелетучие ПД: цирконий, неодим и празеодим. На сегодняшний день имеется мало экспериментальных данных по данным ПД. Выход из топлива даже при высоких температурах ниже 1%.

В условиях нормальной эксплуатации ПД при облучении накапливаются в топливной матрице в различном химическом состоянии. Можно выделить следующие категории [3]:

– растворенные оксиды, которые представляют почти половину всех ПД (*Sr, Y, Zr, La, Ce* и *Nd*);

– когда предел растворимости будет достигнут, некоторые из ПД будут осаждаться в оксиды. В основном это *Ba* и *Nb*;

– поскольку оксидное топливо окисляется, изменяется его кислородный потенциал (парциальное давление кислорода), часть ПД образуют металлические осадки: это *Tc, Ru, Rh, Pd* и *Mo*;

– на сегодняшний день химическое состояние летучих ПД (*Br, Rb, Te, I, Cs*) полностью не объяснено. Выше определенной температуры данные ПД могут находиться в газообразной форме (центр топливной таблетки) и радиально мигрировать для конденсации в более холодных областях, например при контакте

с оболочкой. Возможно образование промежуточных соединений, таких как CsI , Cs_2MoO_4 и Cs_2Te или уранаты цезия;

– газы деления (ксенон и криптон) существуют в виде атомов, растворенных в матрице UO_2 , или в форме пузырьков газа, расположенных в меж- и внутризерновом пространстве.

Химическое состояние ПД из первых трех категорий нестабильно: некоторые из них могут переходить из одной категории в другую в зависимости от рабочей температуры, кислородного потенциала в топливе (который увеличивается с выгоранием, поскольку процесс деления имеет окислительную природу) и выгорания (что увеличивает концентрацию ПД в матрице). Это особенно верно для молибдена, который в основном осаждается в металлической форме, но который также может быть обнаружен в окисленном состоянии (особенно на периферии таблеток или в МОКС-топливе), или для ниобия и стронция, оксиды которого могут быть частично растворены и выпадать в осадок [3].

Общепринято [3], 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, переносятся с поверхности зерна за пределы топливной матрицы (образование пузырьков на поверхности, перенос газа по взаимосвязанным туннелям к свободным поверхностям). Этот механизм также включает ряд физико-химических аспектов: потенциальное образование определенных соединений (CsI , молибдаты, цирконаты и уранаты цезия, бария, стронция и т.д.), окисление или восстановление осадков паром и/или водородом. Эти химические реакции оказывают значительное влияние на летучесть некоторых элементов. Основные высокотемпературные термодинамические параметры, определяющие образование и разрушение этих видов, в настоящее время плохо изучены, что является проблемой, когда речь идет о механистическом моделировании этих процессов.

Помимо выходов за пределы топливной матрицы возможны потенциальные химические взаимодействия с оболочкой и/или структурными элементами

активной зоны, что также может снижать летучесть некоторых ПД. После выхода из активной зоны значительная часть ПД может конденсироваться в более холодных областях активной зоны, даже не достигая первичной системы охлаждения или защитной оболочки. Это особенно актуально для слаболетучих ПД.

С качественной точки зрения основными физическими параметрами, влияющими на выход ПД, являются [3]:

- температура (коэффициент диффузии напрямую зависит от значения температуры);

- окислительно-восстановительные процессы в топливе (процесс выхода летучих ПД ускоряется в условиях окисления, кроме того, выход определенных ПД очень чувствителен к кислородному потенциалу, к тому же для запроектных аварий характерна генерация существенных объемов водорода за счет пароциркониевой реакции). Например, выход молибдена возрастает при контакте с паром, тогда как для рутения увеличивается при контакте топлива с воздухом. И наоборот, *Ba*, а также *Sr*, *Rh*, *La*, *Ce*, *Eu* и *Np* лучше выходят при восстановительных условиях;

- взаимодействие с оболочкой и/или структурными элементами (например, присутствие олова в оболочке задерживает выброс летучих элементов теллура и сурьмы, барий частично задерживается как в оболочке, вероятно, из-за образования цирконатов, так и в конструкционных сталях);

- выгорание (увеличивает выход как летучих, так и нелетучих ПД);

- вид топлива (выход из МОХ, как правило, выше, чем для UO_2 , это явление, вероятно, связано с его неоднородной микроструктурой, присутствием плутония и высоким локальным выгоранием).

Обычно предполагается, что летучие ПД, такие как йод и цезий, ведут себя как газы, их выход из топлива при повышении температуры носит чисто диффузионный характер. Однако в процессе выхода радионуклиды могут образовывать промежуточные химические соединения, взаимодействовать с окружающими реактор конструкциями. Особое внимание ученые уделяли

изучению выхода рутения из топлива, т.к. этот РН, классифицируемый как слаболетучий, демонстрировал высокую скорость выхода в окислительных условиях. Это объясняется образованием летучих оксидов рутения, таких как RuO_2 , RuO_3 или RuO_4 . Кроме того, было замечено, например в [4], что теллур и сурьма достаточно эффективно удерживаются определенными сплавами циркония, поэтому их выход начинается только после практически полного окисления оболочки, но при высоких температурах значения выхода этих РН сопоставимы с выходом йода и цезия.

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 [5]

Основным механизмом выхода является диффузия атомов газа через матрицу UO_2 , просачивание пузырьков на поверхность зерен и высвобождение газа на свободные поверхности через туннели на краях зерен. Однако давно было замечено, что существуют некоторые иные механизмы выхода продуктов деления, которые не вызваны диффузией (атермические механизмы). Одним из таких механизмов является выход за счет отдачи при делении и выбивания осколками (*recoil and knock-out*). Существует также явление «взрывного высвобождения», которое происходит во время быстрых переходных процессов мощности, что приводит к резкому росту выхода продуктов деления. В монокристаллах эффект, по-видимому, обусловлен *knock-out* механизмом [6]. Эффект более выражен в поликристаллическом топливе и вызван микротрещинами вдоль границ зерен, вследствие быстрого термического напряжения и давления газовых пузырьков. Ранние исследования процесса выхода радионуклидов в образцах монокристаллов UO_2 при температуре ниже 1000°C показали присутствие сильно короткоживущих продуктов деления, скорость выхода которых не зависит от температуры. На основании относительной неподвижности газов деления при этих температурах сделан вывод, что наблюдаемые выбросы должны соответствовать прямым отдам от

актов деления или выбивания. По этим механизмам могут выходить только продукты деления, образующиеся на внешней поверхности таблеток UO_2 . Эти процессы изучались, например, Уайзом [7] и Льюисом [8] для понимания их значения для выходов в топливе, работающем на малых мощностях. На основе математической обработки, разработанной Льюисом [8] и примененной к анализу нескольких экспериментов [9], показано, что отдача играет важную роль при моделировании газовой выделении из топлива при низких температурах (это будет играть роль при нормальной эксплуатации реактора).

Для температур ниже 1200°C выбросы в значительной степени связаны с выделением газа, находящегося на границе зерен и накопленного на этом уровне при стандартном облучении, за счет в том числе взаимосвязи межзеренных пузырьков ($1000^\circ\text{C} < T < 1200^\circ\text{C}$). При более высоких температурах происходит классическая диффузия газов [10].

1.2 Историческая справка

Задача выхода РН из диоксида урана интенсивно изучалась в прошедшие десятилетия параллельно с развитием атомной энергетики. Один из последних обзоров по данной задаче дан в статье [11]. UO_2 является специфическим материалом, состоящим из отдельных зерен с характерным размером порядка 10 мкм и имеющим исходную пористость порядка 5%, которая частично связана с открытым пространством.

Коротко остановимся на основной модели, которая дала толчок в развитии вопроса выхода. Большинство моделей, описывающих поведения ПД, основаны на работе Бута, который предложил модель эквивалентной сферы [12,13]. В модели Бута рассматривается объем, состоящий из набора однородных сфер (идеализированных зерен) с эквивалентным радиусом. Эта модель рассматривает одиночный процесс диффузии атомов в сферическом зерне, используя закон Фика, предполагая постоянный коэффициент диффузии. Считается, что газы деления диффундируют из зерна к границе зерна. Путем интегрирования количества газа, проходящего через поверхность границы зерен, и деления на

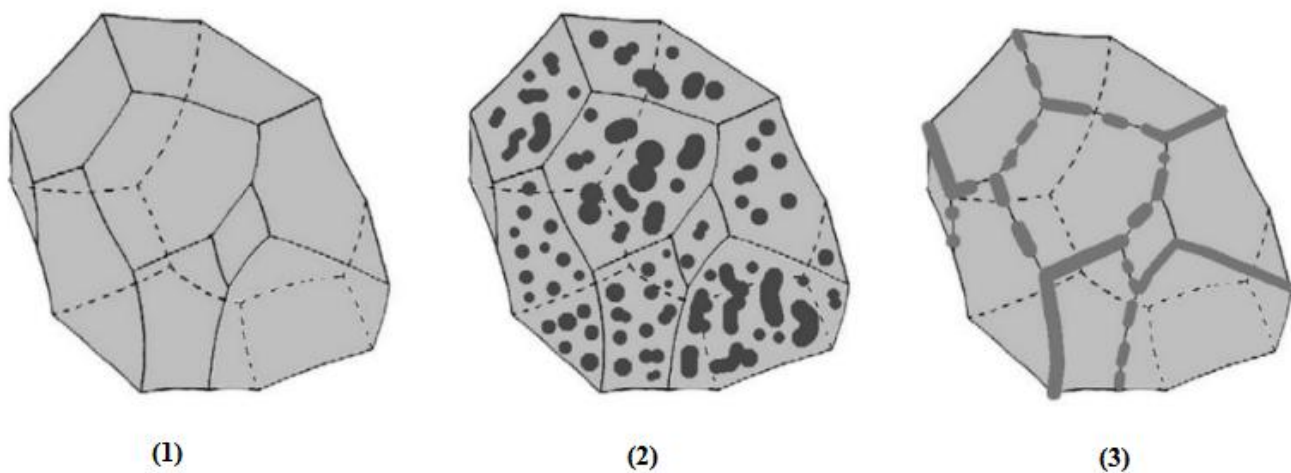
общее количество, первоначально находящееся в сфере, можно получить долю газа, диффундирующего из зерна в данный момент времени. Изначально модель Бута игнорирует выход газа деления из-за отдачи и выбивания вблизи поверхностей, граничащих с зёрнами.

Во время облучения ПД генерируются равномерно в эквивалентной сфере (она связана с размером зерна материала) и далее могут мигрировать на ее поверхность, где концентрация принимается за ноль. Наиболее важным параметром модели Бута является коэффициент диффузии [14,15]. Несмотря на многочисленные экспериментальные исследования, как пишут авторы в [16], выражения для этого коэффициента с порядком неопределенности меньше двух еще не было предложено. Эксперименты по определению коэффициента диффузии достаточно сложные, не всегда удается учесть все причины, влияющие на погрешность (топливные дефекты, отклонение от стехиометрии). Для некоторых элементов такие эксперименты еще не делались (например для нетипичного топлива). Однако наука развивалась, детальное моделирование позволило лучше понять вклад в выход ПД различных механизмов [17,18].

Модель Бута была позже расширена Спейтом путем дальнейшего учета наличия (неподвижных) внутризеренных пузырьков газа, в которые могут попадать рассеивающиеся атомы газа и повторно растворяться из-за облучения. Модель описывается одним уравнением диффузии и при отсутствии пузырьков математически эквивалентна модели Бута. Ван Уффелен и его коллеги еще больше расширили модель Спейта, рассмотрев подвижность внутризернистых пузырьков делящегося газа. Подвижность газа деления, захваченного в пузырьках, учитывается путем добавления дополнительного члена к эффективному коэффициенту диффузии.

Процесс выхода газообразных РН представляется достаточно сложным, включает в себя образование внутризерновых пузырьков, которые могут двигаться к поверхности зерен, а также пузырьков газа на границах зерен. Последние могут со временем сливаться и образовывать туннели для выхода РН из диоксида урана. Однако более детализированная модель, которая учитывает

образования туннелей внутри и межзерновых пузырей, приводит к увеличению времени расчета, а также существует мнение, что движение пузырьков будет играть роль только в диффузии газа в условиях нестационарного режима [19]. На рисунке 1.1 [18] показан процесс выхода газа на поверхность зерна. Атомы газообразных продуктов деления, образующиеся в топливных зернах, диффундируют к границам зерен также за счет многократного захвата, и в том числе за счет внутригранулярных газовых пузырьков. Вклад внутригранулярных пузырьков в набухание и выход газа обычно менее важен. Часть атомов газа, достигающих границ зерен, растворяется и попадает обратно внутрь зерен за счет облучения, но большая часть газа диффундирует в газовые пузырьки на поверхности зерен. Пузырьки на поверхности зерна микронного размера растут с притоком атомов газа и поглощением вакансий, вызванных избыточным давлением пузырька, что приводит к набуханию поверхности зерна. Рост пузырьков приводит к слиянию и взаимодействию пузырьков, и далее к образованию туннельной сети, через которую часть газа выбрасывается в свободный объем ТВЭЛ.



**Рисунок 1.1 – Иллюстрация процесса выхода газа на поверхность зерна:
1 – зерно диоксида урана (с обозначением границ), 2 – образование пузырьков газа на поверхности зерна, 3 – образование газовых туннелей, выделение газа на поверхности**

Атомы ПД в решетке либо стремятся покинуть топливную матрицу, либо образуют пузырьки. Можно различить гетерогенное и гомогенное зарождение пузырьков [20]. Первое происходит когда новые пузырьки образуются вследствие

прямого взаимодействия осколков деления с решеткой. Гомогенное зарождение соответствует пузырькам, образующимся в результате диффузионных взаимодействий растворенных отдельных атомов газа. В [21,22] экспериментально наблюдались данные процессы.

Для учета внутризерновых пузырьков предлагалось решать уравнение диффузии отдельных атомов газа к границе сферы, как в модели Бута, добавляя уравнение баланса атомов газа в пузырьках. Аналитическое решение уравнения предложено в [23], где вводится эффективный коэффициент диффузии. Эти исследования подвели к созданию так называемых «топливных кодов», одни из самых известных за рубежом и в России представлены в [24-31].

С 1970-х годов было проведено шесть основных аналитических экспериментов по выходу продуктов деления из облученного топлива. Это серии экспериментов разных стран: *SASCHA* в Германии [32]; *HI/VI* в США [33]; *CRL* в Канаде [34]; *HEVA/VERCORS* во Франции [35], [10], [36]; *VEGA* в Японии [37]; и *QUENCH-VVER* [38] в России.

Несмотря на сложность и многогранность процесса выхода РН довольно давно [39] было предложено использовать для описания выхода уравнение диффузии РН внутри топливной таблетки. При этом расчетная модель должна учитывать, что помимо выхода РН через геометрические поверхности таблетки имеется также выход через пористость, и этот выход может на порядки превышать геометрический.

Общий вывод: решению данной задачи посвящено множество экспериментальных работ, сделано также немало расчетных моделей. И вместе с тем отдельного внимания заслуживает вывод, сделанный в работе [40], о том, что надежное предсказание выхода ГПД из топлива в окрестности величины выхода ~1% является чрезвычайно сложной задачей (имеется ввиду, что различные детали моделей могут изменять результат в разы).

Модель Бута модифицировалась с течением времени, так как первоначально она основывалась на аналитическом решении уравнения диффузии с постоянными параметрами. Но если плотность деления может быть постоянной,

то локальная температура и, следовательно, коэффициент диффузии изменяются с течением времени из-за снижения мощности, изменения диаметра оболочки, теплопроводности зазора. Таким образом, впоследствии были предложены численные схемы решения уравнения. Одно из наиболее широко используемых численных решений приведено в [39]. Реализовывались разные численные подходы: например, с использованием конечно разностных схем, методов конечных элементов и объемов [41-47].

1.3 Состояние вопроса исследования, основные проблемы и подходы к описанию

Существует два подхода к исследованию выходов продуктов деления из топлива. Первый – создание сложных моделей, описывающих поведение пузырьков газа, – механистический подход. Второй – эмпирический (например, [48,49]), 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. Тем не менее из-за неопределенностей в базовых свойствах и параметрах исследуемых объектов (выход ИРГ, продуктов деления разной летучести) возникают неопределенности в обоснованности поведенческих механизмов (например, [50]). Неопределенности в описании и обосновании основных механизмов поведения ПД значительно усложняют любое прогнозирование, используя механистический подход. Одна из многих проблем – описание выхода ПД при больших выгораниях, данный механизм до сих пор не изучен до конца. 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, например [51,52]. 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 влияний 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. Анализируя литературные данные [15, 40], можно заключить, что основные механизмы, ответственные за выход РН из топлива, а именно:

- отдача и выбивание осколками деления на открытой поверхности (благодаря высокой кинетической энергии и сохранению импульса ядро делящегося газа может быть непосредственно отброшено от поверхности топлива, если осколок деления образуется достаточно близко (т.е. менее 6-7 мкм) к поверхности. Альтернативно, упругие столкновения с соседними ядрами могут привести к их разбрасыванию по поверхности топлива);

- диффузия в зернах (по границам зерен) и кристаллической решетке;

- вызванное облучением повторное растворение нуклидов и улавливание/образование пузырьков (*trapping*), связанные с внутрикристаллическими пузырьками;

- соединение, последующая миграция пузырьков на границе зерен, приводящее к прохождению газового потока через образованный туннель;

- термодиффузия

играют роль только при температурах ниже 1200°C (т.е. при нормальной эксплуатации реактора), за исключением диффузионных процессов.

Также интерес в моделировании поведения представляют не только летучие ПД, но и ПД с пониженной степенью летучести. Вклад в радиационные последствия при авариях таких РН редко рассматривается вследствие

недостаточной информации о скорости и степени выхода. Например, рутений может представлять интерес из-за его высокой радиотоксичности (изотопы рутения-103 и рутения-106) и его способности образовывать легколетучие соединения даже при комнатной температуре, такие как газообразный тетраоксид рутения RuO_4 [53]. Или барий-140, при распаде которого образуется лантан-140, радиационное воздействие которого сопоставимо с воздействием цезия-137. Однако, возможно, механизм выхода данных РН будет немного отличаться от механизма для летучих ПД, как пишут авторы данных статей [54-60], и количество вышедших РН будет на порядок меньше.

Перенос и выход газов деления в UO_2 можно рассматривать с использованием теории диффузии, где влияние температуры на коэффициент диффузии может быть аппроксимировано с помощью теории Аррениуса. Однако в таком случае сложно учесть следующие факторы:

- вызванное радиацией повреждение кристаллической решетки, одновременно замедляющий (путем захвата внутризернистых пузырьков) и ускоряющий (путем повторного растворения, усиление диффузии под действием радиации) выход фактор;

- химические эффекты, связанные с образованием продуктов деления (например, изменение соотношения кислорода и металла).

Для учета вышеупомянутых эффектов коэффициент диффузии обычно определяется как сумма трех составляющих коэффициентов, каждый из которых выражает различный вклад (например, собственную диффузионную способность, тепловое и атермическое воздействие облучения). Компоненты коэффициента диффузии представлены с помощью аналитических выражений, основанных на различных эмпирических корреляциях.

Выводы по главе 1:

Проведенный анализ литературных данных показывает, что выход продуктов деления из топлива на начальном этапе определяется микроструктурой топлива, его температурой и глубиной выгорания. Инертные радиоактивные газы относительно легко выходят из топлива вместе с летучими элементами.

Слаболетучие элементы могут выходить из топливной матрицы при разогреве до высоких температур, но их скорость выхода в большей степени зависит от термохимии облученного топлива и окружающей газовой среды.

Существует два подхода к моделированию выхода продуктов деления: механистический и эмпирический. При создании эмпирических упрощенных моделей возможно завышение скорости выхода радионуклидов, так как будут учтены не все механизмы влияющие на выход. Однако, с точки зрения радиационной безопасности, это оказывается не настолько важно, упрощенная модель получается выгоднее быстротой расчета и приемлемостью результатов, особенно в случае повышения температуры топлива. Анализируя литературные данные [15, 40], можно заключить, что основные механизмы, ответственные за выход РН из топлива, играют роль только при температурах ниже 1200°C (т.е. при нормальной эксплуатации реактора), за исключением диффузионных процессов. Поэтому перенос и выход радионуклидов в UO_2 можно рассматривать с использованием теории диффузии, где влияние температуры на коэффициент диффузии может быть аппроксимировано с помощью теории Аррениуса. Коэффициент диффузии обычно определяется как сумма трех составляющих коэффициентов, каждый из которых выражает различный вклад (например, собственную диффузионную способность, тепловое и атермическое воздействие облучения). Компоненты коэффициента диффузии представлены с помощью аналитических выражений, основанных на различных эмпирических корреляциях.

ГЛАВА 2. РАЗРАБОТКА МОДЕЛИ ВЫХОДА РН ИЗ ТОПЛИВА. ПРОГРАММНАЯ РЕАЛИЗАЦИЯ

2.1 Модификация программы *CHAIN*

Исходными данными для прогнозирования выхода продуктов деления из топлива является количество радионуклидов, которые образовались в топливе. Для расчета изотопного состава и радиационных характеристик существует программа *CHAIN* [61], разработанная в НИЦ «Курчатовский институт». Разрабатываемый блок [62] расчета выходов (*RR*) является модификацией и продолжением развития программы *CHAIN*, которая предназначена для моделирования изменения нуклидного состава материалов при облучении нейтронами и в процессе радиоактивного распада входящих в их состав нестабильных ядер, в том числе для расчетов радиационных характеристик облученных материалов: расчетов изотопного состава, активности, остаточного энерговыделения, мощности источника нейтронов спонтанного деления и спектрального состава излучения, и в настоящий момент, после проведенной модернизации (блок *RR*), выходов радионуклидов из топлива при нормальном режиме работы реактора под оболочку твэла и в аварийной ситуации. Радиационные характеристики облученных материалов, как и материалов, включающих в себя природные нестабильные изотопы, однозначно определяются их нуклидным составом. В программе *CHAIN* для расчета изменений ядерных концентраций во времени используется аналитическое решение уравнения ядерных переходов. Программа использует точечную модель с условиями постоянства свойств среды и средней плотности потока нейтронов в рассматриваемом объеме.

Плотность потока нейтронов задается в качестве исходных данных и должна быть предварительно получена в расчете по программам, позволяющим моделировать рассматриваемую систему с приемлемой точностью.

Полученный в момент времени t после начала облучения изотопный состав материала полностью определяет его радиационные характеристики, а также дальнейшее изменение изотопного состава за счет распада нестабильных ядер по

мере увеличения времени выдержки. Каждый из стартовых изотопов просчитывается по отдельности. Окончательный изотопный состав определяется суммированием накопленных во всех цепочках одноименных изотопов. Сформированный в результате расчета изотопный состав, включающий только найденные в библиотеке изотопы, используется для расчета выгорания на следующем шаге при другом уровне потока. Расчет радиационных характеристик проводится на каждом шаге моделирования облучения.

В отличие от таких программ, как *WIMS* [63] или *ORIGEN* [64], алгоритм программы *CHAIN* не включает в себя жестко заданных цепочек перехода от ядра к ядру. Программа осуществляет автоматический выбор дочерних ядер на основании информации о типах реакций и распадах, возможных для материнского ядра, формируя цепочки переходов.

Ядерно-физические константы, необходимые для работы программы *CHAIN*, содержатся в библиотеке, состоящей из двух отдельных частей. Библиотечный файл *libr1* предназначен для расчета в условиях облучения материала нейтронами, файл *decay-libr* – для расчета в условиях только радиоактивного распада. Файлы библиотеки состоят из последовательности отдельных модулей, каждый из которых содержит всю необходимую информацию по ядерным свойствам одного нуклида. В последнюю версию библиотеки включено 652 изотопов (которые необходимы для реакторных расчетов), из которых 38 делящихся и 493 нестабильных.

Для расчета выхода летучих РН из топливной таблетки была разработана подпрограмма *RR* [65], которая интегрирована в основную программу *CHAIN*. Далее подпрограмма переросла в отдельную обособленную программу *CHAIN-2* [62]. Программа *CHAIN* аттестована в части выхода летучих РН и ИРГ для нормальной эксплуатации и аварийных ситуаций. Программу *CHAIN-2* планируется аттестовать в части выхода РН пониженной степени летучести для аварийных ситуаций. Однако в программе *CHAIN-2* есть все необходимое для расчета не только слаболетучих радионуклидов, но и летучих, т.к. математическая модель, заложенная в программу, одинакова.

В данной главе приводится обоснование и описание математической модели программы для расчета выхода радионуклидов.

2.2 Описание расчетной модели

2.2.1 Основные уравнения

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 2.1.

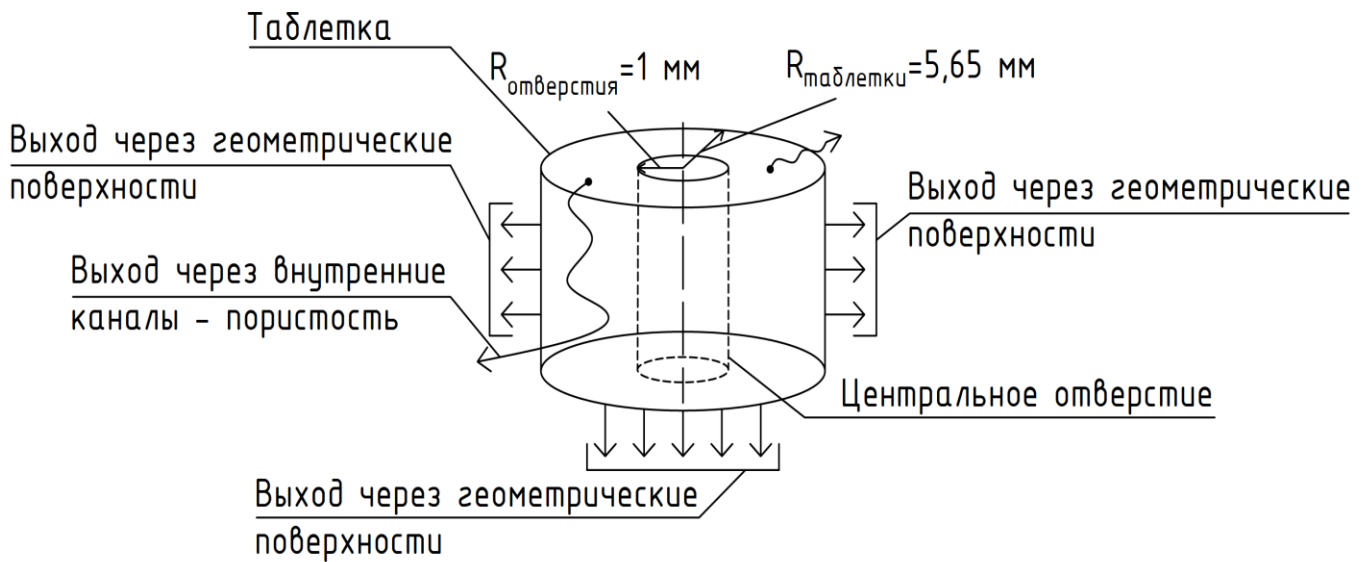


Рисунок 2.1 – Иллюстрация модели, заложенной в основу программы

Диффузия описывается уравнением (2.1):

$$\frac{\partial N}{\partial t} = \nabla D \nabla N - \lambda_{эфф} N - \Sigma N + q, \quad (2.1)$$

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).

В таблице 2.1 сравниваются величины λ и $\sigma \cdot \Phi$ для двенадцати наиболее радиационно значимых РН (т.к. именно данные РН дают основной вклад в дозу облучения человека, в том числе в первый период после аварии).

Таблица 2.1 – Величины λ и $\sigma \cdot \Phi$ для наиболее радиационно значимых РН

| Изотоп | λ | $\sigma \cdot \Phi$ |
|----------------------|-----------------|---------------------|
| <i>Kr-85</i> | 2,04E-09 | 4,00E-11 |
| <i>Kr-87</i> | 1,51E-04 | 0 |
| <i>Kr-88</i> | 6,78E-05 | 0 |
| <i>Xe-133</i> | 1,53E-06 | 4,97E-09 |
| <i>Xe-135</i> | 2,11E-05 | 6,47E-05 |
| <i>I-131</i> | 9,98E-07 | 4,27E-11 |
| <i>I-132</i> | 8,37E-05 | 0 |
| <i>I-133</i> | 9,26E-06 | 0 |
| <i>I-134</i> | 2,19E-04 | 0 |
| <i>I-135</i> | 2,91E-05 | 0 |
| <i>Cs-134</i> | 1,07E-08 | 3,10E-09 |
| <i>Cs-137</i> | 7,30E-10 | 3,66E-10 |

Учет выгорания РН имеет существенное значение только для *Xe-135*, что снижает величину выхода данного РН примерно в 2,5 раза.

Ключевым параметром в данной задаче является коэффициент диффузии, который определяется выражением (2.2) из работы [11]:

$$D = A \cdot e^{-\frac{B}{T}} + C \cdot \sqrt{n} \cdot e^{-\frac{13800}{T}} + D_0 \cdot n, \quad (2.2)$$

где T – температура диоксида урана (К);

n – плотность делений (дел/(м³·с));

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

Выражение (2.2) также предназначено для оценки выхода РН под оболочку герметичных твэлов при нормальной работе. Оно встречается и в более ранних работах, например в [66].

Зачастую программные средства создаются на основе моделей расчета выходов при нормальных условиях (в первую очередь имеются ввиду рабочие температуры топлива). Однако для аварийных условий, либо при отступлении от нормальных условий такие модели (соответственно и программы) использоваться не могут. Разработанная модель является отступлением от общемировых 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: нормальную эксплуатацию и аварии. Вместо рассмотрения зерен и пузырьков газа 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 решается уравнение диффузии, а т.к. вид решения уравнения будет однотипный, то вводится член $\Sigma \cdot N$, отвечающий за миграцию РН внутри твэла.

Исходные значения для констант A и B в выражении (2.2) следующие: $A = 7,5 \cdot 10^{-11} \text{ м}^2/\text{с}$; $B = 35000 \text{ К}$. Далее они будут корректироваться для возможности распространения модели на нормальные и аварийные условия.

Член $\Sigma \cdot N$ в уравнении (2.1) выступает как некое внутреннее поглощение, в результате которого РН выходит за пределы диоксида урана. Т.е. включает в себя физические процессы, происходящие внутри диоксида урана с РН, его миграцию внутри таблетки.

Для получения численного значения Σ используется следующее выражение.

Принимаем R_z – радиус зерна диоксида урана. Тогда площадь поверхности всех зерен внутри объема диоксида урана (V) равна:

$$S = 4\pi R_3^2 \frac{V}{V_3} = \frac{3V}{R_3}, \quad (2.3)$$

где V_3 – объем одного зерна.

Площадь поверхности, приходящаяся на единицу объема:

$$S_1 = \frac{S}{V} = \frac{3}{R_3}, \quad (2.4)$$

Поток ядер РН из зерна в поры (на единицу объема) будет задаваться выражением (2.5):

$$f_{in} = \frac{S_1}{R_3} \cdot D \cdot \xi (N - N_0) = \frac{S_1}{R_3} \cdot D \cdot \xi \left(1 - \frac{N_0}{N}\right) \cdot N = \frac{S_1}{R_3} \cdot D_{eff} \cdot N, \quad (2.5)$$

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

D – коэффициент диффузии;

N – концентрация РН в диоксиде;

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

D_{eff} – эффективный коэффициент диффузии.

Величина N_0 учитывает возможность ненулевых граничных условий на внешней границе зерна и имеет заметные значения для долгоживущих РН в герметичном твэле, так как для короткоживущих РН (из-за распада) или для всех РН в негерметичном твэле (из-за большого открытого пространства) она может быть принята равной нулю. В случае же долгоживущих РН величина N_0 , нарастая во времени, будет тормозить дальнейший выход. В качестве Σ будет выступать:

$$\Sigma = \frac{S_1}{R_3} \cdot D_{eff}, \quad (2.6)$$

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

Уравнение (2.1) 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 $N(\vec{r}, 0) = 0^1$.

В каждый момент времени после получения распределения $N(\vec{r}, t)$ на границах цилиндра вычисляется утечка, и определяется количество ядер РН, выходящих из диоксида урана через геометрические поверхности. К этому количеству добавляется внутренняя утечка, определяемая как интеграл по объему величины $\Sigma \cdot N$. 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).

Несмотря на сложность процесса описания выхода РН, довольно давно [39] было предложено использовать уравнение диффузии РН внутри топливной таблетки.

Для коэффициента диффузии уравнение (2.2) можно также преобразовать в (2.7) [11]:

$$D = D_1(T) + D_2(T, n) + D_3(n) \quad (2.7)$$

где T – температура,

n – плотность делений.

Предполагается, что D_1 превалирует при температурах более 1200 °С, что соответствует классической диффузии в твердом теле и описывается законом Аррениуса: $D_1 = A \cdot e^{-B/T}$, где $B=35000\text{К}$, для A предлагаются величины от $7,5 \cdot 10^{-11} \text{ м}^2/\text{с}$ до $1 \cdot 10^{-8} \text{ м}^2/\text{с}$ [40]. Важно отметить, что в [40] приведено сравнение расчётных данных по выходам с экспериментальными, из которых видно, что верхняя оценка для $A=1 \cdot 10^{-8} \text{ м}^2/\text{с}$, тем не менее (для данных экспериментов) в разы занижает выходы.

$D_2(T, n)$ – дает основной вклад при температурах 800÷1200 °С.

¹ В ANS5.4 [39] предлагается в каждой расчетной ноде топливной таблетки решить задачу выхода РН из некоторой сферы (модель Бута), используя соответствующую этой ноде температуру. Размер сферы должен быть подобран по результатам экспериментов. Затем выход суммируется по всем нодам. В нашей модели используется подобный подход, но вместо рассмотрения сферы Бута рассматривается одно зерно, утечка из которого под оболочку рассчитывается по соотношениям (2.5, 2.6).

$D_2 = C \cdot \sqrt{n} \cdot e^{-13800/T}$, где для коэффициента C дается значение (разными авторами, на основе разных экспериментов) от $1,41 \cdot 10^{-25}$ до $6,64 \cdot 10^{-25}$ [40].

Данная составляющая соответствует радиационно-стимулированной диффузии, связана с образованием вакансий для диффундирующих атомов под облучением.

$D_3(n)$ – дает основной вклад при низких температурах $< 800^\circ\text{C}$ и представляется в виде $D_3 = D_0 \cdot n$, где D_0 изменяется (также согласно разным авторам) от $2 \cdot 10^{-40} \text{ м}^5$ до $1,2 \cdot 10^{-39} \text{ м}^5$ [40]. Данная составляющая отвечает за процессы выхода РН за счет отдачи при делении и выбивания осколками (*recoil and knock-out*) и поэтому зависит от плотности делений.

Необходимо также заметить, что в [40] относительно температурных интервалов, где доминирует тот или иной механизм диффузии дается оговорка, что указанные температурные границы не являются общепринятыми константами.

Важным выводом из ранее проведенных исследований является существование некоторого температурного порога (по температуре в центре топливной таблетки), согласно которому, если температура в центре таблетки останется ниже этого порога, выход летучих ПД не превышает 1%, если же этот порог превышает, то выход значительно возрастает. Данная пороговая температура описывается уравнением (2.8) [40]:

$$T_L(C) = \frac{Z}{\ln(200 B)}, \quad (2.8)$$

где B – глубина выгорания в МВт·сут/кг,

$$Z = 9800.$$

Другой, примыкающий к предыдущему вывод – рост выхода с увеличением выгорания, особенно ускоренный рост (до уровня 25%) при больших выгораниях (более 50 МВт·сут/кг) [11].

Учитывая сказанное выше, за основу модели берется уравнение диффузии, коэффициенты диффузии в виде суммы трех составляющих будут подбираться по

экспериментальным данным, чтобы обеспечить одновременное решение двух задач:

1. прогноз выхода РН из диоксида урана в герметичных твэлах при нормальной работе (эти РН находятся под оболочками твэлов и выходят при повреждении оболочек);
2. прогноз выхода РН из диоксида при аварийном режиме, в том числе при нагреве топлива.

2.2.2 Теплофизический блок программы

В качестве теплофизического блока используется подпрограмма, разработанная В.Н. Бабайцевым [67], с достаточно подробным описанием переноса тепла в твэле. Ниже дается ее краткое описание.

Расчет распределения температур в твэле проводится [67] путем численного решения нестационарного уравнения теплопроводности следующего вида:

$$c\rho \frac{\partial T}{\partial t} = \operatorname{div} (\lambda \operatorname{grad} T) + q_v, \quad (2.9)$$

где t – время, с;

c – теплоемкость, Дж/(кг·К);

ρ – плотность, кг/м³;

λ – теплопроводность, Вт/(м·К);

q_v – объемная мощность источников тепловыделения, Вт/м³;

T – температура теплообменного элемента, К.

Построение конечно-разностного аналога уравнения (2.9) осуществляется в цилиндрической системе координат. Для этого в расчетной области вводится расчетная сетка (равномерная или неравномерная). Пространственная аппроксимация уравнения (2.9) на выбранной расчетной сетке проводится методом контрольного объема. При этом используется предположение, что расчетный узел является границей 8 различных физических зон². Для аппроксимации уравнения по временной переменной применяется неявный метод. Решение системы разностных уравнений проводится по методу Гаусса-Зайделя.

² Зоны могут различаться по теплофизическим свойствам.

Для ускорения сходимости итерационного процесса используется последовательная верхняя релаксация. Когда расчет распределения температур проводится в тепловой структуре, в которой процесс передачи тепла осуществляется не только за счет теплопроводности, но и за счет теплового излучения, тогда тепловая структура разбивается на отдельные теплоизлучающие объекты, разделенные между собой газовой средой. Применительно к теплофизическому расчету твэла РБМК для определения теплоотдачи газового зазора в твэле, для дальнейшего расчета величины радиального зазора между топливом и оболочкой, которая снижается с увеличением выгорания (и линейной нагрузки), учитывается влияние следующих факторов:

- эффект неполной тепловой аккомодации при обмене энергией между смесью газов и твердым телом,
- шероховатость топлива и оболочки,
- тепловая проводимости пятен контакта,
- растрескивание топлива.

Расчет теплопередачи через газовую среду ведется по формуле (2.10):

$$\alpha_{\text{зазора}}^{\text{твэла}} = \frac{\lambda_{\text{газа}}(\bar{t}_{\text{газа}})}{c_1 + \delta_z + c_2 \delta_{\text{зазора}}} + \varepsilon_{\text{пр}} \sigma (t_1^2 + t_2^2) \cdot (t_1 + t_2) + \alpha_{\text{конт}} \quad (2.10)$$

где: t_1, t_2 – температуры контактирующих друг с другом, поверхностей, К;

$\lambda_{\text{газа}}$ – теплопроводность газа, вычисляемая по средней температуре газа в зазоре, Вт/(м·К);

$\delta_{\text{зазора}}$ – величина газового зазора, м;

$\varepsilon_{\text{пр}}$ – приведенная степень черноты контактирующих поверхностей;

σ – коэффициент излучения абсолютно черного тела, Вт/(м²·К⁴);

c_1 – коэффициент, учитывающий влияние шероховатостей поверхностей топлива и оболочки твэла, м;

δ_r – суммарная длина температурных скачков у поверхностей топлива и оболочки, м;

c_2 – коэффициент, учитывающий дополнительное уменьшение рассчитанной величины газового зазора в результате растрескивания топлива;

$\alpha_{\text{конт}}$ – тепловая проводимость пятен контакта, Вт/(м²·К).

Для расчета теплопроводности газовой среды в твэле необходимо знать объемный состав смеси газов под оболочкой, который меняется в процессе выгорания ТВС. В таблице 2.2 приведены значения давления и объемный состав газовой смеси под оболочкой твэла, которые являются исходными (стартовыми) значениями в теплофизическом блоке. В процессе расчета, либо при различных начальных значениях, которые задаются в качестве исходных данных в программе, в теплофизический блок подаются обновленные значения газового состава зазора.

Таблица 2.2 – Давление и состав газа под оболочкой твэла в процессе кампании

| Среднее выгорание, МВт·сут/кг | Давление ГПД под оболочкой твэла, МПа | Объемный состав газовой смеси под оболочкой твэла | | |
|-------------------------------|---------------------------------------|---|---------|--------|
| | | гелий | криптон | ксенон |
| 0,0 | 1,661 | 0,9923 | 0,0011 | 0,0066 |
| 2,5 | 1,681 | 0,9837 | 0,0023 | 0,0139 |
| 5,0 | 1,714 | 0,9675 | 0,0047 | 0,0279 |
| 7,5 | 1,776 | 0,9475 | 0,0075 | 0,0450 |
| 10,0 | 1,837 | 0,9275 | 0,0104 | 0,0622 |
| 12,5 | 1,889 | 0,9104 | 0,0128 | 0,0768 |
| 15,0 | 1,928 | 0,8988 | 0,0145 | 0,0867 |
| 17,5 | 1,953 | 0,8915 | 0,0155 | 0,0929 |
| 20,0 | 1,973 | 0,8844 | 0,0165 | 0,0991 |
| 22,5 | 1,994 | 0,8767 | 0,0176 | 0,1056 |
| 25,0 | 2,016 | 0,8684 | 0,0188 | 0,1128 |
| 27,5 | 2,041 | 0,8591 | 0,0202 | 0,1208 |
| 30,0 | 2,07 | 0,8485 | 0,0217 | 0,1299 |
| 32,5 | 2,104 | 0,8362 | 0,0234 | 0,1404 |
| 35,0 | 2,145 | 0,8218 | 0,0255 | 0,1527 |

Теплопроводность газовой смеси рассчитывается по формуле (2.11):

$$\lambda_{\text{газа}} = \sum_{i=1}^3 \frac{\lambda_i}{1 + \frac{1}{x_i} \sum_{j=1; j \neq i}^3 A_{i,j} x_j} \quad (2.11)$$

где: $\lambda_i = \lambda_i^0 \left(\frac{t+273}{273}\right)^{m_i}$ – теплопроводность i -го компонента газовой смеси при температуре t ;

m_i – показатель температурной зависимости i -го компонента газовой смеси;

λ_i^0 – теплопроводность i -го компонента газовой смеси при температуре 0 °С;

x_i – объемные доли газов в смеси ($i = 1$ – гелий, $i = 2$ – криптон, $i = 3$ – ксенон);

$A_{i,j}$ – эмпирические коэффициенты, полученные на основании экспериментальных данных о теплопроводности бинарных смесей [67]: $A_{1,2}=2,7$, $A_{1,3}=3,6$, $A_{2,1}=1,7$, $A_{2,3}=0,6$, $A_{3,1}=0,5$, $A_{3,2}=3,5$.

Для расчета величины радиального зазора между топливом и оболочкой используется зависимость (иллюстрация приведена на рисунке 2.2 (для топлива $2,8\%+0,6\%Er$)):

$$\delta_{\text{зазора}} = 1.23 \cdot 10^{-2} - 1.08 \cdot 10^{-4} B_l - 1.11 \cdot 10^{-6} B_l^2 + 1.52 \cdot 10^{-6} Q_l - 4.53 \cdot 10^{-8} Q_l^2 - 5.42 \cdot 10^{-7} B_l Q_l \quad (2.12)$$

где $\delta_{\text{зазора}}$ – величина зазора, см;

B_l – локальное выгорание, МВт·сут/кг;

Q_l – линейная нагрузка, Вт/см.

Данная зависимость была получена путем обработки (методом наименьших квадратов) расчетных величин зазоров (210 точек).

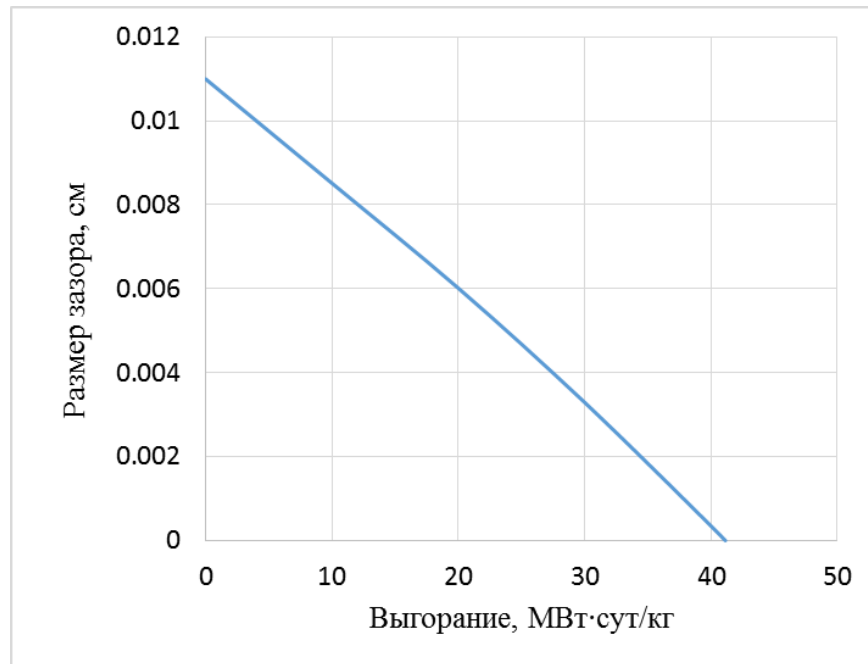


Рисунок 2.2 – Зависимость размера зазора топливо-оболочки от выгорания

Теплопроводность топливной таблетки для топлива 2,8%+0,6%Er (10^{-2} Вт/(см·К)) рассчитывается по формуле:

$$\lambda = 6,20 - (7,98 \cdot 10^{-3} - (6,60 \cdot 10^{-6} - (2,53 \cdot 10^{-9} - 3,82 \cdot 10^{-13} \cdot t) \cdot t) \cdot t) \cdot t$$

Теплопроводность топливной таблетки для уранового топлива без эрбия (10^{-2} Вт/(см·К)) рассчитывается по формуле:

$$\lambda = \left(\frac{4,82}{624,15+T} + 2,434 \cdot 10^{-17} \cdot (T + 273,15) \right)^4 \cdot 10^3.$$

Снижение теплопроводности топлива при увеличении выгорания учитывается введением в формулу выше множителя [68]: $\lambda = \lambda \cdot \frac{1}{1 + \frac{7,91 \cdot B}{T}}$.

Учитывая данные теплофизические зависимости, можно заключить, что при использовании топлива без добавления эрбия выход продуктов деления под оболочку был меньше. А при одинаковых мощностях ТВС выход для ТВС с добавлением эрбия будет выше. Однако использование топлива с обогащением 2,8% и добавлением эрбия 0,6% уменьшает неравномерность поля энерговыделения по ТВС, следовательно, снижает температуру, что действует в сторону снижения выхода РН.

2.2.3 Блок-схема программы

На рисунке 2.3 приведена блок-схема программы, реализующей представленную выше методику.

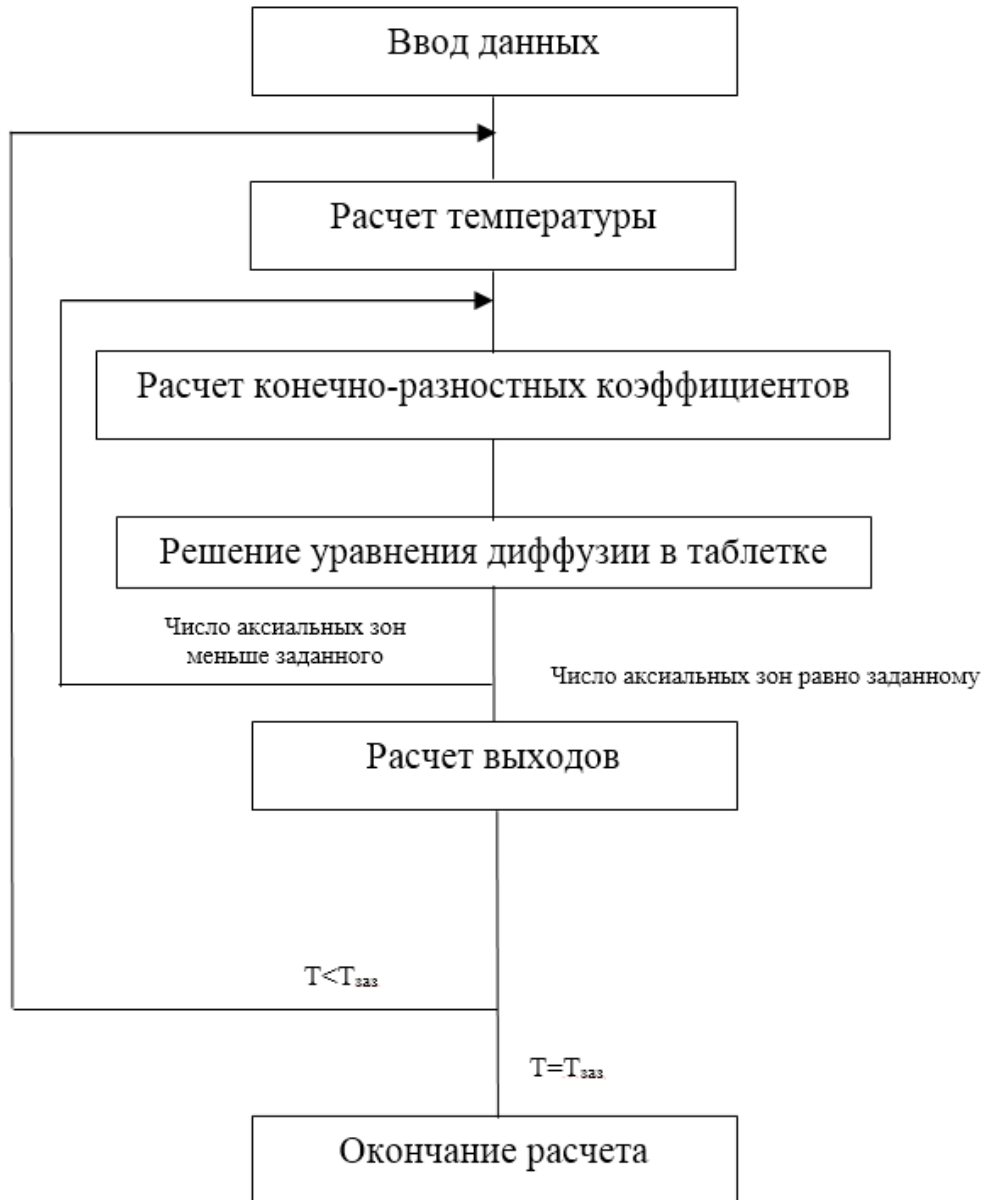


Рисунок 2.3 – Блок схема программы расчета выходов

1) Ввод данных осуществляется с помощью входного файла, где задаются параметры для расчета коэффициентов диффузии для каждого РН, период полураспада (часы), скорость делений (деления на твэл/с), размер зерна диоксида урана, геометрия расчета(1 - цилиндрическая таблетка, 2 - сферическая частица), радиус и высота таблетки, количество аксиальных зон в твэле, распределение

энерговыведения в аксиальном направлении, шаг расчета по времени, количество временных шагов, зависимости мощности твэла от времени, радиальное и аксиальное разбиение таблетки диоксида урана на ноды и еще ряд параметров.

2) Температура по таблетке в радиальном направлении рассчитывается специальной подпрограммой с учетом изменения с выгоранием зазора топливо-оболочка, либо радиальное распределение может быть задано. Подробное описание подпрограммы приведено в [67] и в разделе 2.2.2.

3) 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.

Другая картина имеет место, если рассматриваются топливные частицы размером порядка 100 мкм (топливо реактора ПИК, Белоярской АЭС). Здесь учет утечки через геометрические поверхности сравним с утечкой через поры.

При расчете твэла с заданным аксиальным распределением энерговыведения программа проходит по всем аксиальным зонам. При плоском распределении ограничивается одной зоной.

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).

4) 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. Именно эта величина нужна для определения источника РН при анализе радиационных последствий аварий. Кроме того, рассчитывается традиционно используемое отношение R/B –

скорость утечки РН (R) к скорости его генерации (B). Данное отношение для долгоживущих РН не совпадает с выше определяемым выходом.

5) В программе учитывается, что РН может появиться не только при делении, но и при распаде материнского изотопа. Характерным примером среди двенадцати газообразных и летучих дозообразующих РН являются ^{135}Xe и ^{133}Xe . При расчете их выходов определяется составляющая, которая возникает за счет выхода ^{133}I и ^{135}I и их последующего распада в соответствующий изотоп ксенона.

2.2.4 Сходимость и устойчивость численного решения

Оценка сходимости и устойчивости численного решения задачи проводилась варьированием временного шага, а также шагов конечно-разностной сетки. Итерации проводятся методом Гаусса-Зейделя [69]. В таблице 2.3 приведены величины среднего по кампании выхода для радионуклидов в зависимости от величины временного шага. Длительность кампании в данном расчете 18000 часов

Таблица 2.3 – Средний выход РН по кампании для различных шагов временной сетки

| Шаг, час | Выход, отн. ед. | | |
|----------|-----------------|--------------|---------------|
| | <i>Kr-88</i> | <i>I-131</i> | <i>Cs-137</i> |
| 0,5 | 0,152E-04 | 0,985E-03 | 1,096E-02 |
| 1 | 0,153E-04 | 0,987E-03 | 1,097E-02 |
| 2 | 0,153E-04 | 0,993E-03 | 1,101E-02 |

Расчеты проводились для ТВС РБМК с обогащением 2,8% без учета аксиальной неравномерности энерговыделения по твэлу.

В расчетах выхода РН при нормальной эксплуатации стандартно заданный в программу временной шаг – 1 час. Из таблицы 2.3 видно, что вариации шага в сторону уменьшения или увеличения практически не изменяют результат, отклонение менее 1%.

Для случая топливной таблетки РБМК для сходимости достаточно около 10 итераций. Получаемое распределение близко к плоскому за исключением

областей вблизи геометрических границ. Пример такого распределения дан на рисунке 2.3 (раздел 2.2.5). При расчете более мелких объектов (например, диспергированное топливо, осколки топлива размером 1мм, попавшие при аварии в графитовую кладку), где пространственное распределение плотности РН по объему топлива заметно отличается от плоского, требуется 30-40 итераций для сходимости.

В таблице 2.4 приведены расчеты среднего за кампанию выхода в зависимости от количества точек конечно-разностной сетки. Длительность кампании в данном расчете 36000 часов.

Таблица 2.4 – Средний выход РН из топлива при варьировании числа точек конечно-разностной сетки

| Число точек | Выход, отн. ед. | | |
|-------------|-----------------|--------------|---------------|
| | <i>Kr-88</i> | <i>I-131</i> | <i>Cs-137</i> |
| 25/5 | 0,129E-04 | 0,841E-03 | 1,590E-02 |
| 50/10 | 0,134E-04 | 0,875E-03 | 1,680E-02 |
| 100/20 | 0,137E-04 | 0,894E-03 | 1,628E-02 |

Число точек, например 25/5, означает, что по радиусу и высоте топливной таблетки берется 25 точек (по высоте рассматривается половина таблетки с граничными условиями отражения на верхней торцевой границе и условно нулевыми условиями на нижней и боковой. «Условно нулевые» условия ставятся на экстраполированной границе, выступающей наружу от геометрической на фиксированную величину 5 мкм, где 5 мкм – средний пробег осколка деления в диоксиде [70]). Пять точек из 25 берется в периферийных зонах вблизи границ с открытым пространством для более точного описания градиентов плотности РН. Размеры этих периферийных зон берутся порядка 1% от радиуса или высоты таблетки соответственно. Стандартное разбиение в модели – 100/20. Видно, что ее изменение практически не изменяет результат (максимальное отклонение наблюдается для цезия – около 5%). Тренд к возрастанию выхода при уменьшении шага сетки объясняется небольшими отличиями в температурах

центральной области таблетки за счет линейной интерполяции радиального распределения температуры в температурном блоке программы на мелкую сетку, используемую в блоке расчета распределения концентрации РН (температурный блок использует более крупную сетку).

Для долгоживущих РН результат расчёта зависит от доли открытого пространства, включающего в себя объем открытых пор в диоксиде урана, зазор между топливом и оболочкой, компенсационный объем в твэле. Этот параметр по умолчанию задан в программе равным 0,05. Влияние его вариаций на результат расчета выхода цезия приведено в таблице 2.5.

Таблица 2.5 – Выход цезия для различной величины доли открытого пространства в твэле

| Доля открытого пространства в твэле, отн. ед. | Средний по кампании выход Cs-137, % |
|---|-------------------------------------|
| 0,04 | 1,455 |
| 0,05 | 1,628 |
| 0,06 | 1,768 |

Вариации данного параметра вблизи выбранного значения 0,05 оказывают небольшое ожидаемое влияние на результат. Рост доли открытого пространства ведет к возрастанию выхода. В рамках модели введение этого параметра описывает эффект насыщения, когда ранее вышедшие из диоксида урана в объем замкнутого пространства герметичного твэла РН начинают препятствовать дальнейшему диффузионному выходу. Игнорирование этого эффекта ведет к существенному завышению расчетных величин выхода для долгоживущих РН.

Одним из важных для расчета величины выхода параметром является размер зерна диоксида урана. В программе, в качестве исходных данных, по умолчанию этот размер принимается стандартным – 10 мкм. Влияние вариации размера на результат показано в качестве примера в таблице 2.6. Результаты рассчитывались для ТВС со средними параметрами, длительность кампании 18000 часов.

Таблица 2.6 – Выход цезия для различной величины доли открытого пространства в твэле

| Размер зерна, мкм | Выход РН, % | | |
|-------------------|--------------|--------------|---------------|
| | <i>Kr-88</i> | <i>I-131</i> | <i>Cs-137</i> |
| 5 | 0,610E-02 | 0,357 | 2,1 |
| 10 | 0,153E-02 | 0,099 | 1,097 |
| 20 | 0,039E-02 | 0,026 | 0,391 |

Рост размеров зерна снижает отношение поверхности к объему и, соответственно, снижается выход. Диоксид с более крупным зерном мог бы понизить выходы РН под оболочку твэлов при нормальной работе, что и показывает модель, заложенная в программу.

2.2.5 Граничные условия

Для корректного расчета утечки через геометрические поверхности (боковая и торцевые поверхности таблетки) конечно-разностная сетка сгущается в зонах, примыкающих к границе. Если в основном объеме таблетки типичный шаг на уровне 0,05 мм, то в данной зоне используется шаг порядка 10^{-4} мм. Следует, однако, заметить, что согласно расчету утечка через геометрические поверхности для типичной топливной таблетки составляет лишь около 1% от полной утечки, включающей также утечку через поры в диоксиде урана (эта основная составляющая утечки описывается величиной $\Sigma \cdot N$ в уравнении 2.1). Уравнение (2.1) дискретизируется по времени, используя неявную схему. Далее уравнение дискретизируется по пространственным переменным r и z . В результате на каждом временном шаге (обычно длина шага 1 час) 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 $Y = \int_{r_1}^{r_2} \Sigma(\vec{r}) \cdot N(\vec{r}) 2\pi r dr$, где $\Sigma(\vec{r})$

определена соотношением (2.6), а r_1 и r_2 радиусы центрального отверстия и топливной таблетки соответственно.

Для иллюстрации того, как выглядит типичное радиальное распределение активности радионуклида, на рисунке 2.4 оно приведено для $Cs-137$ на конец кампании ТВС. На рисунке 2.4 приведена величина отклонения $\Delta=(A(r)-A_0)/A_0$, где $A(r)$ – активность на единицу объема в точке r , A_0 – максимальная активность в радиальном распределении.

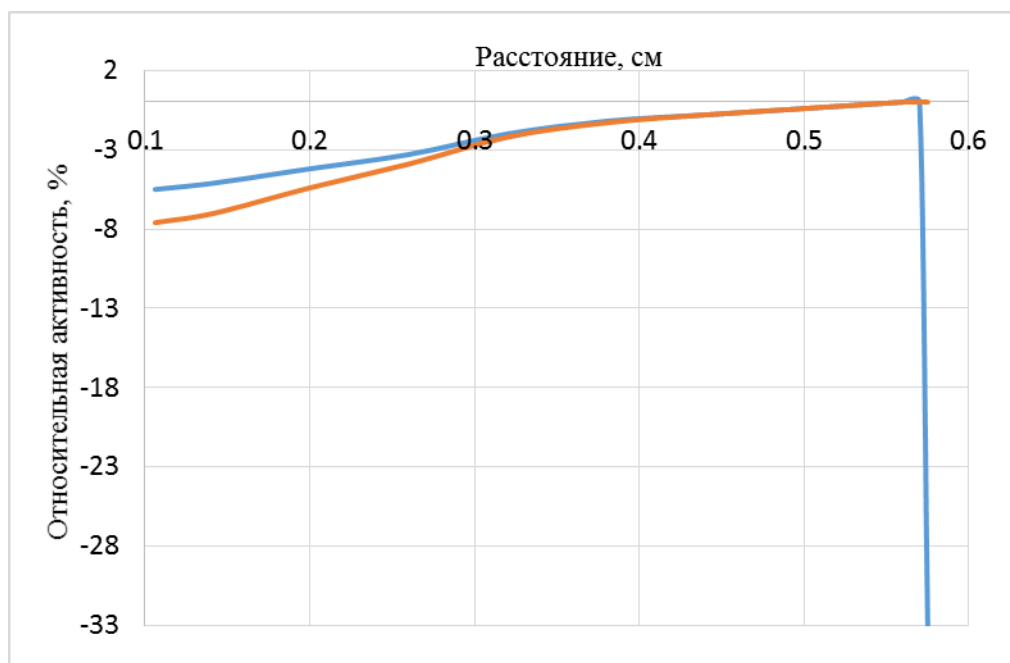


Рисунок 2.4 – Радиальное распределение активности $Cs-137$

На рисунке, помимо синей кривой, представляющей решение уравнения диффузии, приведена также оранжевая кривая, показывающая как выглядит эта же радиальная зависимость, если градиентом в уравнении (2.1) пренебречь (т.е. без учета перетечек между радиальными зонами).

Снижение активности в центральной области объясняется ростом температуры от периферии к центру таблетки и соответствующим ростом утечки через поры. Резкое снижение активности вблизи внешней поверхности, очевидно, объясняется утечкой через нее (заданы нулевые граничные условия, поэтому на рисунке представлен сильный провал).

Видно, что вариант без учета перетечек (оранжевый) такого снижения не имеет и демонстрирует несколько больший провал активности в центральной области за счет ухода радионуклида через поры. При учете перетечек этот провал сглаживается. Т.е. диффузию по объёму таблетки целесообразно учитывать.

На рисунке 2.5 представлено распределение выхода цезия по радиусу топливной таблетки. Показаны относительные выходы с единицы площади таблетки в окрестности данного радиуса (по отношению к среднему выходу по всей таблетке). Видно, что так определённый выход будет максимален в центре таблетки из-за высоких температур, превышая соответствующий выход на периферии таблетки примерно на порядок. Однако, если рассматривать выход с единицы длины радиуса таблетки, то можно заключить, что здесь неравномерность выхода существенно меньше. Выход из центральной кольцевой зоны превышает выход из соответствующей периферийной зоны примерно вдвое (т.к. с увеличением радиуса зоны растет ее площадь).

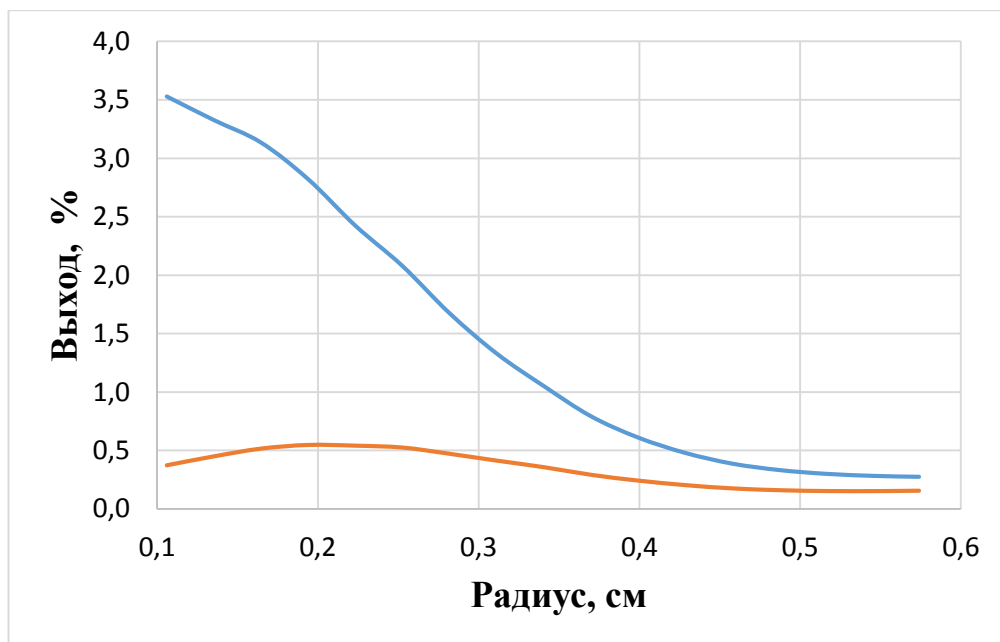


Рисунок 2.5 – Радиальное распределение выхода цезия-137:
 — - удельный выход (с единицы площади), — - интегральный выход (с единицы радиуса)

Утечка через поры является основной составляющей выхода радионуклидов под оболочку твэлов. Ее представление в программе математически эквивалентно некоторому поглощению (как видно в уравнении (2.1)). В разделе 2.2.1 говорится,

что при расчете этой составляющей целесообразно учесть, что по мере увеличения количества ядер радионуклидов, выходящих из диоксида урана в открытое пространство твэла (под оболочку) процесс дальнейшего выхода может замедляться (а также ядра могут попадать обратно в топливо за счет *knock-on* эффекта). Это может быть учтено введением ненулевых граничных условий на границах зерен диоксида урана (величина N_0 в формуле 2.5).

В программе расчет N_0 реализован следующим образом:

1) После получения пространственного распределения радионуклида в объеме таблетки на каждом временном шаге $N(\vec{z})$ вычисляется распределение вышедших в открытое пространство радионуклидов $N_0(\vec{r})$ по соотношению:

$$N_0^n(\vec{r}) = N_0^{n-1}(\vec{r}) + \left(\frac{\Sigma(\vec{r}) \cdot N(\vec{r})}{D_0} - \lambda \cdot N_0^{n-1}(\vec{r}) \right) \Delta t, \quad (2.13)$$

где n – номер временного шага;

D_0 – доля открытого пространства в твэле.

2) Вычисляется среднее по объему значение от $N_0(\vec{r})$ в предположении, что выходящие радионуклиды распределяются по открытому пространству равномерно:

$$N_0 = \int_{r_1}^{r_2} N_0(\vec{r}) dr / r \quad (2.14)$$

Доля открытого пространства в твэле (D_0) со временем снижается с уменьшением зазора топливо-оболочка. Описанный эффект имеет значение для долгоживущих радионуклидов в герметичных твэлах, так как при разгерметизации доля открытого пространства стремится к бесконечности.

3) Вычисляется поправка к коэффициенту диффузии – множитель $1 - N_0/N(\vec{r})$ (см. формулу (2.5)), который вначале кампании по определению равен единице, а затем снижается по мере роста члена N_0 .

На рис. 2.6 показаны зависимости выхода $Cs-137$ от времени, посчитанные с учетом и без учета обсуждаемого эффекта.

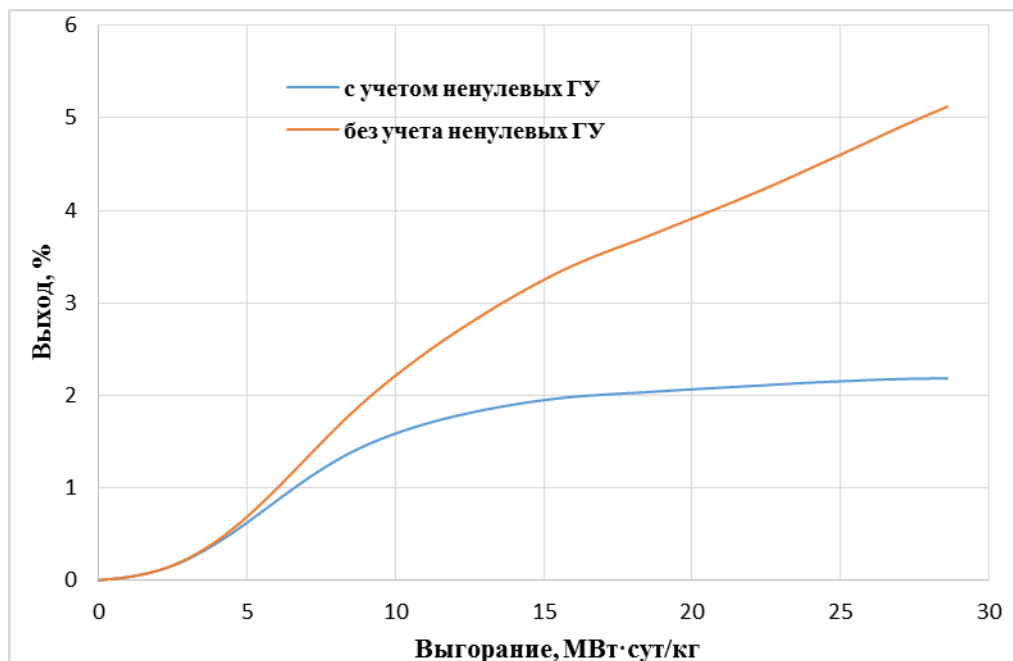


Рисунок 2.6 – Выход цезия-137 в зависимости от граничных условий

Видно, что учет этого эффекта более чем вдвое снижает выход при больших временах. Следует отметить, что подобные кривые для $I-131$ будут отличаться друг от друга незначительно, а для более короткоживущих радионуклидов и вовсе будут совпадать. Т.е., как уже говорилось, эффект важен для долгоживущих радионуклидов.

Одним из граничных условий для выхода радионуклидов под оболочку является температурный порог, а также порог выгорания. В [11, 40] отмечается чрезвычайно низкий выход РН под оболочку твэлов при нормальной работе для малых выгораний (до 10 МВт·сут/кг) топлива. Выход при малом выгорании может стать заметным, лишь если температура топлива превысит некоторое пороговое значение. Причем это значение снижается с ростом выгорания, что видно из таблицы 2.7.

Таблица 2.7 – Зависимость температурного порога от выгорания топлива

| Выгорание, МВт·сут/кг | Температура, °С |
|-----------------------|-----------------|
| 1 | 1850 |
| 5 | 1400 |
| 10 | 1300 |
| 20 | 1180 |
| 30 | 1050 |

В таблице 2.8 приведены результаты расчета выхода $Cs-137$ при учете данного эффекта и без учета.

Таблица 2.8 – Доля выхода $Cs-137$ в зависимости от выгорания с учетом и без учета эффекта температурного порога, %

| Выгорание, МВт·сут/кг | Выход с учетом | Выход без учета |
|-----------------------|----------------------|-----------------|
| 0,04 | $0,3 \cdot 10^{-2}$ | 0,1 |
| 0,08 | $0,6 \cdot 10^{-2}$ | 0,2 |
| 0,4 | $0,15 \cdot 10^{-1}$ | 0,5 |
| 0,8 | $0,3 \cdot 10^{-1}$ | 1,0 |
| 4 | 0,5 | 2,7 |
| 8 | 1,4 | 2,8 |
| 16 | 1,8 | 2,8 |

Видно, что учет обсуждаемого эффекта особенно важен для ТВС с малым выгоранием $1 \div 4$ МВт·сут/кг, где выход оказывается на 1-2 порядка ниже по сравнению с расчетом, где данный эффект не учитывается.

При расчёте долей радионуклидов, вышедших под оболочку при нормальной работе реактора, предшествующей аварии, для некоторых радионуклидов требуется учесть, что кроме прямого пути выхода из топлива под оболочку за счет диффузии имеется еще путь, в котором под оболочку выходит материнский радионуклид, а затем, уже находясь под оболочкой, он за счет распада превращается в дочерний, увеличивая тем самым долю этого радионуклида под оболочкой.

В программе данный эффект учитывается следующим образом:

1) Для каждого радионуклида указывается, является ли он материнским, и какой дочерний радионуклид он порождает.

2) Для материнских радионуклидов подсчитывается накопление дочернего радионуклида под оболочкой за счет его образования из материнского. При этом используется уравнение:

$$\frac{dN_D}{dt} = \lambda_{\text{эм}} N_M - \lambda_{\text{эD}} N_D, \quad (2.15)$$

где N_D – содержание дочернего радионуклида в объеме под оболочкой;

$\lambda_{\text{эD}} = \lambda + \sigma_D \cdot \Phi$ – постоянная ухода из объема дочернего радионуклида за счет распада (λ) и выжигания в нейтронном потоке ($\sigma_D \cdot \Phi$, σ_D – среднее по спектру микросечение поглощения, Φ – интегральный поток нейтронов);

N_M – содержание материнского радионуклида в объеме под оболочкой;

$\lambda_{\text{эм}}$ – постоянная ухода из объема материнского радионуклида, определяется аналогично $\lambda_{\text{эD}}$.

3) Решение указанного уравнения позволяет определить соотношение для расчета накопления дочернего радионуклида под оболочкой за счет его образования из материнского:

$$\rho_{DM} = \frac{N_D}{N_M^0} \cdot \xi, \quad (2.16)$$

где N_M^0 – накопленная к данному моменту в топливе концентрация материнского радионуклида;

$\xi = \frac{N_M^0}{N_D^0}$ – отношение накопленных концентраций материнского и дочернего радионуклидов.

До интеграции блока выходов в программу «CHAIN» при расчетах использовалось упрощённое уравнение для накопления (2.1), в котором каждый радионуклид рассматривался отдельно. Сейчас для определения величины ξ используются результаты расчета накоплений (концентраций) по программе «CHAIN», где учитываются все возможные цепочки образования радионуклидов. Эти результаты могут также вводиться как исходные данные.

4) Результирующая доля вышедших под оболочку ядер определяется суммированием $\rho = \rho_D + \rho_{DM}$ (ρ_D – выход дочернего радионуклида за счет диффузии).

Классический пример необходимости учета обсуждаемого эффекта – образование $Xe-135$ из $I-135$. Расчет показывает, что с его учетом доля выхода $Xe-135$ повышается более чем в 2,5 раза. Другой пример – рассмотрение пары радионуклидов $Ba-140$, $La-140$. $Ba-140$ имеет период полураспада 307 ч и относится к среднелетучим продуктам деления. Т.е. он выходит из топлива несколько хуже, чем 12 основных дозообразующих радионуклидов, рассматриваемых в первую очередь (Kr , Xe , I , Cs). Согласно расчетам по программе выход $Ba-140$ под оболочку в среднем за кампанию находится на уровне $10^{-3}\%$. $La-140$ практически не выходит при рабочих температурах. Однако за счет распада вышедшего $Ba-140$, $La-140$ оказывается под оболочкой. Расчет показывает, что практически весь вышедший $La-140$ образуется из вышедшего $Ba-140$. Здесь необходимо отметить, что $La-140$, благодаря его свойствам, может давать на порядок больший вклад в дозы (при дальнейших расчетах радиационной обстановки) по сравнению с $Ba-140$, а дозовые коэффициенты для $La-140$ превышают соответствующие коэффициенты для $Cs-137$, который часто является основным дозообразующим радионуклидом. Т.е. расчет выхода $La-140$ представляет интерес, в особенности при авариях.

2.2.6 Аналитическое решение уравнения диффузии в r -геометрии

Необходимо отметить, что аналитическое решение уравнения (2.1) возможно только при ряде упрощений, одно из которых – постоянство коэффициента диффузии. В модели и программе учитывается, что коэффициент диффузии меняется по радиусу, т.к. изменяется температурный профиль таблетки.

За основу решения берется выражение из [96] для потока, создаваемого источником мощностью Q в бесконечно длинном цилиндре радиусом R , в котором источник имеет форму цилиндрического слоя радиусом r' концентрически вложенном в цилиндр радиуса R (рисунок 2.7).

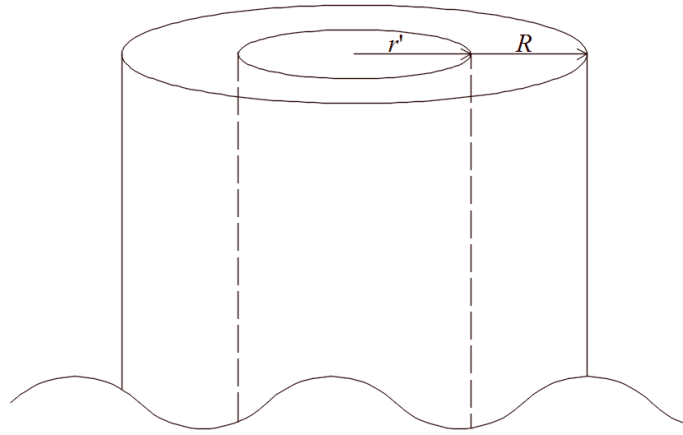


Рисунок 2.7 – Иллюстрация цилиндрического источника

$$\Phi(r) = \frac{Q}{2\pi D} \frac{I_0\left(\frac{r}{L}\right)}{I_0\left(\frac{R}{L}\right)} \left[I_0\left(\frac{R}{L}\right) K_0\left(\frac{r'}{L}\right) - K_0\left(\frac{R}{L}\right) I_0\left(\frac{r'}{L}\right) \right], r < r' \text{ — далее обозначим как } \Psi_2.$$

$$\Phi(r) = \frac{Q}{2\pi D} \frac{I_0\left(\frac{r'}{L}\right)}{I_0\left(\frac{R}{L}\right)} \left[I_0\left(\frac{R}{L}\right) K_0\left(\frac{r}{L}\right) - K_0\left(\frac{R}{L}\right) I_0\left(\frac{r}{L}\right) \right], r > r' \text{ — далее обозначим как } \Psi_1.$$

При этом

$$Q = 2\pi r' dr' \cdot q = s' \cdot q,$$

где q – плотность скорости генерации РН (частиц/(см²·с));

s' – площадь тонкого слоя вблизи радиуса r' .

Выражение для $\Phi(r)$ представляет собой так называемую функцию Грина для рассматриваемой геометрии (цилиндр), внутри него цилиндрический источник, на границе радиуса R – нулевые граничные условия $\Phi(r=R)=0$.

Для источника произвольным образом распределенного по радиусу цилиндра (в том числе и с равномерной плотностью q) полный поток может быть определен из соотношения (по определению функции Грина):

$$\begin{aligned} \Phi(r) &= \int_0^R \Psi(r-r') q \cdot 2\pi r' dr' = \int_0^r \Psi_1(r'-r) \cdot 2\pi r' dr' + \int_0^R \Psi_2(r'-r) \cdot 2\pi r' dr' \\ &= \Psi_1^{инт} + \Psi_2^{инт} \end{aligned}$$

Здесь $\Psi_1(r'-r)$ – поток, формируемый в точке r от источников левее точки r ($r > r'$),

$\Psi_2(r'-r)$ – поток, формируемый в точке r от источников правее точки r ($r < r'$).

В упрощенном случае для стационарного состояния имеем уравнение диффузии РН:

$$D\Delta\Phi - \Sigma_{\text{эф}}\Phi + q = 0$$

$$\Sigma_{\text{эф}} = \lambda_{\text{эф}} + \Sigma$$

$$L^2 = \frac{D}{\Sigma_{\text{эф}}} = \frac{D}{\lambda_{\text{эф}} + \Sigma} \text{ – квадрат длины диффузии.}$$

Вычислим интеграл $\Phi(r)$, учитывая, что:

$$\int x I_0 dx = x I_1(x),$$

$$\int x K_0 dx = -x K_1(x).$$

Тогда получим:

$$\Phi(r) = \Psi_1^{\text{унм}}(r) + \Psi_2^{\text{унм}}(r),$$

где

$$\begin{aligned} \Psi_1^{\text{унм}}(r) &= \frac{q}{D \cdot I_0\left(\frac{R}{L}\right)} \left[I_0\left(\frac{R}{L}\right) K_0\left(\frac{r}{L}\right) - K_0\left(\frac{R}{L}\right) I_0\left(\frac{r}{L}\right) \right] \cdot L^2 \int_0^r I_0\left(\frac{r'}{L}\right) \cdot \frac{r'}{L} d\frac{r'}{L} \\ &= XX \cdot L^2 \cdot \frac{r}{L} \cdot I_1\left(\frac{r}{L}\right). \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \Psi_2^{\text{унм}}(r) &= \frac{q}{D} \frac{I_0\left(\frac{r}{L}\right)}{I_0\left(\frac{R}{L}\right)} \left[I_0\left(\frac{R}{L}\right) \int_r^R K_0\left(\frac{r'}{L}\right) r' dr' - K_0\left(\frac{R}{L}\right) \int_r^R I_0\left(\frac{r'}{L}\right) r' dr' \right] \\ &= YY \cdot L^2 \cdot \left\{ I_0\left(\frac{R}{L}\right) \left[\frac{r}{L} K_1\left(\frac{r}{L}\right) - \frac{R}{L} K_1\left(\frac{R}{L}\right) \right] - K_0\left(\frac{R}{L}\right) \left[\frac{R}{L} I_1\left(\frac{R}{L}\right) - \frac{r}{L} I_1\left(\frac{r}{L}\right) \right] \right\}. \end{aligned}$$

Для цезия-137 в относительных единицах на рисунке 2.8 приведен вид аналитического выражения выхода данного радионуклида в случае радиального распределения. Видно, что зависимость практически аналогична рисунку 2.4, который получен с использованием программы.

Ниже приведено сравнение аналитического решения с расчетом при соответствующих параметрах:

- высота образца 10 см,
- радиус образца 0,5 см,
- скорость наработки 10^9 ядер/с,
- $T_{1/2}=10^5$ с,
- коэффициент диффузии 10^{-9} см²/с

Получены следующие результаты.

Распределение по радиусу на середине высоты на конец кампании (10^6 с) представлено на рисунке 2.8.

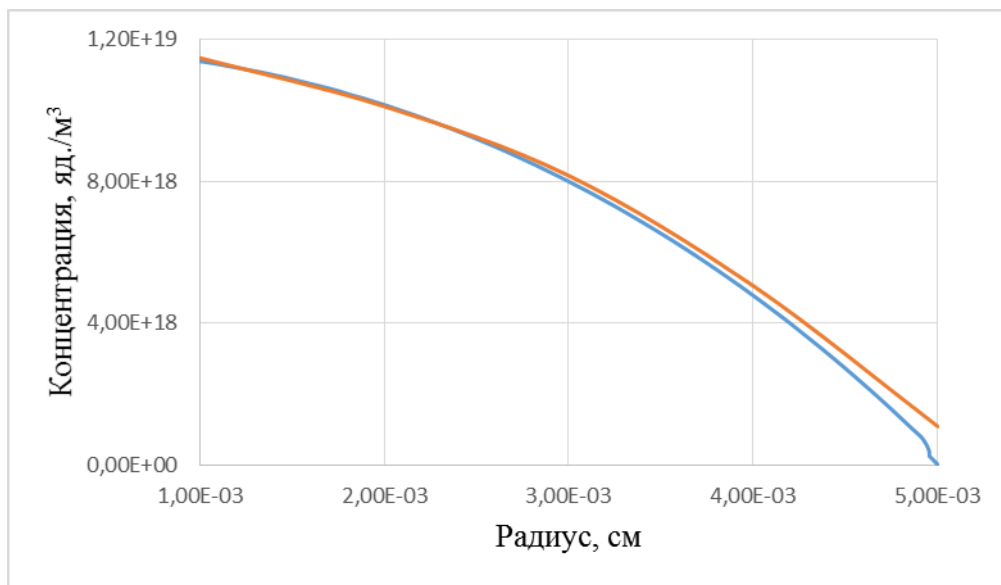


Рисунок 2.8 – Сравнение расчета и аналитического решения:

— - расчет по программе, — - аналитическое решение.

Вид кривой на рисунке 2.8 объясняется тем, что выход РН будет идти через пористость внутри таблетки, вклад утечки через геометрические поверхности (спад у края) в полный выход мал.

2.2.7 Влияние центрального отверстия в топливной таблетке на выход РН

Представляет интерес анализ зависимости выхода РН от размера центрального отверстия в рамках рассматриваемой модели. С этой целью были выполнены следующие расчёты.

Рассматривалась ТВС РБМК с характерной зависимостью мощности от выгорания, показанной на рисунке 2.9. Типичная зависимость мощности ТВС от выгорания для топлива с обогащением 2,8%+0,6% *Er*, полученная обработкой фактических распределений.

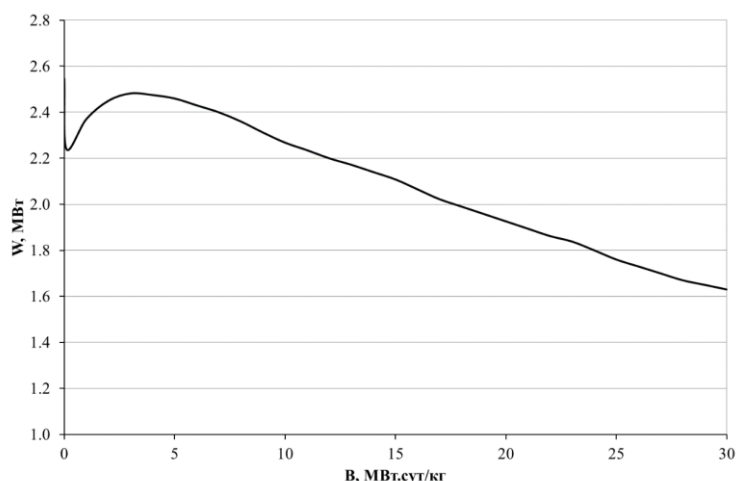


Рисунок 2.9 – Зависимость мощности ТВС (W) от выгорания (B)

Варьировался радиус центрального отверстия в таблетке, и определялись величины выхода для трех РН: $Kr-88$ ($T_{1/2}=2,84$ часа), $I-131$ ($T_{1/2}=192,96$ часа), $Cs-137$ ($T_{1/2}=2,64 \cdot 10^5$ часа), представляющих собой РН с различными периодами полураспада и дающих основной вклад в дозы облучения при авариях.

Результаты расчетов приведены в таблице 2.9.

Таблица 2.9 – Результаты расчетов выхода в зависимости от величины центрального отверстия

| Радиус отверстия, мм | РН | Средний за кампанию выход, отн. ед. | Выход на конец кампании, отн. ед. | Максимальная температура топлива на начало и конец кампании, °C |
|----------------------|----------|-------------------------------------|-----------------------------------|---|
| 0 | $Kr-88$ | $0,201 \cdot 10^{-4}$ | $0,121 \cdot 10^{-4}$ | начало 1099 конец 772 $\Delta T=327$ |
| | $I-131$ | $0,129 \cdot 10^{-2}$ | $0,797 \cdot 10^{-3}$ | |
| | $Cs-137$ | $0,173 \cdot 10^{-1}$ | $0,209 \cdot 10^{-1}$ | |
| 1 | $Kr-88$ | $0,137 \cdot 10^{-4}$ | $0,110 \cdot 10^{-4}$ | начало 1036 конец 735 $\Delta T=301$ |
| | $I-131$ | $0,894 \cdot 10^{-3}$ | $0,723 \cdot 10^{-3}$ | |
| | $Cs-137$ | $0,152 \cdot 10^{-1}$ | $0,202 \cdot 10^{-1}$ | |
| 2 | $Kr-88$ | $0,832 \cdot 10^{-5}$ | $0,941 \cdot 10^{-5}$ | начало 926 конец 673 $\Delta T=253$ |
| | $I-131$ | $0,549 \cdot 10^{-3}$ | $0,623 \cdot 10^{-3}$ | |
| | $Cs-137$ | $0,115 \cdot 10^{-1}$ | $0,186 \cdot 10^{-1}$ | |
| 3 | $Kr-88$ | $0,657 \cdot 10^{-5}$ | $0,879 \cdot 10^{-5}$ | начало 813 конец 608 $\Delta T=205$ |
| | $I-131$ | $0,434 \cdot 10^{-3}$ | $0,582 \cdot 10^{-3}$ | |
| | $Cs-137$ | $0,959 \cdot 10^{-2}$ | $0,176 \cdot 10^{-1}$ | |
| 4 | $Kr-88$ | $0,689 \cdot 10^{-5}$ | $0,976 \cdot 10^{-5}$ | начало 707 конец 547 $\Delta T=160$ |
| | $I-131$ | $0,454 \cdot 10^{-3}$ | $0,645 \cdot 10^{-3}$ | |
| | $Cs-137$ | $0,978 \cdot 10^{-2}$ | $0,182 \cdot 10^{-1}$ | |

Для упрощения расчеты проведены для плоского аксиального распределения. Приведены выходы РН в среднем за кампанию (выгорание топлива от 0 до 30 МВт·сут/кг) и выходы на конец кампании. В последней колонке таблицы 2.9 приведены максимальные температуры топлива на начало и конец кампании, а также ΔT – разность этих величин.

Видно, что с ростом размера центрального отверстия довольно значительно снижается средний за кампанию выход. Однако при размерах более 3 мм выход начинает расти. Снижение наиболее заметно для короткоживущих РН, достигая 70% для криптона и йода, и несколько меньше для цезия (порядка 45%). Эти проценты получены по отношению к варианту без отверстия. Однако аналогичное снижение на конец кампании, как видно, существенно меньше. По мере роста размера отверстия снижается максимальная температура топлива. Однако снижается и величина изменения этой температуры по кампании с 323 °С для варианта без отверстия до 160 °С при радиусе отверстия 4 мм.

Центральное отверстие в таблетке предусмотрено, в том числе для снижения выхода РН, так как отсутствует часть, где температура максимальна, хотя при этом появляется дополнительная поверхность, через которую могут выходить РН. Таким образом, рассматриваемая модель показывает снижение выхода за счет наличия центрального отверстия в таблетке. Основная доля снижения приходится на увеличение радиуса отверстия от 0 до 2 мм. При дальнейшем росте радиуса отверстия снижение замедляется и переходит в рост. Величина снижения выхода для ТВС на конец кампании находится на уровне 30% по отношению к выходу в варианте без отверстия. На начальных этапах кампании величина снижения может быть большой, учитывая, что определенный в среднем за кампанию выход снижается на величину до 70%.

2.3 Выбор коэффициента диффузии для задачи аварийного разогрева топлива

Рассмотрим роль каждой составляющей в выражении для коэффициента диффузии.

Представим D в виде суммы трех слагаемых, выражение (2.17):

$$\begin{aligned}
 D &= D_1 + D_2 + D_3 \\
 D_1 &= A \cdot e^{-B/T} \quad A = 7.5 \cdot 10^{-11} \quad B = 35000 \\
 D_2 &= 1.41 \cdot 10^{-25} \sqrt{n} \cdot e^{-13800/T} \\
 D_3 &= 2 \cdot 10^{-40} \cdot n
 \end{aligned} \tag{2.17}$$

В таблице 2.10 составляющие D_1 , D_2 , D_3 представлены в зависимости от температуры для таблетки диоксида урана с плотностью делений $4,6 \cdot 10^{18}$ дел/(м³·с) – характерной для РБМК. (Температура принималась однородной по таблетке, 740°C – это средняя температура на номинальной мощности при нормальных условиях теплоотдачи).

Таблица 2.10 – Зависимость от температуры составляющих коэффициента диффузии

| № | $T, \text{ }^\circ\text{C}$ | $D_1, \text{ м}^2/\text{с}$ | $D_2, \text{ м}^2/\text{с}$ | $D_3, \text{ м}^2/\text{с}$ |
|---|-----------------------------|-----------------------------|-----------------------------|-----------------------------|
| 1 | 740 | $0,143 \cdot 10^{-23}$ | $0,37 \cdot 10^{-21}$ | $0,92 \cdot 10^{-21}$ |
| 2 | 1040 | $0,195 \cdot 10^{-20}$ | $0,82 \cdot 10^{-20}$ | $0,92 \cdot 10^{-21}$ |
| 3 | 1240 | $0,48 \cdot 10^{-19}$ | $0,33 \cdot 10^{-19}$ | $0,92 \cdot 10^{-21}$ |
| 4 | 1440 | $0,58 \cdot 10^{-18}$ | $0,95 \cdot 10^{-19}$ | $0,92 \cdot 10^{-21}$ |

Из приведенных данных видно, что составляющая D_1 начинает играть определяющую роль при заметном повышении температуры.

Необходимо отметить, что в случае разогрева топлива в заглушенном реакторе ($n = 0$) будет работать только составляющая D_1 .

Для оценки достоверности ее величины рассматривался и сравнивался с экспериментальным выходом цезия-137 из облученного топлива при нагреве. Экспериментальные данные приведены в [70].

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 – 200 мин.

Расчеты представляли собой несколько упрощенное моделирование экспериментов по нагреву. Рассматривался нагрев топливной таблетки с размерами таблетки РБМК. Предполагалось, что температура мгновенно вырастает до заданного уровня, затем идет выдержка при данной температуре 180 мин. Расчет проводился с шагом в 1 мин.

Экспериментально полученные зависимости выхода от температуры приведены на рисунке 2.10 [70].

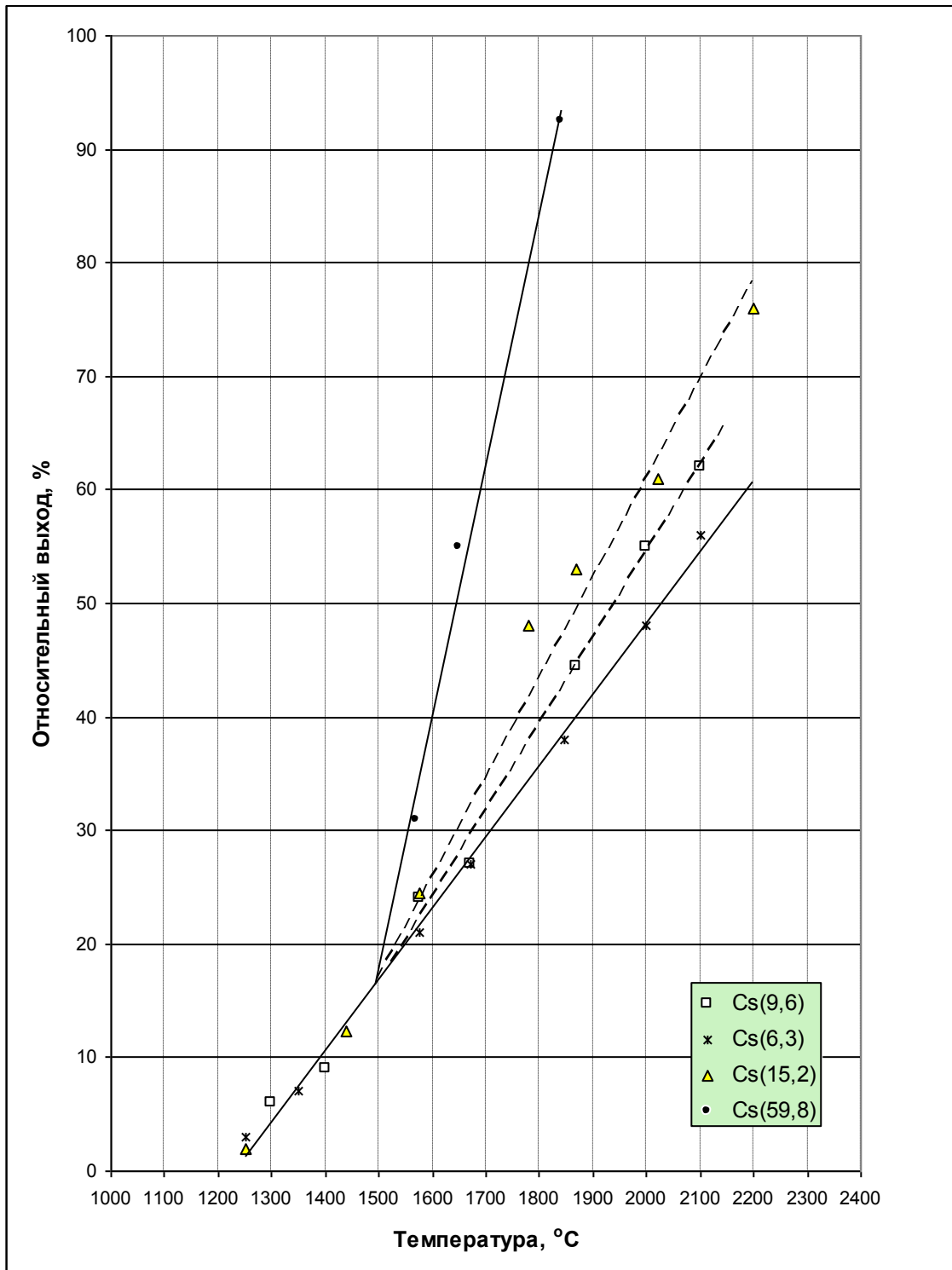


Рисунок 2.10 – Суммарный выход ^{137}Cs из образцов UO_2 при их нагревании и последующем поддержании изотермического режима

Виден быстрый рост выхода при возрастании температуры, а также и некоторая зависимость выхода от выгорания топлива, которая заметно проявляется при нагреве до температуры более 1500°C . Особенно существенное возрастание характерно для большого выгорания ($59,8 \text{ МВт}\cdot\text{сут/кг}$).

В таблице 2.11 сравниваются экспериментальные и расчетные данные по выходу цезия-137. Расчеты проведены как с исходными параметрами A и B в выражении (2.17) для D_1 , так и с скорректированными.

Таблица 2.11 – Выход ^{137}Cs при нагреве топлива (% от накопленного)

| № | Температура, °C | Эксперимент | Расчет | |
|---|-----------------|-------------|---|--|
| | | | Исходные параметры A и B в ф.(2.17) | Скорректированные параметры A и B в ф.(2.17) |
| 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 (2.17) 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 просто проверяется за пределами интервала, на котором корректировка проводилась.

Корректировка заключалась в следующем:

1) На основании данных из [4, 10, 35-37, 66, 70, 71, 73], где также приведен обзор экспериментов по выходу РН из диоксида урана при нагреве, и рассмотрены, в том числе эмпирические модели 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 . Как отмечалось в разделе выше, $A=7,5 \cdot 10^{-11}$ 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 [40].

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

$$A(T) = A(1400) \cdot \chi(T), \quad (2.18)$$

где множитель $\chi(T)$ подобран так, чтобы получить согласие с экспериментами, результаты которых представлены в таблице 2.11. Его величина приводится ниже в таблице 2.12.

Таблица 2.12 – Величина поправочного множителя $\chi(T)$ в функции температуры

| | | | | |
|-----------------|------|------|------|------|
| Температура, °С | 1400 | 1600 | 1800 | 2000 |
| $\chi(T)$ | 1,0 | 0,3 | 0,15 | 0,07 |

При температурах выше 2000°С используется $\chi(T) = \chi(2000^\circ\text{C})$.

Остановимся кратко на расчетной эмпирической модели, обсуждаемой в [71]. В ней предлагается описывать скорость выхода РН из образцов нагреваемого топлива простым соотношением:

$$\frac{dm}{dt} = -fm, \quad (2.19)$$

где m – масса РН, оставшаяся в топливе.

$$f = k \cdot e^{-\frac{Q}{RT}}, \quad (2.20)$$

где k – постоянная, 1/с, изменяющаяся от одной группы РН к другой. В первую группу входят изотопы криптона, ксенона, йода и цезия. В следующие группы объединяются слаболетучие продукты деления;

Q – энергия активации, Дж/моль;

R – универсальная газовая постоянная, Дж/(моль·К);

T – абсолютная температура, К.

Формула (2.20) используется для температур менее 1700°C. При бóльших температурах предлагается использовать специальные таблицы для f , полученные на основе экспериментальных данных. Переход на табличные данные, как можно понять, связан с отклонением от экспоненциальной зависимости типа (2.20) при повышении температуры до уровня более 1700°C.

Модели (2.19), являющейся, как можно сказать, точечным приближением, в нашем случае соответствует модель, получаемая из уравнения (2.1) при удалении из него градиента ($q = 0$ в рассматриваемой задаче, так как нет генерации РН при делении).

Тогда f из (2.20) равняется Σ из (2.1).

Для k первой группы (летучих РН) в [71] дается величина $3,3 \cdot 10^3 \text{ с}^{-1}$, что в пересчете дает для нашего параметра $A = 5,5 \cdot 10^{-8} \text{ м}^2/\text{с}$, что достаточно близко к выбранной величине ($3 \cdot 10^{-8} \text{ м}^2/\text{с}$).

Величина Σ связана с коэффициентом диффузии соотношением (2.5). Отсюда могут быть получены параметры A и B в формулах (2.2), (2.17), которые и оказываются существенно отличны от исходных.

Особенности выхода РН при плавлении топлива в условиях аварии:

Для расчета выхода РН в условиях аварийного нагрева топлива задается момент кампании, в который происходит авария. Программа выполняет операции, описанные в разделе 2.2. Уменьшается временной шаг расчета. Далее выход рассчитывается так же, как и при нормальной работе с использованием уравнения (2.1). Если температура топлива превышает температуру плавления диоксида урана, то приближенную оценку выхода в данной расчетной модели можно получить, задав равной нулю долю открытой пористости в уравнении (2.5). Т.е. изменение геометрии при расплавлении диоксида консервативно не учитывается.

В таблице 2.13 приведены результаты расчетов выхода Cs-137 при температуре 2800 °C для двух вариантов: 1 - диоксид урана в твердом состоянии; 2 - диоксид урана в жидком состоянии (расплав), доля открытой пористости равна 0.

Таблица 2.13 – Выход Cs-137 для вариантов твердого и расплавленного диоксида урана

| Время с начала аварии, час | Выход, % от накопленного | |
|-------------------------------|--------------------------|---------|
| | Твердое топливо | Расплав |
| 1 | 20 | 0,1 |
| 1,5 | 98 | 0,6 |
| 3 | 100 | 1,2 |
| 15 | 100 | 3,7 |

Предполагалось, что в момент аварии температура диоксида скачкообразно повышается до 2800 °С и поддерживается на этом уровне.

Видно, что для варианта с расплавленным диоксидом скорость выхода снижается примерно на два порядка. Т.е. в этом варианте работает только выход через внешние геометрические поверхности.

В варианте с расплавленным диоксидом вероятно возможны другие механизмы выхода помимо механизма диффузии, используемого в программе. Однако для оценок можно принять к сведению, что после расплавления скорость выхода РН существенно снизится, но сам выход не прекратится. Для его прекращения требуется, в том числе снижение температуры топлива.

При выборе приоритетов исследования основное внимание уделялось задаче выходов РН при повышении температуры. Моделирование выхода РН из расплава топлива является смежной задачей, которая детально не рассматривалась.

Выводы по главе 2:

Целью данной диссертационной работы стала модернизация уже существующей программы «CHAIN», которая была дополнена блоком расчета выходов «RR». Было предложено распространить одну математическую модель на оба режима работы АЭС: нормальную эксплуатацию и аварии. В основу расчетной модели легло рассмотрение уравнения диффузии в топливном фрагменте вместо топливного зерна. Вместо рассмотрения зерен и пузырьков газа в общем случае в уравнение диффузии добавляется слагаемое, отвечающее за миграцию РН внутри топливного фрагмента. Для возможности использования одной математической модели и для аварийных процессов эмпирические

коэффициенты, входящие в уравнение диффузии, были подобраны по результатам анализа различных экспериментов, основными экспериментами стали эксперименты ФЭИ.

ГЛАВА 3. ВЕРИФИКАЦИЯ ПОЛУЧЕННОЙ РАСЧЕТНОЙ МОДЕЛИ

Расчетная модель для твэлов типа РБМК структурирована таким образом, чтобы учитывать существенную зависимость выхода РН из диоксида урана от температуры топливных таблеток:

1. Твэл верхнего или нижнего пучка длиной около 3,5 м подразделяется в аксиальном направлении на ряд зон, для каждой из которых задается относительное энерговыделение. Это позволяет учесть аксиальную неравномерность температуры топлива.
2. Задается зависимость мощности ТВС от выгорания. Это позволяет учесть неравномерность температуры топлива по кампании твэла.
3. В каждой временной точке по кампании, на каждом аксиальном участке твэла с помощью температурного блока рассчитывается распределение температуры по радиусу топливной таблетки.

Типичное аксиальное распределение энерговыделения, распределение температуры по радиусу таблетки показаны на рисунках 3.1, 3.2.

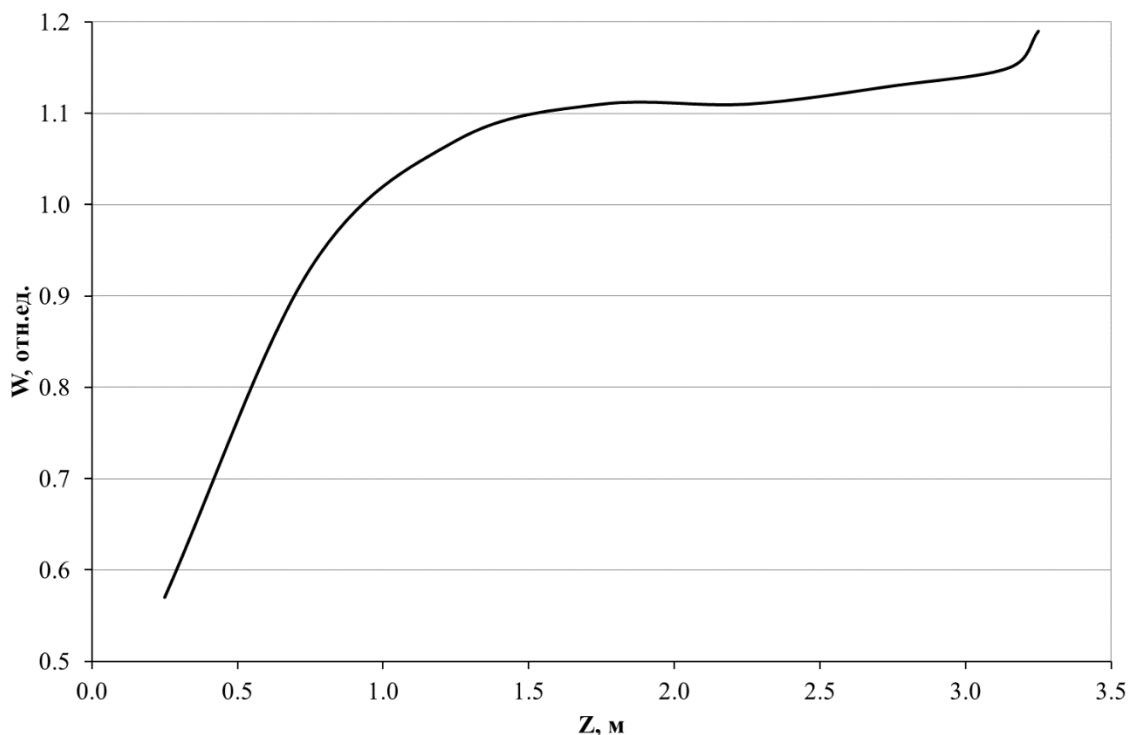


Рисунок 3.1 – Относительное аксиальное распределение энерговыделения по твэлу верхнего пучка

На рисунке 3.1 показано возрастание энерговыделения в правой части – всплеск в месте разрыва по топливу (верхний и нижний пучки твэлов в РБМК разделены водяным зазором высотой около 3 см). За счет этого возрастания в зоне топлива, примыкающей к разрыву, температура будет повышена, что приведет к некоторому повышению выхода РН.

Согласно расчету для ^{131}I это повышение в максимуме может составить 0,02% (на фоне ~0,1% выхода, см. ниже рисунок 3.4). Т.е. эффект влияния всплеска в целом незначителен, так как невелик размер зоны всплеска.

Необходимо заметить, что учет аксиальной зависимости энерговыделения, изображенной на рисунке 3.1, напротив, существенно влияет на величину выхода, повышая его в разы по отношению к варианту однородного аксиального распределения.

На рисунке 3.2 показаны получаемые распределения температуры по радиусу таблетки для начала и конца кампании ТВС (соответствуют выгоранию 0 и 30 МВт·сут/кг).

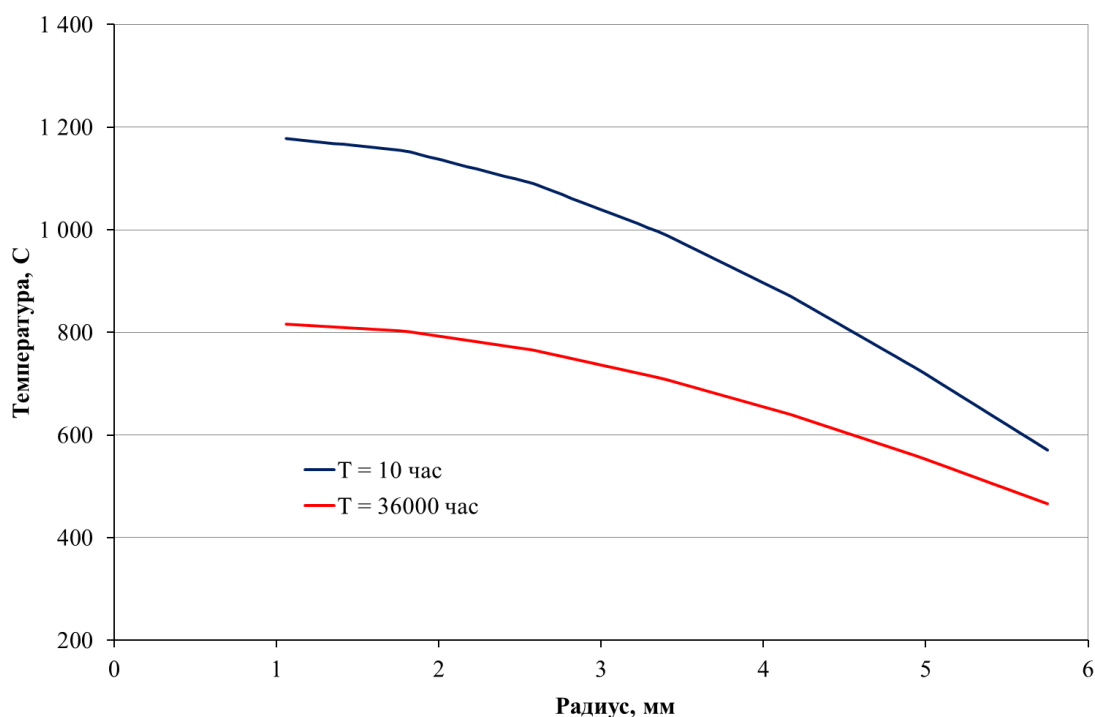


Рисунок 3.2 – Радиальное распределение температуры в топливной таблетке РБМК для начала и конца кампании ТВС

Распределения получены для аксиальной зоны с максимальной линейной нагрузкой без учета упомянутого выше всплеска, но с учетом радиальной неравномерности по ТВС, из-за наличия которой энерговыделение в наружном твэле повышается примерно на 6% по отношению к среднему по всему пучку.

Определенные для каждой аксиальной зоны активности вышедших из диоксида урана РН суммируются, и, затем, определяется отношение данной суммы к сумме находящихся внутри диоксида и вне его РН.

Можно заметить, что описанная модификация расчетной модели применима и для других реакторов с подобной конструкцией твэлов, например ВВЭР.

На рисунках 3.3 и 3.4 приведены расчетные величины выхода под оболочку для ^{137}Cs и ^{131}I соответственно. Спад кривой йода после прохождения максимума объясняется снижением температуры топлива по кампании из-за снижения мощности ТВС, а также его распадом.

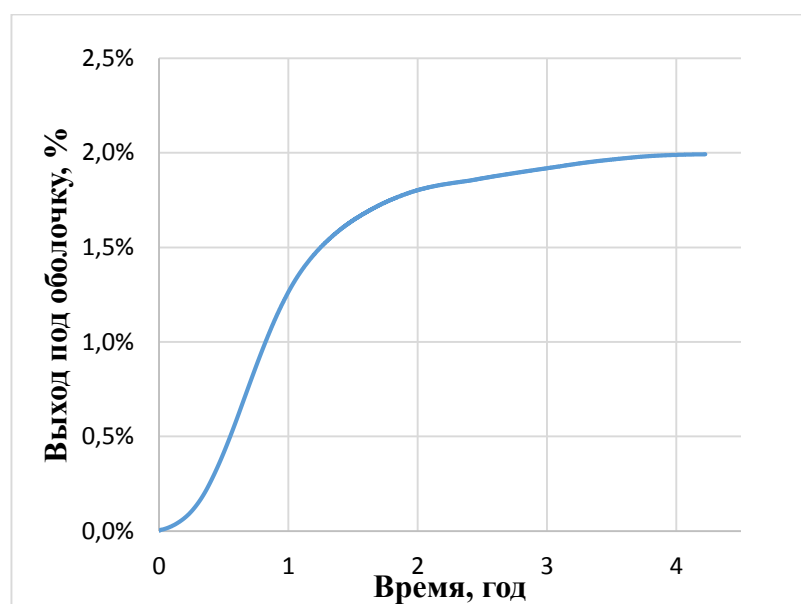


Рисунок 3.3 – Расчетные величины выхода под оболочку ^{137}Cs

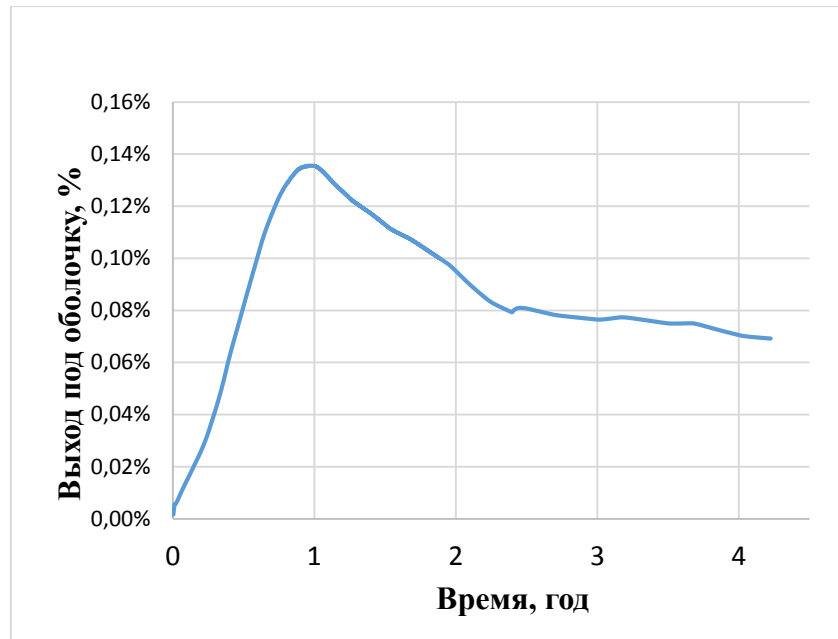


Рисунок 3.4 – Расчетные величины выхода под оболочку ^{131}I

3.1 Выход летучих продуктов деления из топлива

3.1.1 Аварийный нагрев топлива

Описанная в разделе 2.3 корректировка параметров в соотношении для коэффициента диффузии является математической подгонкой по данным одной из серий экспериментов. Полученная после корректировки расчетная модель проверяется на данных других, независимых экспериментов.

В таблице 3.1 дана краткая характеристика экспериментов VI, описанных подробнее в [33, 72].

В таблице 3.2 приведены экспериментально полученные выходы для йода и цезия и соответствующие расчетные значения.

Во всех экспериментах скорость нагрева принималась 1 К/с. В расчетах рассматривался не суммарный выход всех изотопов элемента, а выход только ^{131}I и ^{137}Cs . Расчет проводился с временным шагом в 1 минуту.

Таблица 3.1 – Краткая характеристика экспериментов по измерению выхода РН при нагреве фрагментов топлива

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

Таблица 3.2 – 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 3.2, видно, что максимальное отклонение расчета от эксперимента 46,3%, что является приемлемой величиной погрешности для таких расчетов.

Необходимо заметить, что коэффициент диффузии, даваемый выражением с одинаковыми параметрами (2.2) предлагается использовать (и так он и используется в модели) для всех изотопов йода или цезия, а также для всех инертных радиоактивных газов.

Поскольку в расчетах рассматривался только ^{131}I и ^{137}Cs , то модель обязана давать примерно одинаковые значения выходов для йода и цезия. Это и имеет место в некоторых экспериментах (например, 3 и 4 в таблице 3.2). Небольшая разница возникает лишь из-за различия в периодах полураспада. Если в качестве йода будет выступать смесь изотопов, то отличие выхода йода от выхода цезия

может быть более заметным. Это иллюстрируется в таблице 3.3, где даны расчётные выходы для пяти изотопов йода для 3-го эксперимента.

Таблица 3.3 – Выходы для различных изотопов йода (%) от исходного содержания

| № | Изотоп | $T_{1/2}$, час | Выход |
|---|-----------|-----------------|-------|
| 1 | ^{131}I | 192,96 | 78,7 |
| 2 | ^{132}I | 2,3 | 62,5 |
| 3 | ^{133}I | 20,8 | 76,9 |
| 4 | ^{134}I | 0,877 | 43,0 |
| 5 | ^{135}I | 6,61 | 72,7 |

Из данных таблицы 3.3 следует, что выходы для различных изотопов йода варьируются в зависимости от периода полураспада от 78,7% для ^{131}I до 43% для ^{134}I . Т.е. средний выход по изотопам йода будет меньше его значения для ^{131}I . Учет данного обстоятельства может улучшить согласие с экспериментальными данными в части отличия выходов йода и цезия, наблюдаемого в экспериментах, но практически не получаемого в расчетах.

Что касается изотопов цезия (^{134}Cs и ^{137}Cs), то из-за больших периодов полураспада выход для обоих изотопов цезия будет практически одинаков.

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.

Изотопы йода имеют короткие периоды полураспада (от 52 минут для ^{134}I до 8 дней для ^{131}I), следовательно краткосрочные радиологические эффекты будут значительны в первые несколько дней после аварии, но через 1 месяц вкладом йода в радиационную обстановку можно будет пренебречь. Также на изотопы йода приходится ~15% остаточного энерговыделения активной зоны через 1 сутки после аварийного останова.

У изотопов цезия, наоборот, длительные периоды полураспада (30 лет для ^{137}Cs), вследствие этого радиологические эффекты растягиваются в долгосрочной перспективе на несколько десятилетий (например, после аварии на ЧАЭС радиационное загрязнение спустя годы определялось в основном цезием).

3.1.1.1 Расчет выходов ГПД для упрощенных тестов *FUMEX* [73]

В [73] моделируется поведение твэлов в экспериментах на реакторе *Halden* в рамках специальной программы *FUMEX*. Одной из важных задач в данной программе являлось получение выхода из топлива газообразных продуктов деления. Помимо расчетов для сравнения с результатами экспериментов в [73] предлагается также несколько упрощенных тестов (*Case-1*, *Case-2*), которые рассчитывались с помощью нескольких (порядка десяти) программ, моделирующих поведение твэлов различными участниками *FUMEX* из разных стран.

Данные тесты (*Case-1*, *Case-2*) для верификации моделировались с помощью программы *CHAIN*.

Тест 1 – расчет выхода ГПД при работе твэла с постоянной линейной нагрузкой 200 Вт/см до выгорания 50 МВт·сут/кг.

Тест 2 – расчета выхода ГПД при работе твэла с линейной нагрузкой 200 Вт/см до выгорания 30 МВт·сут/кг, затем подъем линейной нагрузки до 400 Вт/см и также работа до 50 МВт·сут/кг.

В тесте 1 большинство программ дали выход ГПД менее 3%, причем многие из них даже менее 1% (на момент окончания кампании). Температура центра топливной таблетки для конца кампании составила $980,4\text{ }^{\circ}\text{C} \pm 110,5\text{ }^{\circ}\text{C}$ (приводятся средние по всем расчётам значения и величины их отклонений). Расчет по программе *CHAIN* демонстрирует выход 1,2% и температуру $950\text{ }^{\circ}\text{C}$, т.е. получено хорошее согласие с данным тестом.

В таблице 3.4 Приведены результаты, полученные в тесте 2 участниками *FUMEX*, а также отдельными столбцами обозначены результаты, полученные по программе *CHAIN*. Температура центра топливной таблетки изменялась в разные моменты кампании.

Таблица 3.4 – Результаты, полученные в тесте 2 FUMEX

| Момент теста | Выгорание, МВт·сут/кг | Температура центра таблетки [73], °С | Температура центра таблетки расчетная, °С | Выход ГПД [73], % | Выход ГПД расчетный, % |
|---|-----------------------|--------------------------------------|---|-------------------|------------------------|
| Начало кампании, до скачка линейной нагрузки | 30 | 911±78 | 930 | 1 | 1.2 |
| После скачка линейной нагрузки с 200 до 400 Вт/см | 30 | 1620±73 | 1638 | 20 | 19 |
| Конец кампании | 50 | 1845±193 | 1987 | 35±8 | 35 |

Характеристики рассчитываемого в тестах твэла следующие [73]:

| | |
|--|----------------------|
| Внутренний диаметр таблетки | 0,00 мм |
| Внешний диаметр таблетки | 10,67 мм |
| Внутренний диаметр оболочки | 10,90 мм |
| Внешний диаметр оболочки | 12,78 мм |
| Таблетка без выемок на торцах, объем для сбора ГПД | 2,5 см ³ |
| Длина топливного сегмента, | 20 см |
| Плотность топлива | 95% от теоретической |
| Размер зерна диоксида урана | 15 мкм |
| Шероховатость поверхности топлива | 3 мкм |
| Шероховатость поверхности оболочки | 1 мкм |
| Обогащение по урану-235 | 10% |
| Заполняющий газ | He |
| Давление газа при 20 °С | 5 бар, |

Как можно понять из материалов [73] под выходом ГПД понимается выход стабильных ГПД или ГПД с большим периодом полураспада. В расчетах по программе *CHAIN* этот выход моделировался как выход цезия-137 (в программе его расчет эквивалентен расчету выхода долгоживущих ГПД). Из таблицы 3.4 видно, что полученное согласие является вполне удовлетворительным.

При сравнении с данными тестами теплофизический блок программы, описанный в разделе 2.2.2, дорабатывался, т.к. исходно все соотношения для расчета теплофизических зависимостей использовались для твэлов РБМК (либо ВВЭР в зависимости от проводимых тестов), а именно:

- теплопроводность диоксида урана от температуры и выгорания;
- теплопроводность циркония от температуры;
- величины зазора топливо-оболочка от выгорания и линейная нагрузка;
- состав газа (теплопроводность) в зазоре от выгорания.

При расчете теста 2 в алгоритм пересчета состава газа под оболочкой вводится дополнение, которое реализует положительную обратную связь, обеспечивающую рост теплового сопротивления зазора при повышении выхода ГПД из-за роста линейной нагрузки. Выходящие в пространство зазора изотопы криптона и ксенона существенно снижают теплопроводность газа в зазоре, что вызывает рост температуры и дальнейший рост выхода ГПД. Т.е. в главной программе идет расчет выхода ГПД под оболочку, далее этот выход передается в теплофизический блок, и температуры (за счет изменения теплопроводности) рассчитываются в зависимости от состава газа под оболочкой.

При игнорировании этого эффекта обратной связи выход ГПД для этого теста в расчете снижается с 35 до 19%, а конечная температура снижается с 1987 °C до 1749 °C. Т.е. результаты также приемлемы, но заметно хуже согласуются с данными других расчетов.

3.1.2 Нормальная работа реактора

Для расчета выхода под оболочку герметичных твэлов модель дополнена следующими предположениями. Коэффициент диффузии задается выражением:

$$D = (A \cdot \exp(-B/T) + C \sqrt{n} \cdot \exp(-13800/T) + D_0 \cdot n) \cdot C_1 \cdot C_2, \quad (3.1)$$

где $A=7,5 \cdot 10^{-10}$ м²/с; $B=32000$ К; $C=1,41 \cdot 10^{-25}$; $D_0=2 \cdot 10^{-40}$ м⁵;

C_1 – функция выгорания и температуры, равная $C_1=1+a \cdot B \cdot x$, $a=4$ кг/МВт·сут.
Если $C_1 > 40$ берется $C_1=40$;

B – глубина выгорания (МВт·сут/кг);

$x=1$, если $T \geq T_L$, и $x=(T/T_L)^4$, если $T < T_L$;

$T_L=Z/\ln(200B)$, $Z=9800$;

C_2 – поправка на ненулевые граничные условия.

Т.е. параметр C_1 описывает увеличение коэффициента диффузии с выгоранием так, чтобы к выгоранию 10 МВт·сут/кг произведение $A \cdot C_1$ достигло величины $3 \cdot 10^{-8}$ м²/с, полученной в разделе 2.3 при подборе A для описания экспериментов по выходу Cs^{137} . Предполагается, что с ростом выгорания идет рост открытой поверхности для выхода РН из диоксида урана.

Величина x учитывает температурный порог, после которого начинается интенсивный выход ГПД. В [11] этот порог назван *Halden threshold* (получен в экспериментах на реакторе *Halden*). Смысл введения x как функции отношения температур заключается в сглаживании скачкообразности эффекта достижения порога.

Если температура диоксида в рассматриваемой области (T) ниже пороговой (T_L), то C_1 быстро снижается по мере роста отклонения (T_L-T). Пороговая температура T_L сама является функцией выгорания.

$C_2 = 1 - N_0/N$ – поправка на ненулевые граничные условия, уже упоминавшаяся в разделе 2.2.3. Для ее определения требуется задать долю объема твэла, приходящегося на открытое пространство.

При выгораниях более 50-60 МВт·сут/кг наблюдается существенно повышенный выход ГПД. Эта проблема является основным предметом обсуждения в [11]. Отмечается, что возможной причиной повышенного выхода при больших выгораниях является некоторый процесс (в т.ч. образование *rim* слоя), приводящий к значительному измельчению зерен диоксида урана. Размер

зерен уменьшается примерно на порядок. Данный эффект в модели учитывается путем уменьшения R_g в соотношении (2.8) при превышении выгоранием уровня 50 МВт·сут/кг.

3.1.2.1 Расчеты по экспериментам на реакторе СМ-2

Для верификации были использованы результаты экспериментов по выходу газообразных продуктов деления из специальных экспериментальных твэлов, выполненные на реакторе СМ-2 [74]. Экспериментальные твэлы охлаждались водой с температурой 30°C, облучались до выгораний более 40 МВт·сут/кг при линейных нагрузках от 20 до 100 кВт/м. Фиксировали в основном выход стабильных газообразных продуктов деления. Для описания их выхода задавались изотопы с большим периодом полураспада (например, цезий).

В работе [74] линейная мощность за время облучения изменялась в пределах, представленных в таблице 3.5.

Таблица 3.5 – Результаты измерений выхода ПД под оболочку твэлов

| Линейная мощность, кВт/м | Относительный выход ГПД, % |
|--------------------------|----------------------------|
| 22-45 | 40 |
| 25-50 | 35 |
| 30-85 | 46 |
| 45-98 | 63 |

Результаты расчета даны в таблице 3.6. Расчеты проводились при постоянной линейной нагрузке по кампании.

Таблица 3.6 – Результат расчета выхода ПД под оболочку

| Линейная мощность, кВт/м | Относительный выход, % |
|--------------------------|------------------------|
| 30 | 45 |
| 45 | 58 |
| 60 | 88 |

Проведенные расчеты показывают, что результаты расчетов приемлемо согласуются с результатами измерения. Максимальная погрешность составит ~40%.

3.1.2.2 Выход криптона из топлива РБМК

В отчете [75] представлены результаты исследований выхода ГПД из топливных таблеток типа РБМК. Имитаторы твэлов РБМК облучались в исследовательском реакторе ИВВ-2М (ФГУП ИРМ). Выход ^{88}Kr определялся в режиме *online*.

Результаты выхода в функции выгорания показаны на рисунке 3.5, взятом из [75].

Видно, что выход становится заметным уже при выгорании 1 МВт·сут/кг, существенно (на порядок) возрастает при увеличении выгорания до 8 МВт·сут/кг и сильно зависит от температуры, составляя 0,2% при температуре центра топлива 400 °С и достигая 3,5% при температуре 1300 °С.

Полученный в эксперименте достаточно высокий выход даже при низкой температуре 400 °С означает существенный вклад в коэффициент диффузии от составляющих D_2 и D_3 , ответственных за низкотемпературную область. Кроме того, рассмотрение рисунка 3.5 показывает, что быстрое нарастание выхода с увеличением температуры начинается после превышения температурой центра топлива уровня 900 °С, что значительно ниже Холденского порога, которому отвечают температуры 1850 – 1325 °С для выгорания 1 МВт·сут/кг и 8 МВт·сут/кг соответственно. Возможно это вызвано повышенной скоростью делений, но во всяком случае должно быть учтено в расчетах. Для такого учета величина Z в формуле (3.1) была снижена с 9800 до 5800, что даёт пороговую температуру около 900 °С. Здесь уместно отметить, что в работе [40] высказываются соображения, что упомянутый порог может существенно зависеть от деталей фабрикации топлива. Кроме того, учитывая заметные экспериментальные значения выхода при низких температурах, множители при D_2 и D_3 взяты максимальными – $6,64 \cdot 10^{-25}$ и $1,2 \cdot 10^{-39}$.

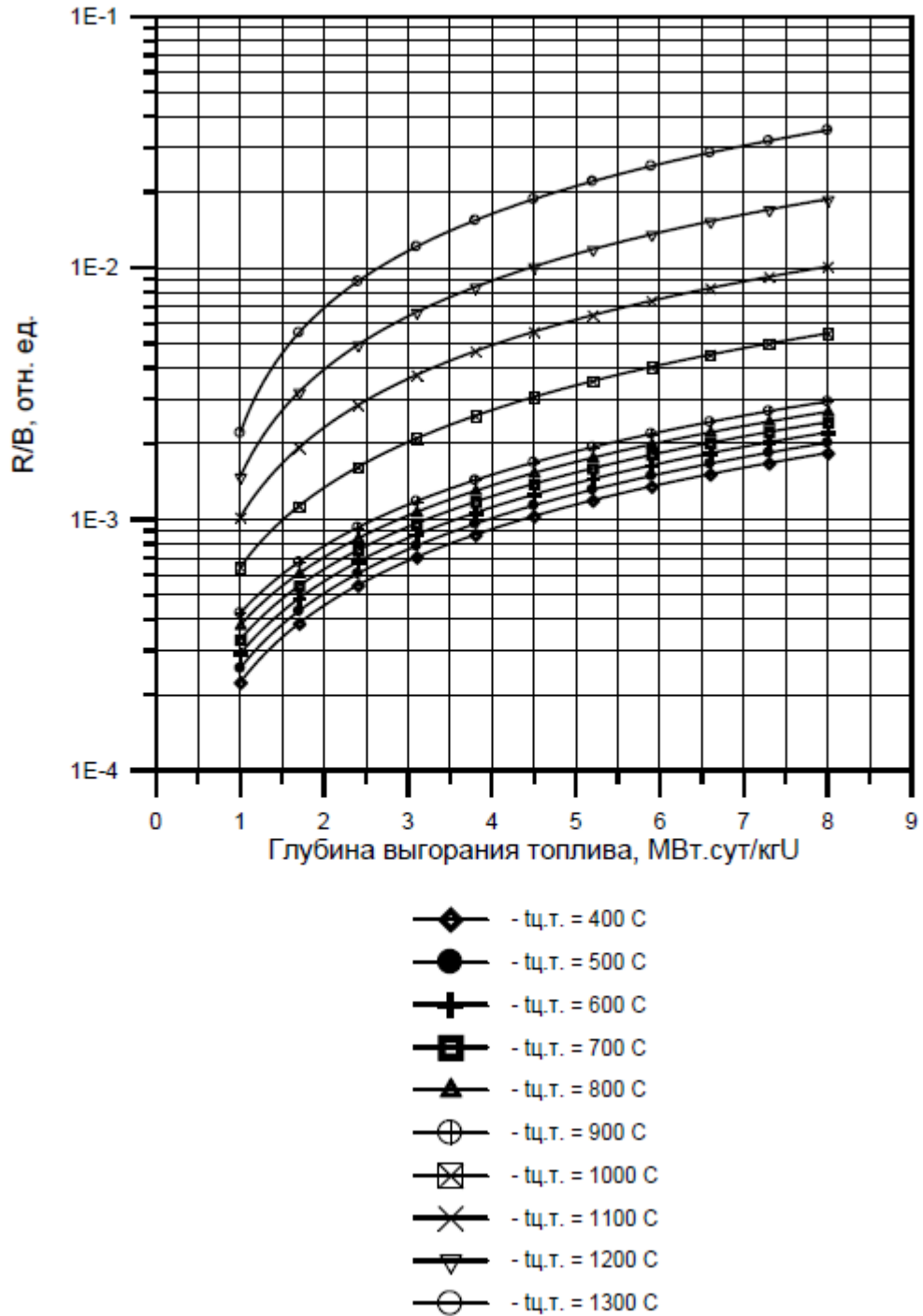


Рисунок 3.5 – Зависимость выхода ^{88}Kr от глубины выгорания при различных температурах топлива (приведена температура центра таблетки)

С учетом сказанного расчет по нашей модели дает величины выхода, представленные в таблице 3.7.

Таблица 3.7 – Сравнение измеренных и расчетных выходов ^{88}Kr

| № | Выгорание, МВт·сут/кг /температура, °С | Измеренный выход, % | Расчетный выход, % | Отклонение от эксперимента, % |
|---|--|------------------------|-----------------------|--|
| 1 | 1/900 | 0,04 | 0,02 | -100 |
| 2 | 8/900 | 0,3 | 0,15 | -100 |
| 3 | 1/1300 | 0,2 | 0,5 | 60 |
| 4 | 8/1300 | 3,5 | 3,5 | 0 |

Получено удовлетворительное согласие экспериментальных и расчетных данных, максимальное отклонение составит ~100%.

В книге [76] также обсуждаются результаты определения выхода криптона (но уже долгоживущего Kr^{85}) из твэлов РБМК для выгораний ТВС от 5 до 30 МВт·сут/кг. Там выход этого РН составил около 1%. Наш расчет без каких-либо изменений в расчетной модели дает для таких ТВС выход 2%.

3.1.2.3 Выход РН из топлива герметичных твэлов ВВЭР

В верификационном отчете [77] по *RELWWER* приведены расчетные данные по выходам РН под оболочку герметичного средненапряженного твэла для выгорания 43 МВт·сут/кг. Для сравнения приводятся результаты расчетов аналогичной величины для твэла ВВЭР в таблице 3.8.

Таблица 3.8 – Сравнение выходов РН, полученных по программе *RELWWER* и *CHAIN* для твэла ВВЭР

| Радионуклид | Скорость выхода <i>RELWWER</i> , % | Скорость выхода <i>CHAIN</i> , % | Отклонение от <i>RELWWER</i> , % |
|-------------------|---------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|
| ^{133}Xe | 0,39 | 0,39 | 1,3 |
| ^{134}Cs | 0,99 | 0,97 | -2 |
| ^{137}Cs | 0,83 | 1,05 | 21,5 |
| ^{131}I | 0,40 | 0,49 | 18,4 |
| ^{133}I | 0,13 | 0,10 | -28,8 |

При расчете использовались следующие данные. Диаметр твэла 0,91 см, внутренний диаметр оболочки 0,773 см, наружный диаметр таблетки 0,757 см, линейная нагрузка 160 Вт/см. Видно, что согласие с данными *RELWWER* удовлетворительное.

В таблице 3.9 для изотопов цезия помимо скорости выхода (R/B) в скобках приведено относительное содержание РН под оболочкой. Для долгоживущих РН

содержание не совпадает со скоростью выхода, т.к. не достигается стационарное состояние. Но именно это относительное содержание нужно при анализе радиационных последствий.

В таблице 3.9 приведена рассчитанная зависимость выхода Cs^{137} от линейной нагрузки.

Таблица 3.9 – Зависимость выхода ^{137}Cs от линейной нагрузки

| № | Линейная нагрузка, Вт/см | Скорость выхода, % | Относительное содержание под оболочкой, % |
|---|--------------------------|--------------------|---|
| 1 | 160 | 1,07 | 1,77 (1,89) |
| 2 | 200 | 1,02 | 1,73 (2,09) |
| 3 | 240 | 1,03 | 1,64(2,24) |
| 4 | 280 | 1,03 | 1,58 (2,32) |
| 5 | 320 | 2,03 | 2,59 (3,51) |
| 6 | 360 | 6,90 | 5,87 (6,50) |

Приводится скорость выхода на конец кампании и относительное содержание. При этом в скобках приводится максимальное относительное содержание по кампании. Максимум, согласно разработанной модели, достигается при выгораниях 15-20 МВт·сут/кг. Происхождение максимума можно понять. Из-за снижения температуры топлива, вызванного уменьшением зазора топливо-оболочка, коэффициент диффузии снижается, а рост накопленной активности продолжается.

Обращает на себя внимание нарастание выхода при превышении линейной нагрузки уровня 300 Вт/см, что согласуется с имеющимися данными. В [77] изложены выводы результатов исследований твэлов ВВЭР с выгоранием от 34 до 63 МВт·сут/кг, отмечается, что выход ГПД из топлива для них находится в диапазоне от 0,6-3,0%. Необходимо заметить, что в рамках разработанной расчетной модели выходы стабильных ГПД и ^{137}Cs практически идентичны.

В [77] отмечается, что для выгорания 72 МВт·сут/кг выход ГПД достиг 6%.

В статье [11] также обсуждаются результаты измерений выхода ГПД из твэлов *PWR* при их нормальной работе. На французских реакторах *PWR* выход ГПД находится на уровне менее 1% при выгораниях 10÷30 МВт·сут/кг, повышается до 1-2% к выгоранию 40 МВт·сут/кг и до уровня 5% к выгоранию

60÷70 МВт·сут/кг. При этом отмечается, что линейная нагрузка твэлов на французских *PWR*, как правило, находится на уровне 150-200 Вт/см.

В то же время на *PWR* фирмы *KWU* выход достигает 5% уже при выгорании 20 МВт·сут/кг. Это объясняется высокой линейной нагрузкой 330÷290 Вт/см в первых двух циклах работы ТВС, которая затем снижается до величины 140 Вт/см в конце кампании ТВС. Т.е. данные результаты показывают существенную зависимость выхода от величины линейной нагрузки.

Сказанное выше иллюстрируется на рисунке 3.6, взятом из статьи [11]. На рисунке 3.7 приведены наши расчетные зависимости с учетом высокого выгорания. Даны две кривые, полученные для твэлов ВВЭР, облучавшихся с линейной нагрузкой 200 и 300 Вт/см.

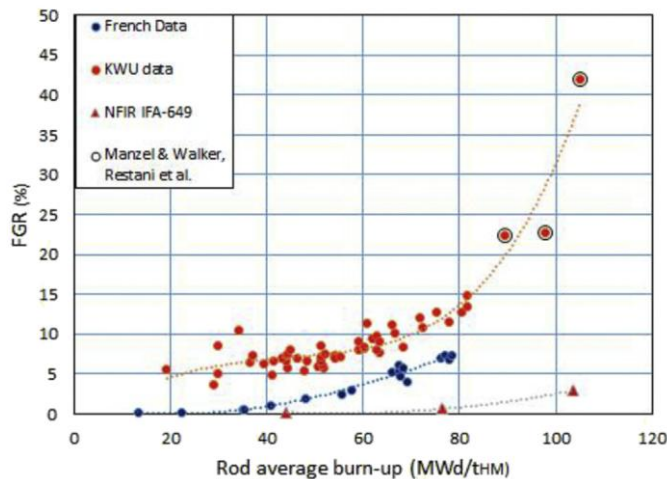


Рисунок 3.6 – Зависимость выхода продуктов деления от выгорания [11]

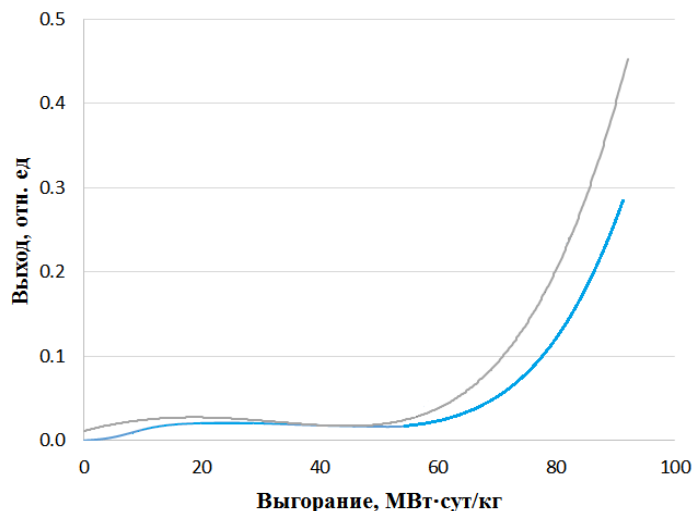


Рисунок 3.7 – Зависимость выхода ПД из твэлов ВВЭР от времени: — - 200 Вт/см, — - 300 Вт/см

Видно, что на рисунках 3.6 и 3.7 после достижения порогового значения выгорания выход ПД быстро нарастает и достигает ~50% для выгораний 90÷100 МВт·сут/кг. При этом при низких выгораниях выход не превышает ~5%.

Также были проведены дополнительные расчетные тесты для верификации программы. Результаты представлены в таблице 3.10. Данные получены для энергонапряженного твэла с выгоранием 33 МВт·сут/кг.

Таблица 3.10 – Дополнительное сравнение выходов РН по программе RELWWER и CHAIN для твэла ВВЭР

| Радионуклид | Скорость выхода RELWWER, % | Скорость выхода CHAIN, % | Отклонение от RELWWER, % |
|-------------|----------------------------|--------------------------|--------------------------|
| ^{85m}Kr | 0,08 | 0,06 | -33,3 |
| ^{87}Kr | 0,03 | 0,02 | -50,0 |
| ^{88}Kr | 0,05 | 0,04 | -25,1 |
| ^{131}I | 0,67 | 0,68 | -0,6 |
| ^{132}I | 0,39 | 0,52 | 24,9 |
| ^{133}I | 0,17 | 0,21 | 20,4 |
| ^{134}I | 0,05 | 0,05 | 4,6 |
| ^{135}I | 0,08 | 0,08 | 2,2 |
| ^{135}Xe | 0,10 | 0,10 | 4,2 |

Из таблицы 3.10 видно, что результат сравнения с программой RELWWER удовлетворительный.

3.2 Выход продуктов деления пониженной летучести из топлива

3.2.1 Аварийный нагрев топлива

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. В таблице 3.11 приведены параметры, которые используются для расчета выходов различных радионуклидов, A и B подобраны по результатам анализа экспериментальных данных.

Таблица 3.11 – Параметры для расчета коэффициентов диффузии РН

| Группа радионуклидов | k , 1/мин | Q , ккал/моль | A , м ² /с (окисл./восст.) | B , К |
|--------------------------|-------------------|-----------------|--|---------|
| <i>Cs, I, Xe, Kr, Te</i> | $2,00 \cdot 10^5$ | 63,8 | $3 \cdot 10^{-8}$ | 32000 |
| <i>Ba</i> | $2,95 \cdot 10^5$ | 100,2 | $2,05 \cdot 10^{-8}/4,10 \cdot 10^{-8}$ | 50400 |
| <i>Sn</i> | $5,95 \cdot 10^3$ | 70,8 | $8,26 \cdot 10^{-10}$ | 35612 |
| <i>Tc</i> | $1,62 \cdot 10^6$ | 152,8 | $2,25 \cdot 10^{-7}$ | 76858 |
| <i>Zr</i> | $8,55 \cdot 10^4$ | 139,5 | $1,19 \cdot 10^{-8}$ | 70168 |
| <i>Fe</i> | $2,94 \cdot 10^4$ | 87 | $4,08 \cdot 10^{-9}$ | 43761 |
| <i>Mo</i> | $4,40 \cdot 10^5$ | 117 | $6,11 \cdot 10^{-8}$ | 58851 |
| <i>Rb</i> | $2,00 \cdot 10^5$ | 63,8 | $2,78 \cdot 10^{-8}$ | 32000 |
| <i>Ru</i> | $1,62 \cdot 10^8$ | 152,8 | $3,34 \cdot 10^{-6}/1,1 \cdot 10^{-5}$ | 76858 |
| <i>Se</i> | $5,00 \cdot 10^3$ | 63,8 | $6,94 \cdot 10^{-10}$ | 32000 |
| <i>Ce</i> | - | - | $1,5 \cdot 10^{-13}/0,56 \cdot 10^{-13}$ | 32000 |
| <i>La</i> | - | - | $1,4 \cdot 10^{-12}/2,78 \cdot 10^{-12}$ | 32000 |
| <i>Eu</i> | - | - | $2,8 \cdot 10^{-11}/2,8 \cdot 10^{-12}$ | 32000 |
| <i>Sr</i> | $4,4 \cdot 10^5$ | 117 | $6,11 \cdot 10^{-9}/9,2 \cdot 10^{-8}$ | 58851 |

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 (восстановительные, окислительные или смешанные) 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.

3.2.1.1 Эксперименты серии VI

Целью экспериментов серии VI (*ORNL*) [72] было получить данные по поведению и выходу продуктов деления в условиях тяжелой аварии на реакторе *LWR* в диапазоне температур от 2000 К до 2700 К. В качестве экспериментальной установки использовалась вертикальная индукционная печь, где проводился отжиг образцов. В качестве экспериментальных образцов выступали фрагменты отработавших топливных стержней в циркониевой оболочке длиной около 15 см. Для контроля температуры внутри индукционной печи были расположены термопары, а снаружи - средства оптического измерения температуры

(пирометры). Для получения данных по выходу продуктов деления применялись гамма-спектрометры.

Неопределенность экспериментальных данных в отношении выхода цезия составила 10%, в отношении остальных элементов не указана и экспертно задавалась равной 20% (исходя из погрешности аналогичных экспериментов). Выделившиеся продукты деления собираются в трех последовательно работающих параллельных сборных линиях. Каждая линия состоит из термоградиентной трубки с внутренним диаметром 7,6 мм, облицованной платиной или нержавеющей сталью, предназначенной для конденсации паров; фильтров, содержащих градуированные фильтры из стекловолокна для сбора аэрозолей и фильтра, пропитанного триэтилендиамином (*TEDA*) для сорбции йода; холодных угольных ловушек для сбора инертных газов. Выбросы летучих газов в режиме реального времени контролируются детекторами. Основными аналитическими методами, используемыми для идентификации и измерения продуктов деления, являются гамма-спектрометрия для всех радионуклидов на всех тестовых компонентах; масс-спектрометрия для всех элементов, в первую очередь осажденных на термоградиентной трубке и фильтрах; и нейтронная активация для йода на выбранных тестовых компонентах.

Тестовые образцы представляли собой топливные стержни, облученные в экспериментальном реакторе *BR3*.

В таблице 3.12 приводятся основные характеристики экспериментов.

Таблица 3.12 – Основные характеристики экспериментов VI

| Эксперимент | VI-2 | VI-3 | VI-4 | VI-5 | VI-6 |
|--|-----------|-----------|----------|----------|---------------|
| Выгорание, ГВт·сут/тU | 42 | 42 | 47 | 42 | 42 |
| T_{max} , К | 2300 | 2700 | 2440 | 2720 | 2300 |
| Время при T_{max} , мин | 60 | 30 | 20 | 20 | 60 |
| Атмосфера | H_2O+He | H_2O+He | H_2+He | H_2+He | H_2O+H_2+He |
| Обогащение (вес. % U^{235}) | 5,76 | 5,76 | 8,26 | 5,76 | 5,76 |
| Внешний диаметр, см | 0,95 | 0,95 | 0,95 | 0,95 | 0,95 |
| Длина топливного столба, см | 15,2 | 15,2 | 15,2 | 15,2 | 15,2 |
| Количество диоксида урана в топливе, г | 82 | 81 | 79 | 81 | 82 |
| Максимальная линейная мощность при облучении, В/см | - | 251 | 270 | 222 | 222 |
| Размер зерна, мкм | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 |

В первых экспериментах отжиг проводился в окислительной атмосфере водяного пара, в экспериментах VI-4 и VI-5 в газовой смеси доминировал водород, и атмосфера была восстановительной, в VI-6 переключение с водорода на пар произошло через 20 минут после начала высокотемпературного отжига с $T = 2300$ К. В экспериментах VI-2, VI-3 целостность системы «оболочка-топливо» не нарушалась. В экспериментах VI-4, VI-5 и VI-6 при температурах ~ 2150 К происходило плавление циркониевой оболочки, что приводило в дальнейшем к разрушению топливного образца при $T \sim 2150$ К для VI-4 и между $T \sim 2400\div 2700$ К в VI-5 и VI-6.

В таблицах ниже приводятся результаты сравнения расчетов с экспериментальными данными.

Таблица 3.13 – Результаты сравнения расчетов выхода ПД с экспериментами VI-2

| Радионуклид | Эксперимент VI-2 | | |
|-------------|------------------|--------|-------------------------------|
| | Эксперимент | Расчет | Отклонение от эксперимента, % |
| <i>Te</i> | - | 99 | - |
| <i>Sr</i> | - | 0,98 | - |
| <i>Mo</i> | 86 | 99 | 15,1 |
| <i>Ru</i> | - | 0,67 | - |
| <i>Ba</i> | 19 | 13 | -31,6 |
| <i>Ce</i> | - | 1,74 | - |
| <i>Eu</i> | - | 2,02 | - |

Таблица 3.14 – Результаты сравнения расчетов выхода ПД с экспериментами VI-3

| Радионуклид | Эксперимент VI-2 | | |
|-------------|------------------|--------|-------------------------------|
| | Эксперимент | Расчет | Отклонение от эксперимента, % |
| <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 |
| <i>Eu</i> | - | 2,36 | - |

Из таблиц 3.13, 3.14 видно, что наибольшее отклонение от эксперимента соответствует барию и церию, причем для церия расчеты по *CHAIN-2* завышают результат.

В таблицах ниже приведены сравнительные расчеты выходов для восстановительной атмосферы.

Таблица 3.15 – Результаты сравнения расчетов выхода ПД с экспериментами VI-4

| Радионуклид | Эксперимент VI-4 | | |
|-------------|------------------|--------|-------------------------------|
| | Эксперимент | Расчет | Отклонение от эксперимента, % |
| <i>Te</i> | 46 | 99 | 115,2 |
| <i>Sr</i> | - | 14 | - |
| <i>Ba</i> | 27 | 22 | -18,5 |
| <i>Ru</i> | - | 5,5E-5 | - |
| <i>Ce</i> | - | 0,56 | - |
| <i>Eu</i> | 19 | 16,3 | -14,2 |

Таблица 3.16 – Результаты сравнения расчетов выхода ПД с экспериментами VI-5

| Радионуклид | Эксперимент VI-5 | | |
|-------------|------------------|--------|-------------------------------|
| | Эксперимент | Расчет | Отклонение от эксперимента, % |
| <i>Te</i> | 82 | 100 | 22,0 |
| <i>Sr</i> | 34 | 41,7 | 22,6 |
| <i>Mo</i> | 2,26 | 9 | 298,2 |
| <i>Ru</i> | - | 0,27 | - |
| <i>Ba</i> | 75 | 74 | -1,3 |
| <i>Ce</i> | 2 | 0,91 | -54,5 |
| <i>Eu</i> | 57 | 26,7 | -53,2 |

Из таблицы 3.15, видно, что максимальное отклонение от эксперимента соответствует радионуклиду теллуру, т.к. теллур в программе задается как летучий РН, почти полностью выходящий при таких высоких температурах. В таблице 3.16 максимальное отклонение (почти в 4 раза) от эксперимента у молибдена, что объясняется достаточно консервативным подходом к рассмотрению данного радионуклида при восстановительной атмосфере. Для данного радионуклида характерна смена состояния от летучего при окислительной атмосфере до пониженной степени летучести при восстановительной. Согласно [72] эксперименты, проведенные для топлива с высоким выгоранием в восстановительных условиях, могли привести к завышенным выходам для низколетучей категории радионуклидов, в частности *La*, *Ce*, *Eu*.

Ниже представлены результаты расчетов для выходов РН при смешанной атмосфере.

Таблица 3.17 – Результаты сравнения расчетов выхода ПД с экспериментами VI-6

| Радионуклид | Эксперимент VI-6 | | |
|-------------|------------------|--------|-------------------------------|
| | Эксперимент | Расчет | Отклонение от эксперимента, % |
| <i>Te</i> | 63 | 99 | 57,1 |
| <i>Sr</i> | 5,8 | 9,3 | 60,3 |
| <i>Mo</i> | 13 | 39 | 200,0 |
| <i>Ru</i> | - | 4,4 | - |
| <i>Ba</i> | 32 | 24 | -25,0 |
| <i>Ce</i> | - | 1,74 | - |
| <i>Eu</i> | 14 | 19,1 | 36,4 |

Из таблицы 3.17 следует, что максимальное отклонение от эксперимента в расчётных значениях соответствует молибдену, что, как уже упоминалось выше, говорит о консервативности модели в части описания данного радионуклида при атмосфере с повышенным содержанием водорода

3.2.1.2 Эксперименты серии VR

В сериях экспериментов VR [10] программы *VERCORS* наиболее детально был исследован выход радионуклидов при высоких температурах. В данной серии экспериментов удалось получить выход короткоживущих ПД посредством дооблучения образцов перед тестами. Также в экспериментах представлены результаты в зависимости от различных атмосферных условий. В том числе показано, что некоторые РН, например теллур или рутений, могут проявлять различную летучесть при различных атмосферных условиях.

В экспериментах VR исследовался выход слаболетучих ПД из выгоревшего топлива при температурах, близких к точке плавления топлива, в окислительной и восстановительной атмосфере. Тестовый образец состоял из трех топливных таблеток в оригинальной оболочке, который повторно облучался при низкой линейной мощности (20 Вт/см) в экспериментальном реакторе около 7 дней с целью воспроизведения ПД с малым периодом полураспада, в частности летучих

(теллур) и слаболетучих ПД (молибден, барий, рутений, церий, лантан, цирконий).

На пути потока газа находится система впрыска пара, водорода и гелия. Гелий используется для защиты графитового или вольфрамового токоприемника от окисления паром. Пароперегреватель и индукционная печь служат для нагрева газов до 1100 К и нагрева топлива до 2600 К. Печь состоит из двух концентрических каналов, запечатанных стеклом плотных циркониевых рукавов, двойного слоя утеплителя (из плотного циркония и алюминия), кварцевой трубки, катушки. Внутренний канал, содержащий исследуемый образец, продувается потоком пара и водорода. Внешний канал, содержащий токоприемник из графита или вольфрама, изолирован от взаимодействия с газами внутреннего канала при помощи потока гелия, имеющего более высокое давление, чем пар и водород. В печи поддерживается относительно ровный профиль температуры вдоль образца (градиент составлял порядка 50 К), что обеспечивает равномерный выход ПД из всех трех таблеток топливного образца.

Поскольку тесты *VERCORS* в основном нацелены на определение кинетики выхода (и общего в том числе) газов и аэрозолей, то используются различные станции гамма-спектрометрии, оснащенные *Ge(HP)*-детекторами. Детектор нацелен на верхнюю часть топлива и фиксирует уход всех продуктов деления. Так как это дифференциальное измерение, недостатком этой станции является низкая точность измерения выброса. Выбросы ПД ниже 10% не имеют большого значения на этой измерительной станции. Однако его преимущество заключается в количественной оценке кинетики всех ПД, включая те, которые не достигают термоградиентной трубки. Кроме того, существует возможность следить за деградацией топлива, поскольку идет фиксация потери сигнала, который соответствует нелетучим или малолетучим ПД (т.е. *La-140*, и т.д.). Также есть два детектора, которые контролируют отложения в термоградиентной трубке и/или на аэрозольном фильтре. Поскольку это прямое измерение (недифференциальное) только на слабо поглощающих структурах, чувствительность измерения очень хорошая. Еще одно устройство предназначено для измерения газовой емкости и

измеряет газы деления, выделяемые топливом (ксенон и криптон), с хорошей чувствительностью и динамикой измерения (от 10^{-4} до нескольких % в минуту от исходного запаса).

В таблицах ниже приводятся основные характеристики экспериментов, а также результаты сравнения расчетных и экспериментальных данных.

Таблица 3.18 – Основные характеристики экспериментов VR

| Эксперимент | VR-3 | VR-4 | VR-5 |
|---|------------|-------|--------|
| Выгорание, ГВт·сут/тU | 38,3 | 38,3 | 38,3 |
| T_{max} , К | 2570 | 2570 | 2570 |
| Время при T_{max} , мин | 15 | 30 | 30 |
| Атмосфера | H_2O+H_2 | H_2 | H_2O |
| Расход H_2 , г/мин | 0,03 | 0,012 | 0 |
| Расход H_2O , г/мин | 1,5 | 0 | 1,5 |
| Обогащение (вес. % U^{235}) | 3,1 | 3,1 | 3,1 |
| Внешний диаметр, мм | 8,2 | 8,2 | 8,2 |
| Длина топливного столба, мм | 14 | 14 | 14 |
| Размер зерна, мкм | 4 | 8 | 8 |
| Линейная мощность доп. облучения, Вт/см | 20 | 20 | 20 |

В таблице 3.19 представлены результаты расчетов выходов РН при смешанной атмосфере. В таблице 3.20 представлены результаты расчетов выходов РН для восстановительной атмосферы. В таблице 3.21 представлены результаты расчетов выходов РН для окислительной атмосферы.

Таблица 3.19 – Результаты сравнения расчетов выхода ПД с экспериментами VR-3

| Радионуклид | Эксперимент VR-3 | | |
|-------------|------------------|--------|-------------------------------|
| | Эксперимент | Расчет | Отклонение от эксперимента, % |
| <i>Te</i> | 76 | 99 | 30,3 |
| <i>Sr</i> | - | 13 | - |
| <i>Mo</i> | 42 | 55 | 31,0 |
| <i>Ba</i> | 13 | 38 | 192,3 |
| <i>Ce</i> | - | 1,8 | - |
| <i>La</i> | <4 | 1,3 | -67,5 |
| <i>Eu</i> | <6 | 18 | 200,0 |

Таблица 3.20 – Результаты сравнения расчетов выхода ПД с экспериментами VR-4

| Радионуклид | Эксперимент VR-4 | | |
|-------------|------------------|--------|-------------------------------|
| | Эксперимент | Расчет | Отклонение от эксперимента, % |
| <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 |

Таблица 3.21 – Результаты сравнения расчетов выхода ПД с экспериментами VR-5

| Радионуклид | Эксперимент VR-5 | | |
|-------------|------------------|--------|-------------------------------|
| | Эксперимент | Расчет | Отклонение от эксперимента, % |
| <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 таблиц 3.19÷3.21 видно, что при восстановительной атмосфере (как и смешанной) идет переоценка выхода европия. В смешанной атмосфере (таблица 3.19) также наблюдаются завышения по барию, что может говорить о погрешностях в условиях воспроизведения эксперимента с помощью программы, т.к. в смешанной атмосфере будет присутствовать больше водяного пара (H_2O), чем водорода (в программе предполагалось равновесно распределенное содержание окислителя и восстановителя: 50/50).

В таблице 3.20 (восстановительная атмосфера) присутствует недооценка церия, причем прослеживается явная статистическая погрешность в недооценке

выходе церия при восстановительной атмосфере (однако, погрешность будет в пределах заявленных в программе 100%).

3.2.1.3 Эксперименты ФЭИ

Для проведения экспериментов по исследованию кинетики выхода продуктов деления из образцов двуокиси урана с выгоранием 50,8 ГВт·сут/ tU в ФЭИ [78] была изготовлена установка, которая состояла из нагревательного модуля с тигелем из платины с образцом UO_2 . В качестве нагревателя использовалась высокотемпературная печь на основе керамической трубки с заданным электрическим сопротивлением, с максимальной температурой нагрева ~ 1930 К. В печи была установлена трубка из окиси алюминия, в которую помещается тигель с образцом UO_2 . Трубка из окиси алюминия герметично была связана с системами подачи смеси аргона и водяного пара. Режим работы нагреваемого модуля обеспечивался программным устройством, позволяющим изменять скорость нагрева в пределах от 5 до 50 К в минуту и поддерживать температуру образца с точностью ± 12 К. Нагревательный модуль размещался в горячей камере и обслуживался с помощью манипуляторов. Тигель с образцом находился на половине длины нагревателя, в области максимальной температуры. Температура платинового тигля с образцом измерялась с помощью *Pt-Rh* термопары.

Для подачи к образцу смеси аргона и водяного пара использовалась система, состоящая из баллона с аргоном, парогенератора и приборов регулировки скорости потока газов. Стабильность газового потока во время эксперимента контролировалась ротаметрами на входе и выходе газовых линий. Давление газа-носителя в установке во время эксперимента контролировалось при помощи манометра с точностью $\pm 0,02$ МПа.

Для улавливания продуктов деления, вышедших при нагреве образца UO_2 , использовался конденсатор водяного пара и соответствующие сборники конденсата. За время эксперимента отбиралось от 10 до 12 проб конденсата, содержащего продукты деления.

В конце каждого эксперимента для установления общего баланса продуктов деления в установке контролировалась активность радионуклидов и масс ПД в газовых трубопроводах стенда путём обмывки их кислотой и последующего измерения.

Нагрев образца UO_2 проводился в атмосфере смеси аргона и водяного пара до температуры ~ 1950 К в течение 180 мин. Отбор проб конденсата с продуктами деления проводился приблизительно через 12 минут нагрева UO_2 , начиная с температуры 970-1000 К.

В таблицах ниже приводятся основные характеристики проведенных экспериментов и результаты сравнения расчетных и экспериментальных данных.

Таблица 3.22 – Основные характеристики экспериментов ФЭИ

| | |
|--------------------------------|---------------------|
| Выгорание, ГВт·сут/тU | 50,8 |
| T_{max} , К | 1900 |
| Время при T_{max} , мин | 27 |
| Атмосфера | Ar+H ₂ O |
| Расход Ar, л/мин | 0,8 |
| Расход H ₂ O, л/мин | 0,2 |
| Размер зерна, мкм | 8 |

Таблица 3.23 – Результаты сравнения расчетов выхода ПД с экспериментами ФЭИ

| Радионуклид | Эксперимент ФЭИ | |
|-------------|-----------------|--------|
| | Эксперимент | Расчет |
| <i>Sr</i> | 21,1 | 26,3 |
| <i>Mo</i> | 55,1 | 99 |
| <i>Ru</i> | 21,4 | 15,2 |
| <i>Ba</i> | 38,7 | 28,2 |
| <i>Ce</i> | 5,6 | 1,11 |

Из таблицы видно, что для данного теста расчётные значения получаются меньше экспериментальных для рутения, бария и церия, что может говорить о недостаточности исходных данных для воспроизведения условий эксперимента. Результаты могут свидетельствовать о том, что разработанное программное средство не до конца учитывает эффекты, происходящие с топливом при больших выгораниях (более 50 МВт·сут/кг) для РН пониженной степени летучести: образование пористой микроструктуры рим-слоя (локальное увеличение

выгорания на периферии таблетки из-за накопления плутония) с повышенным выходом продуктов деления учитывается косвенно изменением размера зерна в программе, следовательно, область применения программы ограничена выгоранием ~ 50 МВт·сут/кг.

3.2.1.4 Параметры, влияющие на выход радионуклидов

Температура

Температура – самый очевидный параметр, который влияет на выход радионуклидов из топлива, и один из чрезвычайно важных по сравнению с другими. Температура напрямую влияет на высвобождение всех продуктов деления независимо от степени их летучести.

Время в совокупности с температурой также является одним из основных параметров, влияющих на выход. Чем больше время выдержки при заданных температурах, тем больше выход радионуклидов.

Окислительно-восстановительные условия

Кинетика выделения летучих ПД немного ускоряется в окислительных условиях (например, в присутствии пара или воздуха). Однако особенно чувствительны к окислительно-восстановительным условиям среды среднелетучие ПД. Влияние атмосферных условий среды на низколетучие ПД часто маскируется, т.к. выход данных ПД происходит при высоких температурах, поэтому данный параметр будет конкурировать с другими, в том числе ограничивающими выход из топлива (например, плавление) [36].

Одним из основных интересных фактов, связанных с окислительно-восстановительными условиями, является поведение слаболетучего *Ru*. При взаимодействии с воздухом при умеренно высокой температуре он может образовывать летучие оксиды (RuO_3 и RuO_4), в результате чего уровень выхода данного радионуклида может достигать более 50% (в [36] приведены результаты экспериментов, однако для большого выгорания, с долей выхода *Ru* порядка 65%).

Выход *Mo*, *Ru* увеличивается в окислительных условиях. Восстановительные условия (когда в среде появляется водород) способствуют

выходу из топлива *Ba, Ce, Eu, La, Sr*. Стоит отметить, что для многих запроектных аварий при обезвоживании реактора в среде (с которой возможен контакт топлива) будет присутствовать большое количество водорода за счет радиолиза воды и паро-циркониевой реакции.

Выгорание

Высокое выгорание способствует выходу всех ПД, за исключением некоторых летучих (*Te, I, Cs*), которые выходят практически полностью при высоких температурах независимо от атмосферных условий и выгорания.

Взаимодействие РН с оболочкой и конструкционными элементами

Взаимодействие с облицовкой и/или конструкционными элементами может влиять на выход из-под оболочки и далее в окружающую среду некоторых радионуклидов [36]. Например, присутствие олова в оболочках из циркалоя замедляет выход теллура. Барий (а также его дочерний элемент лантан), также частично удерживается в оболочке (из-за вероятного образования цирконатов), а также в конструкционных сталях [79].

Тип топлива

Тип топлива также играет важную роль: выходы из МОХ-топлива имеют значения несколько выше, чем из топлива UO_2 , что, может быть связано с микроструктурой МОХ-топлива, а также с наличием крупных агломератов плутония, имеющих очень высокую локальную плотность. Одним из радионуклидов, выход которого сильно зависит от типа топлива, является церий. В [36] приведены эксперименты, где выход церия из МОХ-топлива составляет ~15% (максимальное значение для уранового топлива при высоких температурах составляет в экспериментах [36] 3%).

Состояние топлива

Состояние топлива: целый твэл, фрагментированное топливо, расплав значительно влияет на выход радионуклидов. Например, при переходе топлива в расплав выход продуктов деления замедляется, что подтверждается также экспериментально [36], [80].

Ниже приведена обобщённая оценка характера поведения радионуклидов при возможных авариях с повышением температуры топлива.

Цезий и йод

Это два основных летучих ПД с точки зрения радиологических последствий аварий. Изотопы с разными периодами (от 1 часа до 8 дней для йода и 30 лет для цезия) полураспада будут давать вклад и на начальном этапе и в долгосрочной перспективе после аварии, растягивая радиобиологические эффекты. Эти РН практически полностью выходят при высоких температурах из топлива. Одна из химических форм выходящего йода – йодид цезия (CsI), которая является более летучей, чем преобладающая форма выходящего цезия – молибдат цезия (Cs_2MoO_4). Однако, йодид цезия диссоциирует, когда цезий реагирует с поверхностями из нержавеющей стали [88]. Остаточный элементарный йод испаряется и может выходить в окружающую среду. Йод и цезий также могут задерживаться внутри графитовой кладки реакторов РБМК. Путем экспериментальных исследований осаждения продуктов деления на имитаторах фрагмента графитовой кладки были получены коэффициенты пропускания, которые до температур графита 800 °С находятся на уровне 1%. То есть выйдя из топлива данные нуклиды, взаимодействуя между собой и с материалами реактора, будут не полностью выходить в окружающую среду.

Поведение молибдена

У молибдена один основной радиоизотоп $Mo-99$, период полураспада которого составляет 2,7 дня, радиологическое влияние для внешнего облучения сопоставимо с влиянием бария или теллура (дозовые коэффициенты данных РН близки по значениям), однако действовать будет только в краткосрочной перспективе. Необходимо отметить, что влияние на внутреннее облучения будет сопоставимо с влиянием цезия-137.

Молибден имеет большую химическую активность, может образовывать соединения с другими ПД (образует летучие оксиды (MoO_2 и MoO_3), из которых затем могут образовываться с другими ПД молибдаты, в основном с Cs и Ba). В частности, молибден может соединяться с цезием с образованием химических

соединений, которые влияют на летучесть [36] этих радионуклидов (Cs_2MoO_4). Молибден в топливе присутствует в виде легко окисляемых металлических осадков [87]. Чувствителен к окислительно-восстановительным условиям среды, выход увеличивается при восстановительных условиях. При повышении температуры топлива может практически полностью выходить под оболочку наравне с летучими ПД.

Поведение бария и лантана

Основным радиоизотопом бария является $Ba-140$, период полураспада которого составляет 12,7 дня, чьи возможные эффекты распространяются на краткосрочную и среднесрочную перспективу. Необходимость учета выхода данного радионуклида заключается в том, что он является материнским для другого нуклида – лантана-140. В свою очередь, лантан может давать большой вклад в радиологические последствия при аварийных выбросах вследствие запроектных тяжелых аварий.

Одним из важных факторов, влияющих на выход бария и лантана, помимо температуры и выгорания, являются окислительно-восстановительные условия. Также важную роль играют взаимодействия с окружающими материалами, конструкциями, особенно оболочками твэлов. Выход бария при повышении температуры топлива может достигать до 50%, лантан же наоборот, являясь слаболетучим радионуклидом самостоятельно под оболочку выходит только при температурах выше $\sim 2200^\circ C$, а процент выхода колеблется от нескольких процентов, реже до 10%.

Поведение рутения

Рутений слаболетучий нуклид, при температурах ниже $\sim 2100^\circ C$ практически не выходит (доля выхода менее 0,01%). Тем не менее в окислительной атмосфере и особенно при попадании воздуха в объем рутений может образовывать крайне летучие оксиды (RuO_3 и RuO_4) [89], при высоком выгорании и температуре выход может колебаться от нескольких до десятков процентов. С точки зрения радиологических последствий два основных радиоизотопа ($Ru-103$, $Ru-106$) могут вносить вклад в радиационные последствия

в краткосрочной (период полураспада 39 дней) и среднесрочной перспективе (период полураспада около года), которые сопоставимы с воздействием йода и цезия (необходимо отметить, что дозовые коэффициенты для внутреннего облучения на порядок выше, чем у йода).

Поведение стронция

Стронций-90 является чистым β -излучателем с периодом полураспада ~29 лет, возможное радиологическое воздействие которого очень важно вследствие его свойства накапливаться в костях/скелете. Данный радионуклид чувствителен к окислительно-восстановительным условиям, выход увеличивается при восстановительной водородной атмосфере (и может достигать до ~40%). Стронций – тугоплавкий слаболетучий элемент, выход при температурах ниже ~2200°C крайне мал. Однако он является одним из дозообразующих РН при запроектных тяжелых авариях наравне с летучим йодом и цезием, когда температуры длительное время могут быть высокими.

Поведение церия

Церий также является одним из слаболетучих радионуклидов, чье радиологическое влияние при, например, внутреннем облучении за счет ингаляции сравнимо с влиянием цезия и йода. Основные радиоизотопы церий-144 и церий-141 вносят вклад в среднесрочной перспективе при запроектных тяжелых авариях. Данный радионуклид характеризуется низким процентом выхода (менее 5%) даже при высоких температурах (выход начинается при температурах выше ~2200°C). При восстановительных условиях атмосферы выход немного увеличивается, однако четкой тенденции не прослеживается.

Выводы по главе 3:

После подбора и корректировки эмпирических коэффициентов, входящих в уравнение диффузии, расчетная модель проверялась на данных различных независимых экспериментов.

По результатам верификации в случае повышения температуры топлива для основных дозообразующих нуклидов (ИРГ, а также йод и цезий) максимальное отклонение расчетных значений от экспериментальных не превышает ~100%, в

основном для тестов отклонение составляет примерно $\sim 10\%$. Для нуклидов пониженной степени летучести отклонения расчетных значений от экспериментальных оказываются выше за счет возрастания влияния в том числе окислительно-восстановительных условий среды на выход радионуклидов, что также может говорить о недостаточной точности воспроизведения теста и погрешности эмпирических коэффициентов, входящих в уравнение диффузии.

ГЛАВА 4. ПРИМЕНЕНИЕ МОДЕЛИ ДЛЯ АНАЛИЗА ВОЗМОЖНЫХ РАДИАЦИОННЫХ ПОСЛЕДСТВИЙ АВАРИЙ

4.1 Выход продуктов деления из топлива РБМК при нормальной эксплуатации

Для расчетов выхода продуктов деления из топлива при аварии необходимо первоначально иметь значение количества радионуклидов в топливе и под оболочкой при предшествующей ей нормальной эксплуатации реактора.

В таблице 4.1 приведены максимальные расчетные значения, полученные по программе *CHAIN*, для условий нормальной эксплуатации реактора в зависимости от выгорания топлива, которым является диоксид урана с обогащением 2,8%+0,6%*Er*, с учетом снижения мощности ТВС с выгоранием, что было описано в начале главы 3.

Таблица 4.1 – Выход радионуклидов при нормальной работе из топлива реактора РБМК, %.

| Радионуклид | Выгорание, МВт·сут/кг | | | | |
|---------------|-----------------------|--------|--------|--------|--------|
| | 5 | 10 | 15 | 20 | 30 |
| <i>Kr-85m</i> | 0,0030 | 0,0033 | 0,0027 | 0,0022 | 0,0020 |
| <i>Kr-87</i> | 0,0011 | 0,0012 | 0,0011 | 0,0009 | 0,0009 |
| <i>Kr-88</i> | 0,0021 | 0,0022 | 0,0019 | 0,0016 | 0,0014 |
| <i>Xe-133</i> | 0,0703 | 0,0812 | 0,0647 | 0,0517 | 0,0457 |
| <i>Xe-135</i> | 0,0044 | 0,0049 | 0,0041 | 0,0036 | 0,0035 |
| <i>I-131</i> | 0,1044 | 0,1232 | 0,0983 | 0,0785 | 0,0692 |
| <i>I-132</i> | 0,0017 | 0,0019 | 0,0016 | 0,0013 | 0,0012 |
| <i>I-133</i> | 0,0125 | 0,0139 | 0,0112 | 0,0090 | 0,0080 |
| <i>I-134</i> | 0,0009 | 0,0010 | 0,0008 | 0,0008 | 0,0007 |
| <i>I-135</i> | 0,0043 | 0,0047 | 0,0038 | 0,0031 | 0,0028 |
| <i>Cs-134</i> | 0,6105 | 1,4330 | 1,6660 | 1,7020 | 1,7100 |
| <i>Cs-137</i> | 0,6244 | 1,4980 | 1,7880 | 1,8850 | 1,9920 |
| <i>Sr-89</i> | 0,0089 | 0,0084 | 0,0061 | 0,0045 | 0,0032 |
| <i>Sr-90</i> | 0,0158 | 0,0281 | 0,0348 | 0,0387 | 0,0436 |
| <i>Mo-99</i> | 0,0063 | 0,0047 | 0,0035 | 0,0028 | 0,0021 |
| <i>Ru-106</i> | 0,0076 | 0,0065 | 0,0047 | 0,0035 | 0,0025 |
| <i>Ru-103</i> | 0,0148 | 0,0241 | 0,0269 | 0,0264 | 0,0231 |
| <i>Te-132</i> | 0,1317 | 0,0476 | 0,0145 | 0,0052 | 0,0025 |
| <i>Ba-140</i> | 0,0276 | 0,0207 | 0,0151 | 0,0115 | 0,0084 |
| <i>La-140</i> | 0,0040 | 0,0030 | 0,0023 | 0,0018 | 0,0014 |

Значения выхода при нормальных условиях эксплуатации необходимы, в том числе для аварий с течью теплоносителя, когда температура может долгое время оставаться относительно низкой, однако будет присутствовать утечка радиоактивности из ТВЭЛ из-за повреждения его оболочки.

4.1.1 Взаимосвязь предела по активности йода в теплоносителе РБМК и числа дефектных ТВЭЛОВ

Представление о количестве вышедших радионуклидов из топлива под оболочку при нормальной эксплуатации (предшествующей любой аварийной ситуации) также необходимо для установления пределов, которые сигнализируют о нарушениях нормальной эксплуатации и начале аварийного процесса. Правилами ядерной безопасности [81] устанавливаются пределы безопасной эксплуатации реактора по числу дефектных ТВЭЛОВ. Соблюдение пределов контролируется с помощью реперного радионуклида $I-131$, удельную активность которого в теплоносителе периодически определяют. По этой удельной активности также устанавливается предел безопасной эксплуатации. В РБМК он принят равным $3,7 \cdot 10^5$ Бк/л [82].

Предположение о том, что зависимость между удельной активностью $I-131$ и числом негерметичных ТВЭЛОВ не является достаточно строгой высказывалось ранее и обсуждалось, например, в статье [83] для ВВЭР, но без количественных оценок. Представляет интерес количественный анализ этой зависимости применительно к РБМК.

Радиоактивный $I-131$ поступает в теплоноситель из дефектных ТВЭЛОВ и выводится в основном за счет очистки и осаждения на поверхностях контура. Изменение активности йода в теплоносителе определяется по формуле (4.1):

$$\frac{dA}{dt} = Q - \lambda A - \lambda_0 A \quad , \quad (4.1)$$

где A – активность йода;

Q – скорость поступления $I-131$ из дефектных ТВЭЛОВ;

λ, λ_0 – постоянные радиоактивного распада и выведения йода из теплоносителя, соответственно.

В стационарном состоянии уравнение (4.1) преобразуется в выражение:

$$Q - \lambda A - \lambda_0 A = 0;$$

$$A = Q / (\lambda + \lambda_0).$$

Соответственно, удельная активность может быть вычислена по формуле (4.2):

$$a = \frac{A}{M} = \frac{Q}{M(\lambda + \lambda_0)} = \frac{q_1 N_d}{M(\lambda + \lambda_0)} \quad (4.2)$$

где M – масса теплоносителя в контуре;

q_1 – средняя скорость поступления $I-131$ из одного твэла в теплоноситель;

N_d – число дефектных твэлов.

Предположим, что $I-131$, согласно требованиям правил ядерной безопасности [81], поступает в теплоноситель только из 0,1% общего числа твэлов при контакте с топливом. Выход из твэлов с дефектом типа газовой неплотности, которых должно быть не более 1%, примем равным нулю. Это предположение не повлияет на вывод данных исследований. Из формулы (4.2) следует, что удельная активность прямо пропорциональна числу дефектных твэлов. Вследствие относительно небольшого периода полураспада (8 суток) активность $I-131$ в топливе быстро выходит на стационарный уровень. Из-за снижения энерговыделения с выгоранием активность будет медленно уменьшаться, однако этим можно пренебречь. Часть $I-131$, накапливаемого в диоксиде урана, будет выходить под оболочку твэла, а при ее дефекте в теплоноситель. В стационарном состоянии реактора среднюю скорость поступления $I-131$ из одного твэла в теплоноситель можно определить из соотношения (4.3):

$$q_1 = \xi q_T \delta, \quad (4.3)$$

где ξ – доля $I-131$, вышедшего под оболочку твэла и поступившего в теплоноситель ($0 < \xi \leq 1$);

q_T , – скорость накопления $I-131$ в диоксиде урана в расчете на один ТВЭЛ соответственно, $q_T = \lambda A_T$;

A_T – активность $I-131$ в диоксиде урана в расчете на один ТВЭЛ;

δ – доля $I-131$, выходящего под оболочку (рассчитывалась по программе *CHAIN*).

Тогда выражение (4.2) можно переписать в виде (4.4):

$$a = \frac{\xi \delta \lambda A_T N_d}{M(\lambda + \lambda_0)}. \quad (4.4)$$

В начале кампании ТВС содержание йода в топливе повышается, и увеличиваются градиенты, определяющие утечку данного радионуклида через зерна и поры диоксида урана. Температура топлива в начале кампании составляет 1200°C , максимальный выход $\sim 0,2\%$. Затем концентрация выходит на стационарное значение, температура топлива снижается вследствие уменьшения мощности ТВС. Скорость выхода также снижается с уменьшением коэффициента диффузии, вызванного снижением температуры топлива и уменьшением зазора топливо-оболочка с выгоранием. Это обуславливает средний выход $I-131$ по кампании $0,1\%$ (причем соотношение среднего выхода в начале кампании и в конце составляет $2/3$). Эти данные относятся к герметичному ТВЭЛу. Абсолютный выход из негерметичных ТВЭЛов может отличаться, однако соотношение по частям кампании ТВС сохранится.

Активность $I-131$ в теплоносителе и ее соотношение с числом негерметичных ТВЭЛов будут существенно зависеть от распределения по кампании дефектных ТВЭЛов. Например, если при равномерном по кампании распределении некоторого числа дефектных ТВЭЛов активность $I-131$ находится на уровне, соответствующем пределу, то при сосредоточении дефектных ТВЭЛов во второй половине кампании для достижения предела по активности их число должно быть увеличено примерно вдвое. При еще большем смещении расположения дефектных ТВЭЛов к концу кампании увеличение составит 3-4 раза. Такое

повышение может привести к нарушению предела по числу дефектных ТВЭЛОВ, не обнаруживаемому при контроле с помощью реперного радионуклида *I-131*.

Необходимо отметить, что данное исследование ограничивалось средней по активной зоне ТВС, мощность которой изменяется с выгоранием. При учете пространственной неравномерности ТВС в зоне плато или на периферии проблема необнаруживаемого нарушения предела по числу дефектных ТВЭЛОВ только усугубится.

Таким образом, при установлении пределов по удельной активности йода в теплоносителе следует учитывать зависимость выхода *I-131* из негерметичного ТВЭЛА при прочих равных условиях от его выгорания.

4.1.2 Влияние неравномерности энерговыделения на выход РН

В РБМК топливные каналы в основном в зависимости от расположения в активной зоне могут быть разделены на четыре группы (рисунок 4.1):

- 1 – соседний с поглотителем;
- 2 – соседний с вытеснителем;
- 3 – наиболее удаленный от нерабочих каналов – «в кресте»;
- 4 – расположенный на диагонали между поглотителем и вытеснителем.

Наименьшая мощность соответствует ТВС в канале вблизи поглотителя СУЗ, где поглощение в нерабочем канале вызывает общее уменьшение потока нейтронов.

Канал с вытеснителем СУЗ по своим свойствам может рассматриваться как дополнительный замедлитель, увеличивающий тепловой поток в соседних каналах, поэтому ТВС в каналах вблизи вытеснителя имеет наибольшую мощность.

Расположение ТВС по диагонали между поглотителем и вытеснителем и в кресте является промежуточным между двумя предыдущими и близкими между собой. Мощность диагональной ТВС несколько ниже, чем ТВС «в кресте».

| | | | |
|---|----------|---|----------|
| 4 | 2 | 4 | 1 |
| 2 | В | 2 | 3 |
| 4 | 2 | 4 | 1 |
| 1 | 3 | 1 | П |

В - вытеснитель, П - поглотитель,
 1 – ТВС «рядом с поглотителем»,
 2 – ТВС «рядом с вытеснителем»,
 3 – ТВС «в кресте»,
 4 – ТВС «на диагонали».

Рисунок 4.1 – Схема расположения каналов в полячейке

За одинаковый период максимальное выгорание соответствует ТВС вблизи вытеснителя, минимальное – ТВС возле поглотителя.

Неравномерность энерговыделения по ТВС может быть охарактеризована коэффициентом неравномерности K_r :

$$K_r^{TBC} = W_{max}/W_{средн.},$$

где $W_{средн}$ – среднее по всем твэлам энерговыделение,

W_{max} – максимальное среди всех твэлов ТВС энерговыделение.

Неоднородность решетки приводит к тому, что твэлы одного ряда могут иметь разное энерговыделение в силу своего положения относительно неразмножающего канала, поэтому коэффициент неравномерности лучше всего определять по твэлу с максимальным энерговыделением.

В таблице 4.2 представлена зависимость K_r^{TBC} от глубины выгорания для ТВС с разным расположением.

Таблица 4.2 – Коэффициент неравномерности энерговыделения по ТВС

| Рабочий канал возле поглотителя | | | | | | | | | | |
|---|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| Выгорание, МВт·сут/кг | 0,0 | 0,1 | 2,9 | 5,6 | 8,3 | 11,7 | 14,8 | 17,8 | 20,6 | 23,2 |
| K_r^{TBC} | 1,10 | 1,11 | 1,10 | 1,09 | 1,11 | 1,08 | 1,07 | 1,07 | 1,06 | 1,05 |
| Рабочий канал возле вытеснителя | | | | | | | | | | |
| Выгорание, МВт·сут/кг | 0,0 | 0,1 | 3,4 | 6,6 | 9,6 | 13,4 | 17,0 | 20,3 | 23,3 | 26,1 |
| K_r^{TBC} | 1,11 | 1,12 | 1,11 | 1,11 | 1,09 | 1,09 | 1,07 | 1,07 | 1,06 | 1,05 |
| Рабочий канал на диагонали между поглотителем и вытеснителем | | | | | | | | | | |
| Выгорание, МВт·сут/кг | 0,0 | 0,1 | 3,2 | 6,1 | 9,0 | 12,6 | 15,9 | 19,1 | 22,0 | 24,7 |
| K_r^{TBC} | 1,10 | 1,10 | 1,11 | 1,10 | 1,08 | 1,08 | 1,08 | 1,07 | 1,05 | 1,05 |
| Рабочий канал в кресте между поглотителем и вытеснителем | | | | | | | | | | |
| Выгорание, МВт·сут/кг | 0,0 | 0,1 | 3,2 | 6,2 | 9,1 | 12,8 | 16,2 | 19,4 | 22,4 | 25,2 |
| K_r^{TBC} | 1,07 | 1,07 | 1,07 | 1,06 | 1,06 | 1,05 | 1,05 | 1,04 | 1,03 | 1,03 |
| Рабочий канал в однородной решетке | | | | | | | | | | |
| Выгорание, МВт·сут/кг | 0,0 | 0,1 | 3,1 | 6,0 | 9,0 | 10,2 | 14,6 | 18,7 | 22,1 | 26,0 |
| K_r^{TBC} | 1,06 | 1,06 | 1,06 | 1,05 | 1,05 | 1,04 | 1,03 | 1,03 | 1,02 | 1,02 |

Из таблицы 4.2 следует, что учет влияния неоднородности решетки на распределение энерговыделения по ТВС увеличивает коэффициент неравномерности до 1.10÷1.12 при малых выгораниях, причем наибольшее увеличение соответствует ТВС, расположенной рядом с вытеснителем, т.е. в области наибольшего потока. Расположение ТВС «в кресте» наиболее близко к условиям однородной решетки. С увеличением глубины выгорания распределение энерговыделения по ТВС выравнивается.

Распределение энерговыделения по твэлам ТВС со свежим отравленным (с учетом ксенона) топливом (0,1 МВт·сут/кг) для всех положений показано на рисунке 4.2. Энерговыделение в каждом твэле нормировалось на среднее по всем твэлам ТВС.

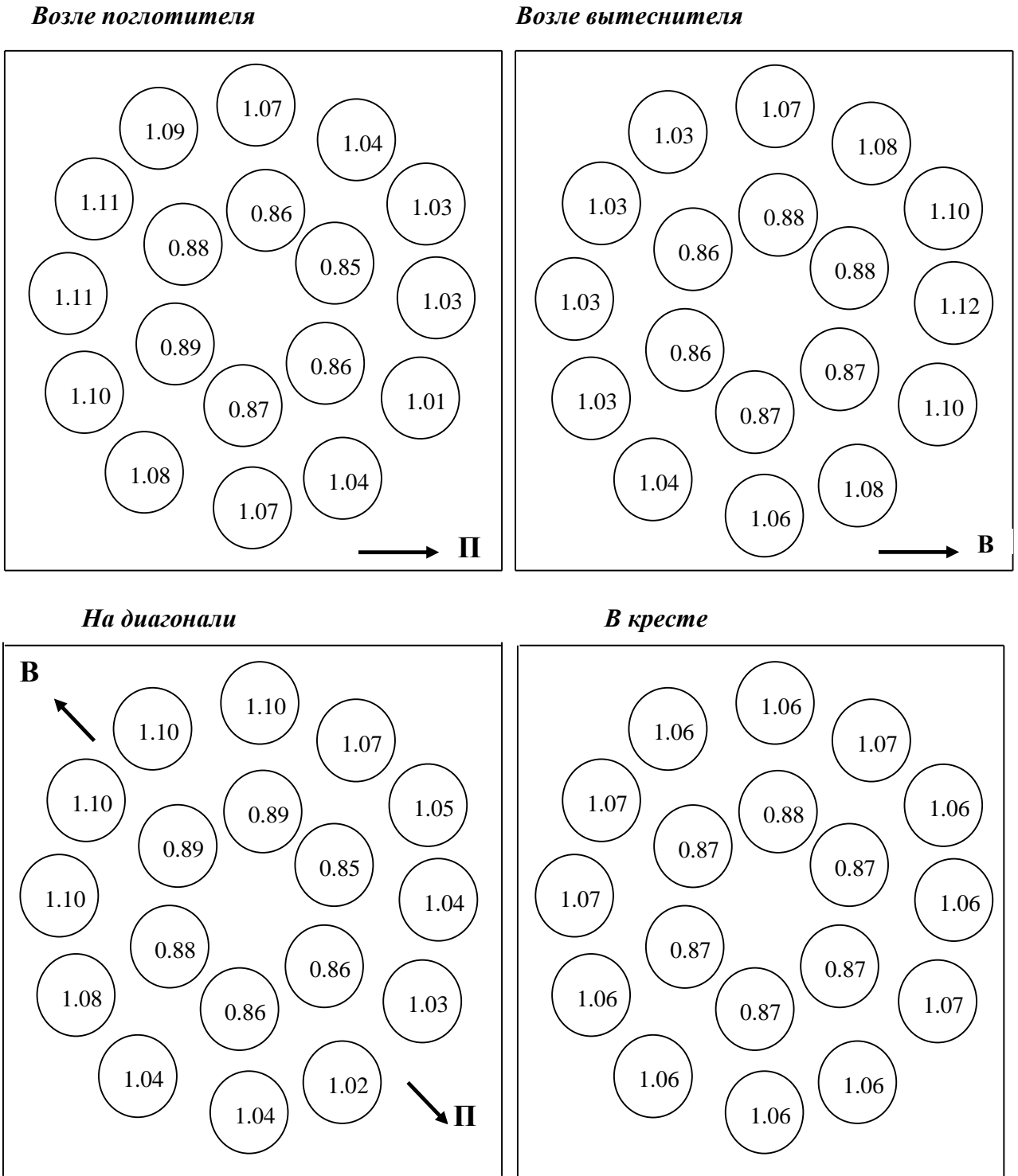


Рисунок 4.2 – Распределение энерговыделения по твэлам ТВС в зависимости от ее положения в полячейке

Как видно из рисунка 4.2, близость нерабочего канала в большей мере сказывается на твэлах внешнего ряда, обращенных в его сторону. Энерговыделение во внутреннем ряде твэлов практически одинаково при любом положении ТВС в полячейке.

На рисунке 4.3 схематично показано распределение потока тепловых нейтронов в ячейке реактора РБМК. Изменение потока тепловых нейтронов по радиусу топливной сборки приводит к тому, что в твэлах должна наблюдаться радиально-азимутальная неравномерность поля энерговыделения. Кроме того, поле энерговыделений будет зависеть от спада потока в самом топливе, а также пространственного распределения делящихся ядер в нем (уран, плутоний).

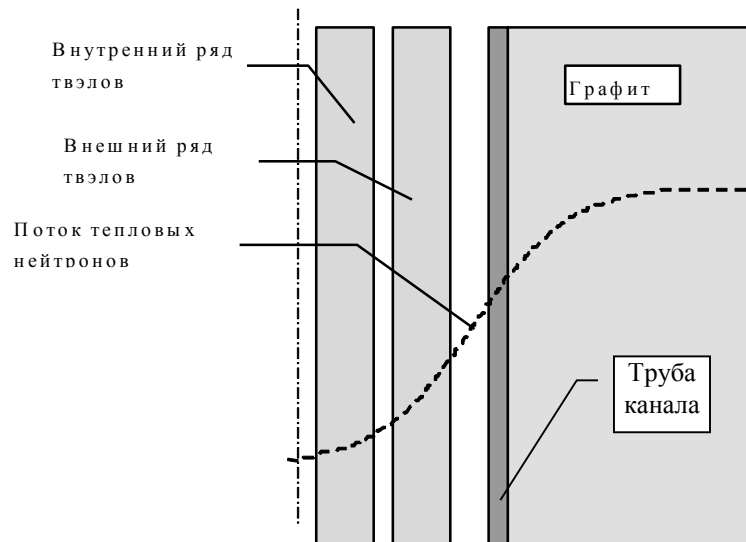


Рисунок 4.3 – Распределение потока тепловых нейтронов в ячейке реактора РБМК

На рисунке 4.4 показан радиальный профиль относительного энерговыделения при глубине выгорания 1 МВт·сут/кг и 14 МВт·сут/кг. На приведенных кривых видно существенное превышение энерговыделения в узком периферийном слое каждого твэла над энерговыделением внутренних топливных зон.

С увеличением глубины выгорания мощность ТВС в целом падает, что отражается на уровне энерговыделения во внутренних зонах твэлов. В то же время энерговыделение периферийных слоев топлива, особенно обращенных в сторону графитового блока, продолжает расти за счет интенсивного образования $Pu-239$, что приводит к усилению неравномерности энерговыделения.

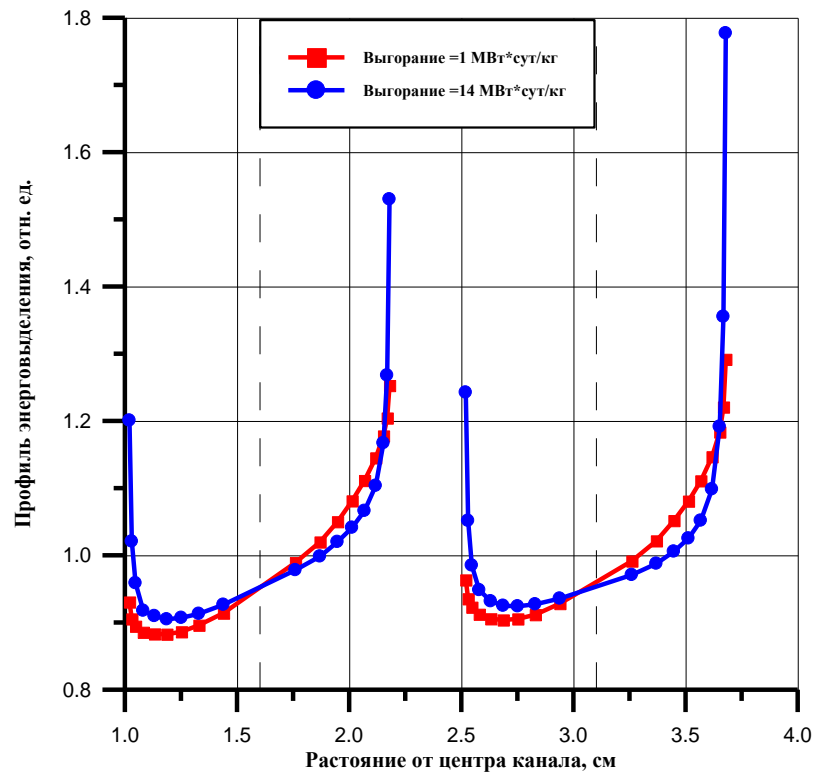


Рисунок 4.4 – Распределение энерговыделения по радиусу твэлов

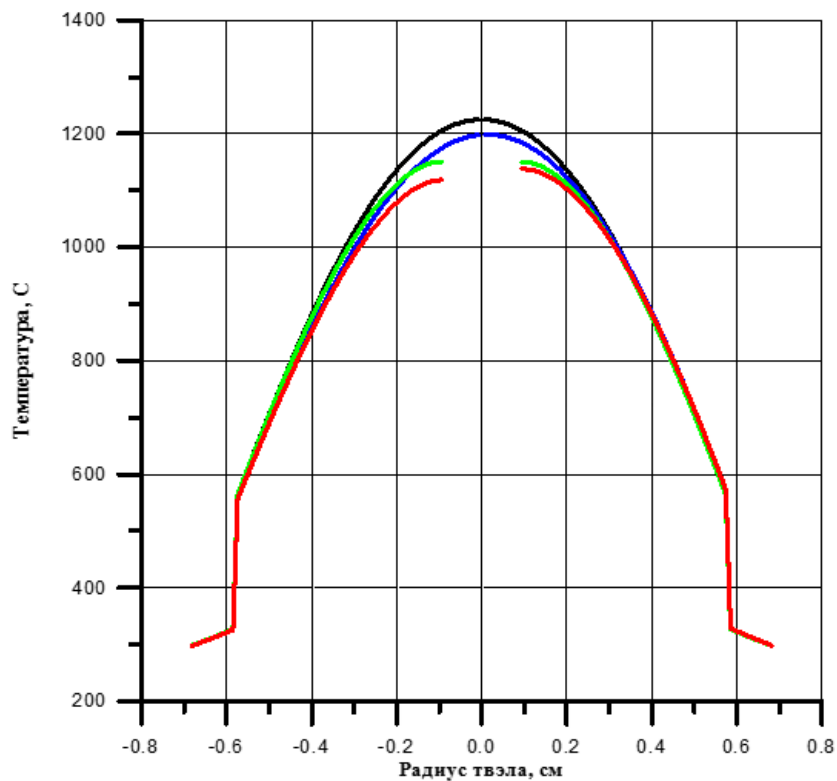


Рисунок 4.5 – Распределение температуры по радиусу твэла с учетом неравномерности профиля энерговыделения и без:

- топливная таблетка без центрального отверстия, без учета профиля энерговыделения,
- топливная таблетка без центрального отверстием, с учетом профиля энерговыделения,
- топливная таблетка с центральным отверстием, без учета профиля энерговыделения,
- топливная таблетка с центральным отверстием, с учетом профиля энерговыделения.

Учет коэффициента неравномерности энерговыделения по твэлам в ТВС, который может достигать величины 1,12 (обычно в расчетах используется величина 1,06), вызванный неоднородностью решетки РБМК, приводит к повышению максимальной температуры топлива на $\sim 100^\circ\text{C}$.

Эффекты неравномерности энерговыделения будут приводить к повышению выхода продуктов деления, в том числе за счет локального возрастания температуры топлива в конкретном канале.

Учет неравномерности профиля энерговыделения по твэлам снижает температуру в центре топлива на $\sim 30^\circ\text{C}$, а по краям топлива температура повышается незначительно на $\sim 1\div 2^\circ\text{C}$ (рисунок 4.5). Влияние данного эффекта на выход продуктов деления из топлива не существенно.

В таблице 4.3 приведены расчеты выхода цезия-137 для трех случаев: когда относительное энерговыделение равно 0,88 (соответствует твэлу внутреннего ряда), 1,06 (среднее значение для твэла внешнего ряда) и 1,12 (максимальное значение для твэла внешнего ряда).

Таблица 4.3 – Расчет выхода цезия-137 для различных значений относительного энерговыделения (K_r)

| Выход цезия из топлива, отн. ед. Выгорание 10 МВтсут/кг | | |
|--|------------|------------|
| $K_r=0,88$ | $K_r=1,06$ | $K_r=1,12$ |
| 0,0148 | 0,0198 | 0,0217 |
| Выход цезия из топлива, отн. ед. Выгорание 20 МВтсут/кг | | |
| $K_r=0,88$ | $K_r=1,06$ | $K_r=1,12$ |
| 0,0176 | 0,0202 | 0,0208 |
| Выход цезия из топлива, отн. ед. Выгорание 25 МВтсут/кг | | |
| $K_r=0,88$ | $K_r=1,06$ | $K_r=1,12$ |
| 0,0183 | 0,0200 | 0,0202 |

Таким образом, учет внутрикассетной неравномерности энерговыделения влияет на величину выхода РН (за счет локального возрастания температуры), но не слишком значительно.

4.2 Выход радиоактивных веществ при реактивных авариях

Реактивные аварии представляют собой отдельную группу аварий, в которых возможно кратковременное значительное увеличение энерговыделения, а, следовательно, и температуры топлива.

Описание подобных сценариев аварий с точки зрения моделирования выхода продуктов деления достаточно затруднительно в силу того, что события и процессы, сопровождающие течение аварии, сложны и многообразны. Поскольку повреждение топлива происходит при работе реактора на повышенной мощности (пусть и доли секунд), то возникает рост температуры, которая, однако, не сразу вернется к исходным значениям. Данная авария может продемонстрировать более ранний (по сравнению с полным обесточиванием, например, где необходимо время для достижения высоких температур) и более высокий выход продуктов деления из топлива и, соответственно, в окружающую среду.

Вопрос о выходе радиоактивных веществ в результате всплеска энерговыделения в реактивных авариях изучался в специальных экспериментах [90, 91]. В этих экспериментах фрагмент топлива, полученный из твэла реактора *LWR*, облучавшегося до выгорания 45 МВт·сут/кг, помещался в импульсный исследовательский реактор, на котором производился всплеск нейтронной мощности (интересно отметить, что в статье [90] речь идет о фрагменте, изготовленном из твэла реактора *BWR* блока № 3 АЭС Фукусима до аварии 2011 года). Показано, что в результате всплеска мощности 10^4 номинала и длительностью около 10 мс выход РВ под оболочку твэла возрастет примерно на порядок от исходной величины (перед всплеском), которая составляла ~1% от накопленного в диоксиде урана количества РВ. В [90, 91] отмечено, что по оценкам температура фрагмента твэла в результате всплеска повышалась до уровня ~2000°C.

Объяснение такому скачкообразному повышению выхода РВ в результате всплеска энерговыделения, предлагаемое в [90], заключается в следующем. Данное повышение происходит из-за образования межзеренных микротрещин, возникающих из-за резкого роста энерговыделения и формирования

дополнительных туннелей для выхода из диоксида под оболочку (необходимо отметить, что рассматриваются только случаи нефрагментированного ТВЭЛ, т.е. целостность топлива после всплеска сохраняется).

В [92, 93] отмечается, что построить теоретическую модель для расчетов повышения выхода при всплеске оказывается достаточно сложно. Если в [92] предлагается подход с подгонкой под экспериментальные данные (нейросеть), то в [93] подобная модель разрабатывалась, но отличие ее результатов от экспериментальных данных составляет разы, а в отдельных случаях достигает порядка величины (расчет занижает значения).

Для изучения возможности использования программы «*CHAIN*» в анализе подобных процессов было проделано следующее.

4.2.1 Оценка выхода при всплеске мощности

Образование и выход РН в *CHAIN* описывается уравнением (2.1). Основной выход РН из топлива происходит через пористость в диоксиде, в приведенном уравнении (2.1) ему соответствует член $\Sigma \cdot N$. Пренебрегая выходом через геометрические поверхности (первый член в уравнении (2.1)) и учитывая, что интерес представляет в первую очередь относительно долгоживущие РН (пренебрегаем $\lambda \cdot N$ и q – данные параметры ответственны за генерацию РН при всплеске), получим приближенное решение уравнения в виде (4.5):

$$N(t) = N_0 e^{-\Sigma t}, \quad (4.5)$$

где $N(t)$ – содержание РН в топливе.

Данное решение позволит оценить время, за которое в результате всплеска энерговыделения и соответствующего всплеска температуры может быть получен выход РН порядка 10% от накопленного.

Предположим, что в результате всплеска температура диоксида скачкообразно повышается до уровня 2300 К и остается на этом уровне.

Коэффициент диффузии, определяемый с учетом (4.5), при такой температуре составит $0,83 \cdot 10^{-14}$ м²/с. Следует заметить, что коэффициент диффузии в используемой в *CHAIN* модели представляется в виде трех

составляющих (уравнение (2.17)). Плотность делений в импульсе возрастает на 4 порядка. Однако, как показывают расчеты, рост коэффициента диффузии за счет возрастания плотности делений (n) не имеет существенного значения. Коэффициент диффузии за счет возрастания n увеличивается с $0,83 \cdot 10^{-14}$ до $1,03 \cdot 10^{-14}$ м²/с. Величина $\Sigma = \frac{12\xi \cdot D}{d_3^2}$. Тогда из формулы (4.5) можно получить время, за которое отношение $N(t)/N_0$ уменьшится до 0,9:

$$t = \frac{1}{\Sigma} \ln 0,9 \approx 200 \text{ с.} \quad (4.6)$$

Т.е. данное время значительно превышает время возрастания температуры за счет всплеска энерговыделения, которое оценивается ниже.

4.2.2 Оценка всплеска температуры при всплеске энерговыделения

Известно, что температура топлива изменяется по отношению к изменению энерговыделения с запаздыванием. Приближенно поведение температуры может быть описано уравнением (4.7):

$$\tau_T \frac{dT}{dt} = P - T, \quad (4.7)$$

где τ_T – постоянная времени прогрева твэла, с;

T – температура твэла, отн. ед;

P – скорость энерговыделения, отн. ед.

Необходимо отметить, что P – энерговыделение твэла перед всплеском (порядка 1% от номинала изначальной мощности). Нагрев происходит за счет всплеска и за счет остаточного энерговыделения после всплеска.

Величина τ_T для твэлов реактора *LWR* находится на уровне 5 с, что и определяет запаздывание. Кроме того, для случаев подобных экспериментов со значительным всплеском нейтронной мощности в величине $P(t)$ следует учесть (помимо энерговыделения за счет всплеска нейтронной мощности в импульсе) также и существенное возрастание остаточного энерговыделения после импульса. Это остаточное энерговыделение инициируется скачкообразной генерацией ряда

короткоживущих продуктов деления в ходе всплеска нейтронной мощности. Последующий распад этих продуктов деления растягивает во времени импульс энерговыделения в исследуемом твэле и, соответственно, расширяет всплеск температуры топлива.

На рисунке 4.6 показаны зависимости остаточного энерговыделения от времени после импульса величиной в 10^4 номинала, полученные расчетом по программе *CHAIN*. Приведены зависимости для импульса шириной 10 мс и 500 мс, 10 мс соответствует ширине в экспериментах, а 500 мс соответствует ширине, характерной для всплеска в гипотетической аварии типа *RIA* на РБМК, в частности похожая ширина была получена в статье [94], посвященной анализу аварии на 4-м блоке Чернобыльской АЭС. Более широкий импульс в случае РБМК объясняется большим временем жизни нейтронов, которое для РБМК находится на уровне 10^{-3} с, а в экспериментах на исследовательских реакторах предположительно на уровне 10^{-5} с [95].

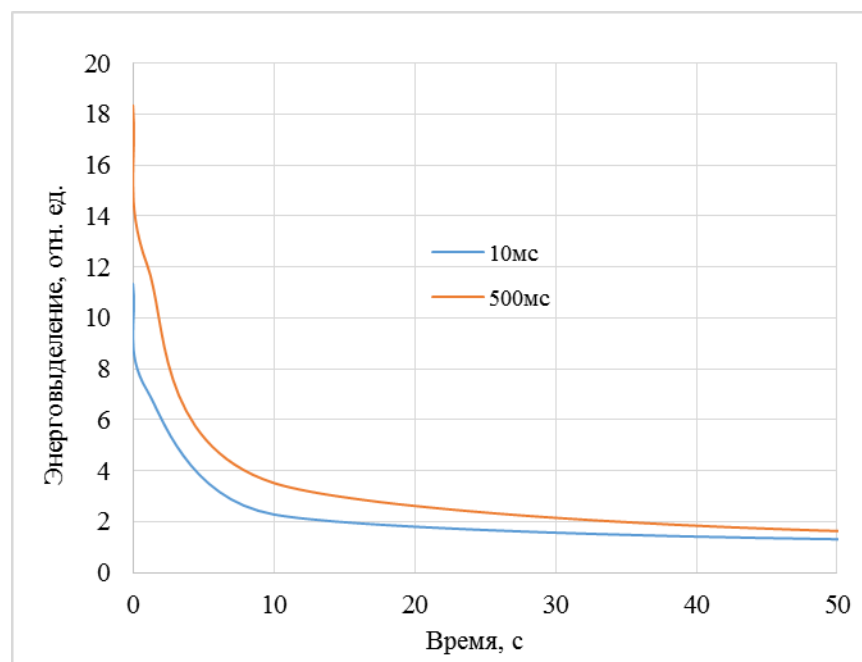


Рисунок 4.6 – Зависимости остаточного энерговыделения от времени при различной ширине всплеска мощности

Остаточное энерговыделение на рисунке 4.6 дано в относительных единицах, где за 1 принято остаточное энерговыделение непосредственно после останова с номинальной мощности (т.е. около 6% от номинала).

Видно, что после окончания всплеска нейтронной мощности энерговыделение в твэле за счет генерированных во всплеске короткоживущих продуктов деления будет сохраняться на достаточно высоком уровне, порядка номинала, еще в течение нескольких секунд.

На рисунке 4.7 показано как изменяется температура после всплеска без учета и с учетом остаточного энерговыделения, генерированного в результате всплеска. Расчет проведен для всплеска шириной 10 мс. При ширине 500 мс и таком же интегральном энерговыделении около 500 Дж/г результаты практически аналогичные.

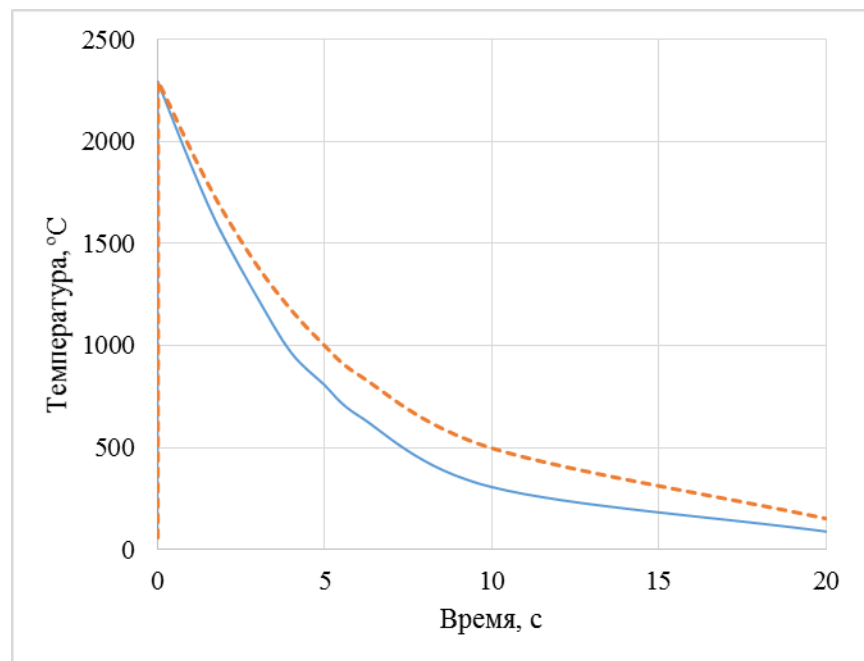


Рисунок 4.7 – Спад температуры после всплеска мощности: – без учета остаточного энерговыделения, - - - с учетом остаточного энерговыделения.

Видно, что время, в течение которого температура держится на уровне около 2000°C, составляет около 1 с, и учет остаточного энерговыделения после всплеска в данном случае оказывается незначительным.

Возвращаясь к соотношению [92], можно оценить масштаб скачкообразного увеличения коэффициента диффузии, при котором в рамках рассматриваемой модели, используемой в программе *CHAIN*, можно получить требуемое увеличение выхода РН за счет всплеска. По оценке коэффициент диффузии должен возрасти из-за всплеска на два порядка. Данная оценка приемлема,

учитывая крайне сильную зависимость (см. табл. 4.4) коэффициента диффузии от температуры.

Зависимость коэффициента диффузии от температуры приведена в таблице 4.4.

Таблица 4.4 – Зависимость коэффициента диффузии от температуры

| № | Температура, К | Коэффициент диффузии, м ² /с |
|---|----------------|---|
| 1 | 2300 | $0,83 \cdot 10^{-14}$ |
| 2 | 1800 | $0,89 \cdot 10^{-15}$ |
| 3 | 1300 | $0,44 \cdot 10^{-16}$ |
| 4 | 800 | $0,49 \cdot 10^{-20}$ |

Видно, что коэффициент диффузии растет на 6 порядков с увеличением температуры от 800 до 2300 К. Его коррекция на два порядка, для учета всплеска энерговыделения при исходных событиях типа *RIA*, позволяет получить наблюдаемое увеличение выхода за короткое время после импульса.

В качестве примера ниже приводятся результаты расчета исходного события типа *RIA* с указанной коррекцией коэффициента диффузии, где интегральное энерговыделение находится на уровне 500 Дж/г, а всплеск энерговыделения по времени длится 10 мс (см. рисунок 4.7). Почти скачкообразно температура возрастает до 2300°C, а затем быстро снижается.

Выход долгоживущего РН (на примере цезия-137) под оболочку твэла возрастает с 2,4% до всплеска до 23,4% после всплеска.

Таким образом, с помощью подобной корректировки программа может описать существенное возрастание выхода при исходном событии типа *RIA*. С точки зрения анализа безопасности следует иметь ввиду существенное возрастание содержания радионуклидов под оболочкой для твэлов после аварийных событий типа *RIA*.

4.3 Оценка массы топлива в кладке РБМК в результате аварии

Рассмотрим аварийную ситуацию с попаданием топлива в графитовую кладку из-за пережога твэлов и канальной трубы, аналогичную тем, которые произошли на энергоблоках РБМК за время их эксплуатации [98]. Такие

инциденты произошли, например, на Ленинградской АЭС в 1975 и 1992 году, а также в 1982 году на первом энергоблоке Чернобыльской АЭС [71]. Например [71], в 1975 году на энергоблоке № 1 Ленинградской АЭС, вследствие переотравления реактора после остановки с мощности 2800 МВт (тепл.) и при последующем её подъеме, возникла значительная неравномерность поля энерговыделения по объёму активной зоны со смещением максимума в нижнюю половину нулевого квадранта. В результате локального и достаточно длительного (в течение примерно 20÷25 минут) повышения мощности в группе топливных каналов в зоне максимума энерговыделения возник кризис теплообмена и перегрев твэлов. Ряд твэлов потерял герметичность, произошел пережог и разрыв канальной трубы, а в наиболее теплонапряженном канале ячейки 13-33 часть твэлов была разрушена, что привело к попаданию в графитовую кладку реактора фрагментов ядерного топлива. В 1992 году на энергоблоке № 3 Ленинградской АЭС [71] при работе на номинальной мощности в одном канале появился сигнал «снижение расхода воды», и через 5 с по сигналу повышения избыточного давления в РП (реакторном пространстве) сработала быстрая аварийная защита, и реактор был заглушен. Причиной нарушения подачи теплоносителя в канал стало механическое разрушение втулки ЗРК в сечении штифтов. Под действием вибраций и перепада давлений седло клапана сдвинулось вверх и перекрыло проходное сечение. При мощности канала 1960 кВт возник кризис теплообмена, который привел к резкому повышению температуры оболочек твэлов, а затем и трубы канала до 650-800 °С. Началась деформация циркониевой части канала. После исчерпания диаметрального зазора между трубой, графитовыми кольцами и графитовыми блоками началось нарастание контактного давления с одновременным утонением стенки трубы и затеканием металла в зазоры колец и втулок. Далее произошло разрушение графитового блока, ускорилась деформация трубы, и она разрушилась в наиболее утоненном сечении. Аварийное разрушение канала на первом энергоблоке ЧАЭС произошло в 1982 году [71]. Энергоблок был пущен после окончания планового ремонта. Осуществлялся пуск турбогенератора, появился сигнал повышения давления в реакторном

пространстве, и было зафиксировано повышение активности газовой смеси на выходе из РП. Оператор, дополнительно обнаружив захлаживание графита во втором квадранте, резкое изменение токов ионизационных камер, массовую аварийную сигнализацию повышения температуры газа в ячейках каналов, заглушил реактор аварийной защитой. В процессе расследования причин аварии было установлено, что в канале 62-44 для обеспечения среднезонального расхода теплоносителя потребовалось дополнительное открытие запорно-регулирующего клапана (ЗРК). Ремонтный персонал воспринял этот факт как неисправность клапана и, нарушив правила обеспечения безопасности, приступил к ее устранению. Клапан был закрыт, поступление воды в канал прекратилось, начался разогрев твэлов с расчетной скоростью 10-12 °С/с. Перегретые и разрушенные твэлы были вынесены потоком теплоносителя через сечение разрыва в образовавшуюся в графитовой кладке полость.

Количество топлива и его состав после многих лет облучения в кладке представляет интерес в задачах вывода реактора из эксплуатации, т.к. для получения лицензии на вывод из эксплуатации необходимо подтвердить отсутствие ядерных материалов (ограничение на содержание урана, плутония). Для анализа количества просыпей топлива, проникших и оставшихся в графитовой кладке, можно использовать 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 в первую очередь 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 4.5. Поскольку положение фрагментов и их размер неизвестны, то рассматривался вариант расположения просыпей на внешней поверхности графитового блока (для консерватизма). Размер фрагментов оказывает влияние на величину сечения взаимодействия с нейтронами и, соответственно, на скорость реакций. При больших размерах происходит энергетическая блокировка сечений, особенно существенная в резонансной области энергий. Эффект блокировки приводит к изменению скорости реакций деления и захвата и, соответственно, влияет на процесс накопления тяжелых ядер, подверженных спонтанному делению. В зависимости от размера результаты могут отличаться примерно в 1,5 раза.

Таблица 4.5 – Удельная активность ИРГ в топливе, ГБк/г

| Радионуклид | Активность |
|---------------|------------|
| <i>Kr-85m</i> | 2,37 |
| <i>Kr-87</i> | 5,17 |
| <i>Kr-88</i> | 6,63 |
| <i>Xe-133</i> | 40,5 |
| <i>Xe-135</i> | 6,54 |
| <i>Xe-138</i> | 30,6 |

Доли РН, находящихся вне диоксида урана, также определены в расчетах по программе *CHAIN* с помощью блока, моделирующего выход РН и представлены в таблице 4.6.

Таблица 4.6 – Выходы РН в зависимости от размера частиц диоксида, %

| № | РН | 50мкм | 500мкм |
|----|---------------|-------------|--------|
| 1 | <i>Kr-85m</i> | 1,04 | 1,05 |
| 2 | <i>Kr-87</i> | 0,35 | 0,35 |
| 3 | <i>Kr-88</i> | 0,72 | 0,72 |
| 4 | <i>Xe-133</i> | 6,89 (4,2) | 6,92 |
| 5 | <i>Xe-135</i> | 1,98 (0,58) | 1,98 |
| 6 | <i>Xe-138</i> | 0,07 | 0,07 |
| 10 | <i>Cs-134</i> | 32,6 | 34,2 |
| 11 | <i>Cs-137</i> | 57,7 | 60,3 |

В таблице 4.6 для $Xe-133$ и $Xe-135$ в скобках указаны значения выходов, которые получаются без учета их образования из уже вышедших материнских изотопов $I-133$ и $I-135$, соответственно. В расчётах учитывался эффект измельчения размеров зерен диоксида при превышении выгоранием величины 50 МВт·сут/кг. Благодаря этому эффекту значительно возрастает выход долгоживущих РН (например, изотопов цезия). Однако выход короткоживущих РН остаётся на достаточно низком уровне.

Существенной зависимости выхода от размеров частиц диоксида для всех РН не наблюдается.

Необходимо отметить, что температура, для которой был проведен расчет в таблице 4.6, составила 600°C – это температура окружающего графита, что является некорректным граничным условием для данной задачи. Частицы топлива, которые, возможно застряли в зазорах между каналами и графитом, будут также нагреваться за счет собственного энерговыделения. Расчет показал, что температура частиц может достигать уровня $\sim 1000^{\circ}\text{C}$. В таблице 4.7 приведены доли выходящих РН за пределы топлива (по сравнению с количеством, образовавшимся в топливной частице). Обращает на себя внимание существенное увеличение (на порядок) выхода для $Xe-138$ с увеличением температуры от 600 до 1000°C .

Таблица 4.7 – Зависимость количества выходящих из топлива РН от температуры

| РН (период полураспада, час) | Доля выходящего РН, ε % | | |
|---------------------------------|-------------------------|---------|----------|
| | T=600°C | T=800°C | T=1000°C |
| <i>Kr-85m</i> (4,48) | 1,04 | 1,42 | 3,37 |
| <i>Kr-87</i> (1,27) | 0,35 | 0,51 | 1,94 |
| <i>Kr-88</i> (2,84) | 0,72 | 1,01 | 2,88 |
| <i>Xe-133</i> (125,76) | 6,89 | 7,55 | 9,06 |
| <i>Xe-135</i> (9,08) | 1,98 | 2,67 | 6,34 |
| <i>Xe-138</i> (0,23) | 0,07 | 0,10 | 0,53 |

Удельная объемная активность РН в РП (Бк/м³) может быть определена из простого соотношения (4.8):

$$A_V = \frac{A_{\text{вых.измер.}}}{R_{\text{см}}}, \quad (4.8)$$

где $A_{\text{вых.измер.}}$ – активность, измеряемая на выходе из РП, Бк/час;

$R_{\text{см}}$ – расход смеси, м³/час.

По величине объемной активности может быть оценена масса топлива, находящегося в кладке, в процессе деления которого образуются ИРГ. Эта масса связана с измеряемой активностью соотношением (4.9):

$$m = \frac{A_{\text{вых.измер.}}}{A_{\text{вых1}}}, \quad (4.9)$$

где $A_{\text{вых1}}$ – активность, которая фиксировалась бы на выходе при единичной массе топлива в кладке.

Величину $A_{\text{вых1}}$ можно определить из соотношения (4.10):

$$A_{\text{вых1}} = A_{\text{РП}} \frac{R_{\text{см}}}{V}, \quad (4.10)$$

где $A_{\text{РП}}$ – установившееся значение активности РН в РП, Бк;

V – объем РП (свободный), м³.

$A_{РП}$ может быть определено из следующего соотношения (4.11):

$$A_{РП} = \frac{Q}{\lambda_{эф}} \varepsilon, \quad (4.11)$$

где Q – скорость генерации активности в топливе, Бк/час;

ε – доля активности, выходящая за пределы топлива;

$\lambda_{эф}$ – эффективная постоянная ухода за счет распада и продувки ($\lambda_{п} = R/V$).

$Q = \lambda A_{топл}$, где $A_{топл}$ – стационарная активность в топливе (Бк/г).

Отсюда следует, что активность на выходе из РП связана с активностью, накопленной в топливе, соотношением (4.12):

$$A_{вых1} = 0,693 \cdot \frac{A_{топл} \cdot \varepsilon}{T + T_{п}}, \quad (4.12)$$

где T – период полураспада РН;

$T_{п}$ – период, соответствующий удалению половины РН продувкой.

Исходя из формул выше, активность ИРГ, которую можно измерить на выходе из реакторного пространства можно связать с массой и активностью топлива по соотношению (4.13):

$$A_{вых.измер} = m \cdot A_{вых1} = 0,693 \cdot m \cdot \frac{A_{топл} \cdot \varepsilon}{T + T_{п}} \quad (4.13)$$

С использованием данных таблиц 4.5÷4.7 и формулы (4.13) была выполнена оценка активности для каждого ИРГ. Предполагалось, что на момент 45 лет эксплуатации в графитовой кладке присутствует один килограмм топлива. Результаты представлены в таблице 4.8.

Таблица 4.8 – 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.

4.4 Модуль расчета выхода РВ в аварии с полным обесточиванием энергоблока

Выброс продуктов деления обычно ограничивается при нормальных условиях эксплуатации.

При нарушении условий и пределов безопасной эксплуатации и возникновении аварии, проектные аварии могут перерасти в более тяжелую форму – в запроектные аварии. Также, если моделирование любых проектных аварий нормативные документы [1] 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. В главах выше обсуждался выход РН из одного твэла (или одной ТВС), для реалистичного прогноза развития запроектной аварии с полным обесточиванием необходимо знать о полномасштабном выходе радионуклидов, т.е. необходимо учитывать состояние каждой конкретной ТВС: ее выгорание, температуру, расположение в активной зоне. Для анализа этой аварии в РБМК в НИЦ «Курчатовский институт» разработано программное средство *STEPAN-T* [84], в котором одной из центральных задач является задача оценки выхода РВ при полном обесточивании энергоблока. Массивы данных, полученные по ПС *CHAIN*, передаются в программу *STEPAN-T* и далее обрабатываются для каждой ТВС отдельно.

ПС *STEPAN-T* предназначено для моделирования разогрева обезвоженного РБМК при аварии с полным обесточиванием [84]. В данном ПС реализованы следующие задачи: расчет температурных полей в активной зоне; расчет температурных полей окружающих реактор конструкций; прогнозирование изменения конфигурации расположения топлива и поглотителей при разогреве; определение изменения подкритичности за счет изменения температур и упомянутых конфигураций, и оценка возможности возникновения повторной критичности; определение объемов сгенерированного водорода; расчет выхода радиоактивных веществ из топлива. Разогрев обезвоженного реактора приведет к разрушениям, выходу активности, но для понимания возможности ослабления радиационных последствий развития аварии на тяжелой стадии требуется установить характер и временную последовательность разрушений. Для этого необходимо решать следующие задачи:

- рассчитывать температуры в активной зоне;
- рассчитывать температуры окружающих реактор конструкций;
- прогнозировать изменения конфигурации расположения топлива и поглотителей при разогреве;

– с учетом рассчитанных температур и прогнозируемых конструктивных изменений оценивать выход радиоактивных веществ из топлива, что необходимо для оценки радиационных последствий аварии.

Программа *STEPAN-T* начинает работу с расчета состояния на мощности перед аварией. Затем предполагается останов реактора, и следует пошаговый расчет температурных полей.

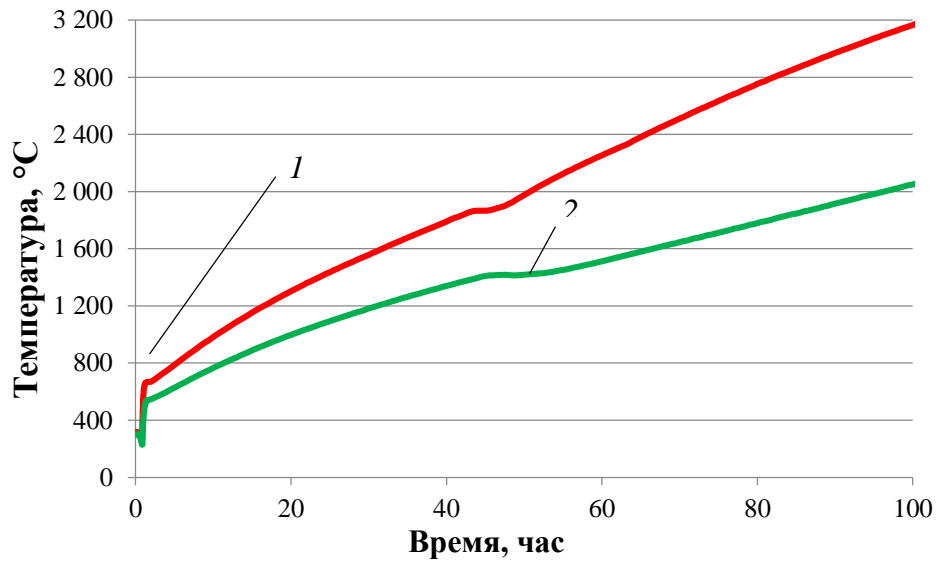
При возникновении запроектной аварии с полным обесточиванием, если не принимать никаких мер по ее управлению, теплоноситель в реактор перестанет подаваться, вода будет постепенно испаряться из-за повышения температур, как следствие реактор обезводится, оставшись без охлаждения начнется разогрев. При разогреве обезвоженного реактора после достижения уровня температуры твэлов 700°C предполагается разгерметизация твэлов и выход в КМЩ накопленных под оболочками радионуклидов. При дальнейшем повышении температуры начинается дополнительный выход РН, теперь уже тех, которые содержатся в топливной матрице. При этом вначале выходят ИРГ и летучие продукты деления – йод, цезий, теллур, а при бóльших температурах начинают выходить из топливной матрицы продукты деления пониженной степени летучести.

Именно решению задачи оценки выхода радиоактивных веществ в ходе аварии и разработке соответствующего блока для программы *STEPAN-T* посвящена работа, изложенная в данном разделе.

Задача определения выхода РН из твэлов решается блоком *CHAIN* в программе *STEPAN-T*. 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 4.8 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 4.8 - 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 4.9, 4.10 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 4.9 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).

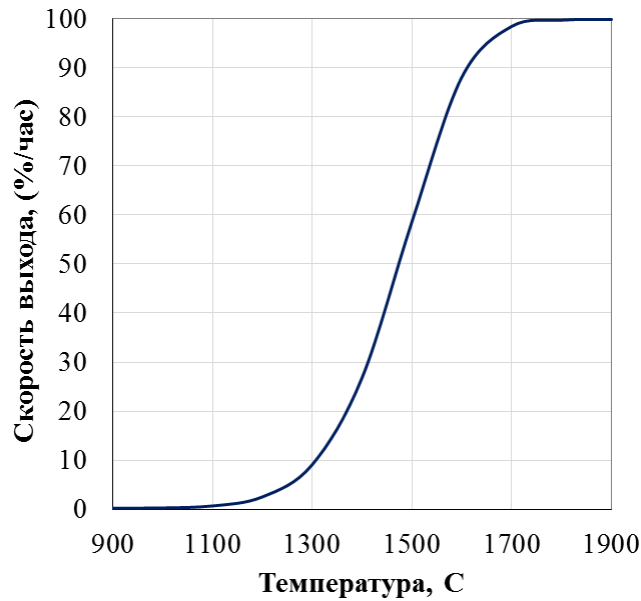


Рисунок 4.9 – Зависимость от температуры скорости выхода для *I-131*

На рисунке 4.10 показана аналогичная зависимость для рутения-103, представляющего группу слаболетучих продуктов деления.

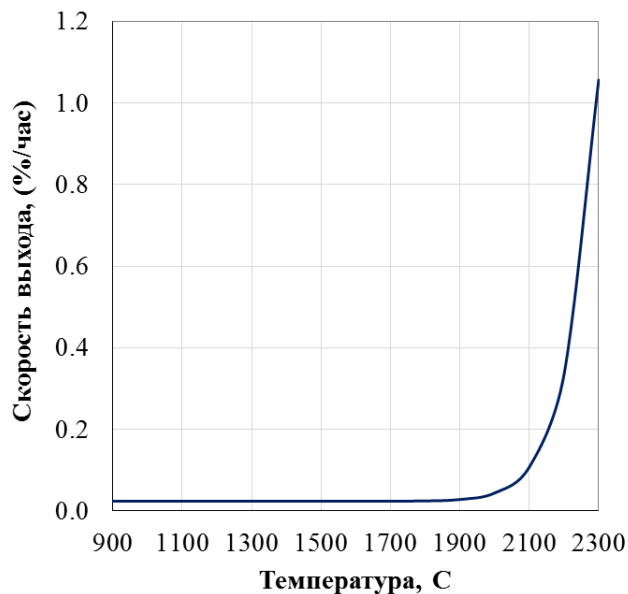


Рисунок 4.10 – Зависимость от температуры скорости выхода для *Ru-103*

Из рисунка 4.9 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). Здесь необходимо отметить, что при возникновении аварии данные температуры предполагаются одинаковыми по радиусу таблетки, т.е. на периферии (где температура топлива обычно меньше) будет такая же температура, как и в центре.

Для РН с пониженной степенью летучести необходима бóльшая температура и более длительное время выдержки для процесса выхода из топлива.

На основе данных, приведенных на рисунках 4.9 и 4.10, для использования в программе *STEPAN-T* приняты следующие значения скоростей выхода РН из топливной матрицы при нагреве.

Для двенадцати летучих РН (*Kr-85m*, *Kr-87*, *Kr-88*, *Xe-133*, *Xe-135*, *I-131*, *I-132*, *I-133*, *I-134*, *I-135*, *Cs-134*, *Cs-137*) скорость выхода (в % от накопленного в час) принята:

| | | |
|-----|-----|---|
| 0 | при | $T < 1000^{\circ}\text{C}$ |
| 1 | при | $1000^{\circ}\text{C} < T < 1200^{\circ}\text{C}$ |
| 10 | при | $1200^{\circ}\text{C} < T < 1400^{\circ}\text{C}$ |
| 50 | при | $1400^{\circ}\text{C} < T < 1600^{\circ}\text{C}$ |
| 100 | при | $T > 1600^{\circ}\text{C}$ |

Для каждого РН пониженной степени летучести принята своя расчетная скорость выхода.

Для примера работы программы *STEPAN-T* в таблице 4.9 приведены величины накопленной в реакторе активности, содержащейся во всех твэлах, для 28 РН.

Таблица 4.9 – Величины накопленной в реакторе активности

| № | Радионуклид | Накопленная активность, Бк |
|----|---------------|----------------------------|
| 1 | <i>Kr-85m</i> | 7,11E+17 |
| 2 | <i>Kr-85</i> | 4,11E+16 |
| 3 | <i>Kr-87</i> | 1,60E+18 |
| 4 | <i>Kr-88</i> | 2,38E+18 |
| 5 | <i>Sr-89</i> | 3,66E+18 |
| 6 | <i>Sr-90</i> | 2,82E+17 |
| 7 | <i>Mo-99</i> | 5,71E+18 |
| 8 | <i>Ru-103</i> | 4,50E+18 |
| 9 | <i>Ru-106</i> | 1,26E+18 |
| 10 | <i>Te-132</i> | 3,84E+18 |
| 11 | <i>I-129</i> | 1,34E+11 |
| 12 | <i>I-131</i> | 2,93E+18 |
| 13 | <i>I-132</i> | 3,94E+18 |
| 14 | <i>I-133</i> | 7,04E+18 |
| 15 | <i>I-134</i> | 7,18E+18 |
| 16 | <i>I-135</i> | 6,22E+18 |
| 17 | <i>Xe-133</i> | 7,09E+18 |
| 18 | <i>Xe-135</i> | 2,06E+18 |
| 19 | <i>Cs-134</i> | 2,82E+17 |
| 20 | <i>Cs-137</i> | 3,61E+17 |
| 21 | <i>Ba-140</i> | 6,10E+18 |
| 22 | <i>La-140</i> | 6,21E+18 |
| 23 | <i>Ce-141</i> | 5,64E+18 |
| 24 | <i>Ce-144</i> | 4,05E+18 |
| 25 | <i>Eu-152</i> | 6,04E+12 |
| 26 | <i>Eu-154</i> | 1,01E+16 |
| 27 | <i>Eu-155</i> | 7,38E+15 |
| 28 | <i>Eu-156</i> | 3,58E+17 |

Активность в топливной матрице получена путем интегрирования по объему активной зоны с учетом 3-х мерного распределения выгорания.

В процессе разогрева в ходе аварии при достижении температуры твэла 700°С принимается, что вся активность, находящаяся под оболочкой, выходит в объем каналов, затем к ней добавляется активность РН, выходящих из топливной матрицы за счет нагрева в соответствии с выше приведенной зависимостью от температуры.

На рисунках 4.11 и 4.12 приведены зависимости выхода активности йода и цезия из топлива от времени (исходя из полученных температур на рисунке 4.8).

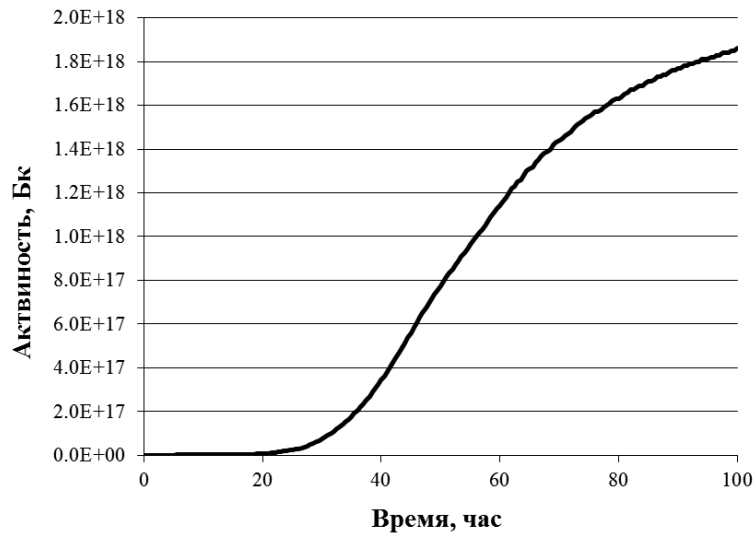


Рисунок 4.11 – Зависимость выхода $I-131$ от времени

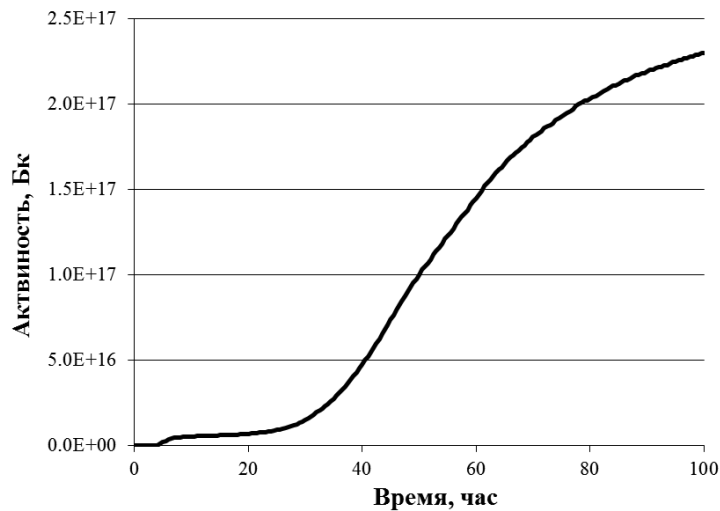


Рисунок 4.12 – Зависимость выхода $Cs-137$ от времени

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

Также интерес представляют зависимости выхода от времени изотопов пониженной степени летучести. Зависимости выхода данных изотопов на примере $Sr-90$ и $La-140$ представлены на рисунках 4.13 и 4.14.

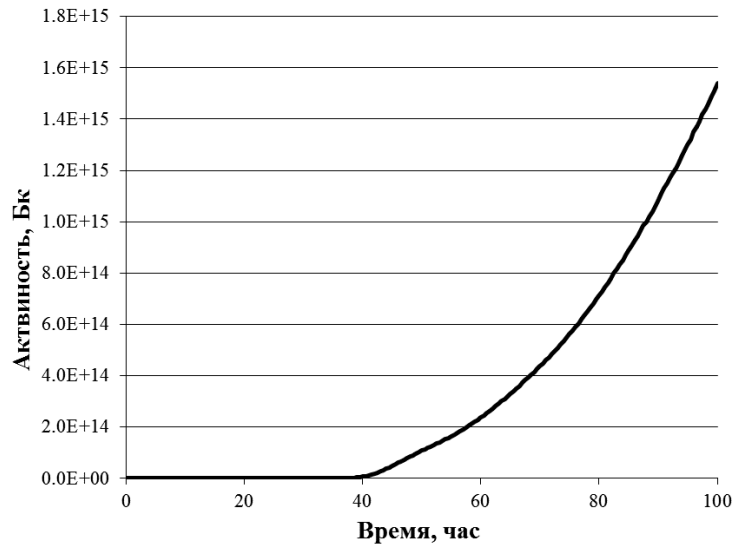


Рисунок 4.13 – Зависимость от времени выхода Sr-90

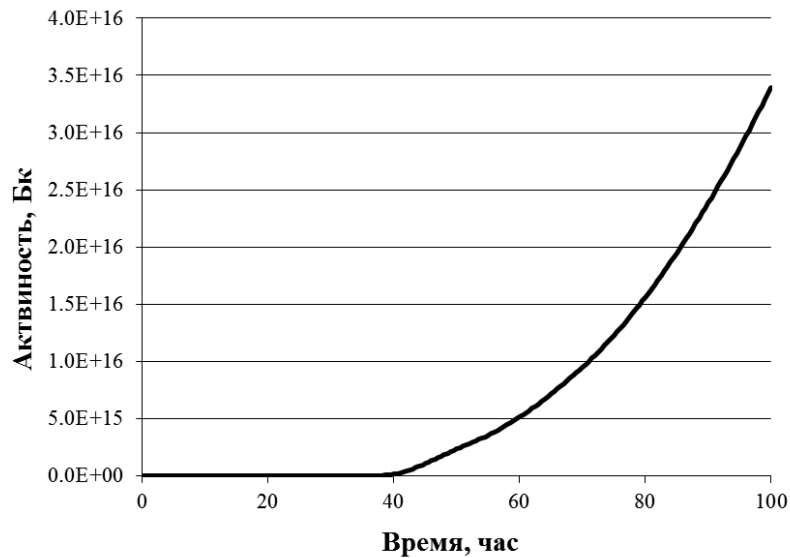


Рисунок 4.14 – Зависимость от времени выхода La-140

В таблице 4.10 приведены активности для 12 РН, вышедших из твэлов, для варианта развития аварии без управляющих воздействий. Анализируя кривые на рисунках 4.13 и 4.14 можно отметить, что активность РН пониженной степени летучести к моменту времени 100 ч будет на 1-2 порядка ниже, чем для летучих РН. Из рисунков 4.11 и 4.12 следует, что вышедшая активность стабилизируется к моменту 100 ч (для летучих РН). Без каких-либо управляющих воздействий, т.е. при разогреве полностью обезвоженного реактора, вышедшая из топлива активность будет на порядок выше (по сравнению со сценарием аварии с применением управляющих воздействий – охлаждением ТВС) за счет более

высоких температур. В качестве основного управляющего воздействия должно выступать снижение температуры топлива.

Таблица 4.10 – Активность РН, вышедших из ТВЭЛОВ в результате их разгерметизации и нагрева, Бк

| Радионуклид | 10 ч | 20 ч | 50 ч | 100 ч |
|---------------|----------|----------|----------|----------|
| <i>Kr-85m</i> | 1,68E+13 | 1,21E+15 | 2,01E+17 | 4,82E+17 |
| <i>Kr-87</i> | 1,83E+13 | 3,30E+15 | 5,52E+17 | 1,32E+18 |
| <i>Kr-88</i> | 4,12E+13 | 4,28E+15 | 7,12E+17 | 1,71E+18 |
| <i>Xe-133</i> | 3,58E+15 | 1,51E+16 | 1,87E+18 | 4,49E+18 |
| <i>Xe-135</i> | 7,77E+13 | 3,08E+15 | 5,06E+17 | 1,21E+18 |
| <i>I-131</i> | 2,24E+15 | 7,09E+15 | 7,76E+17 | 1,86E+18 |
| <i>I-132</i> | 5,04E+13 | 6,14E+15 | 1,04E+18 | 2,50E+18 |
| <i>I-133</i> | 6,25E+14 | 1,18E+16 | 1,88E+18 | 4,51E+18 |
| <i>I-134</i> | 5,67E+13 | 1,26E+16 | 2,14E+18 | 5,13E+18 |
| <i>I-135</i> | 1,98E+14 | 1,04E+16 | 1,73E+18 | 4,14E+18 |
| <i>Cs-134</i> | 3,75E+15 | 4,86E+15 | 7,70E+16 | 1,77E+17 |
| <i>Cs-137</i> | 5,46E+15 | 6,94E+15 | 1,00E+17 | 2,30E+17 |

На этапе разрушения активной зоны РН выделяются из топлива в основном в виде аэрозолей или газа. Аэрозоли сначала охлаждаются в верхней части активной зоны, а затем в КМППЦ, что приводит к значительному удержанию по различным механизмам.

РН, попав в помещения в виде аэрозолей или газа через разрыв, могут удерживаться различными механизмами, в частности, за счет взаимодействия с атмосферой и поверхностями помещений, что тормозит их выход в окружающую среду.

При прохождении аварии есть несколько путей выхода радиоактивности в атмосферу (см. рисунок 4.15 для первой очереди и рисунок 4.16 – для второй):

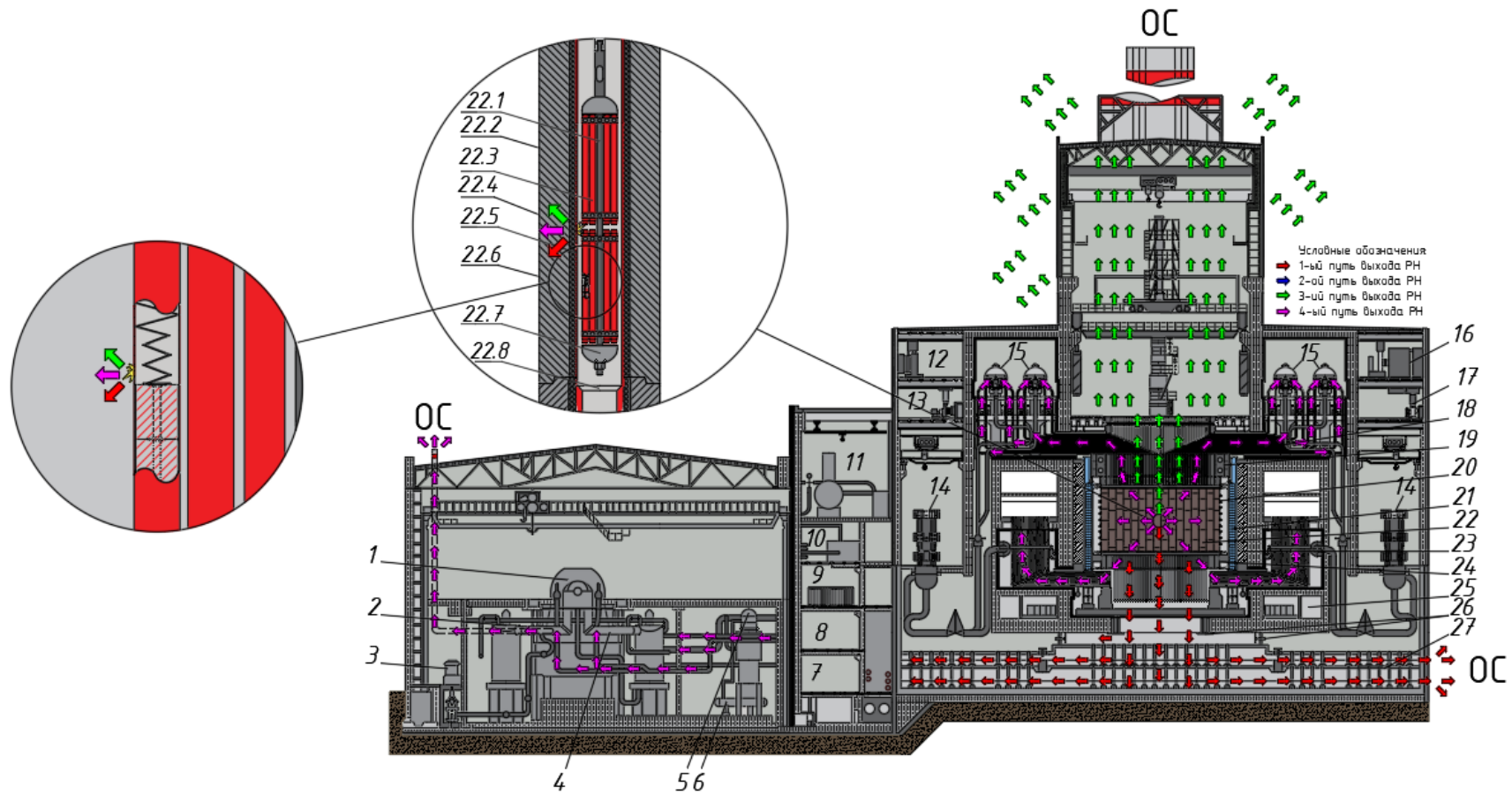


Рисунок 4.15 – Схема реактора РБМК-1000 и возможные пути выхода радионуклидов: 1 – паровая турбина; 2 – сепаратор и промежуточный пароперегреватель; 3 – конденсатный насос первого подъема; 4 - конденсатор; 5 – подогреватель низкого давления; 6 – охладитель; 7 – распределительные устройства; 8 – секция под щитом управления; 9 – модульная панель управления; 10 – проем для труб; 11 – деаэратор; 12 – камера вытяжной вентиляции; 13 - камера приточной вентиляции; 14 – главный циркуляционный насос; 15 – барабан-сепараторы; 16 – приточный вентилятор; 17 – вытяжка; 18 – пароводяные коммуникации; 19 – схема «Е»; 20 - схема «КЖ»; 21 - схемы «Л» и «Д»; 22 – активная зона; 22.1 – несущая труба ТВС; 22.2 – графитовые блоки; 22.3 – ТВЭЛы; 22.4 – графитовые кольца; 22.5 – труба канала; 22.6 – топливная таблетка из диоксида урана; 22.7 – нижний хвостовик; 22.8 – место сужения канала, переходник сталь-цирконий; 23 – песочный барьер; 24 - схема «ОР»; 25 – клапаны нижних гидроштыцеров; 26 – аварийные клапаны; 27 – бассейн-барботер.

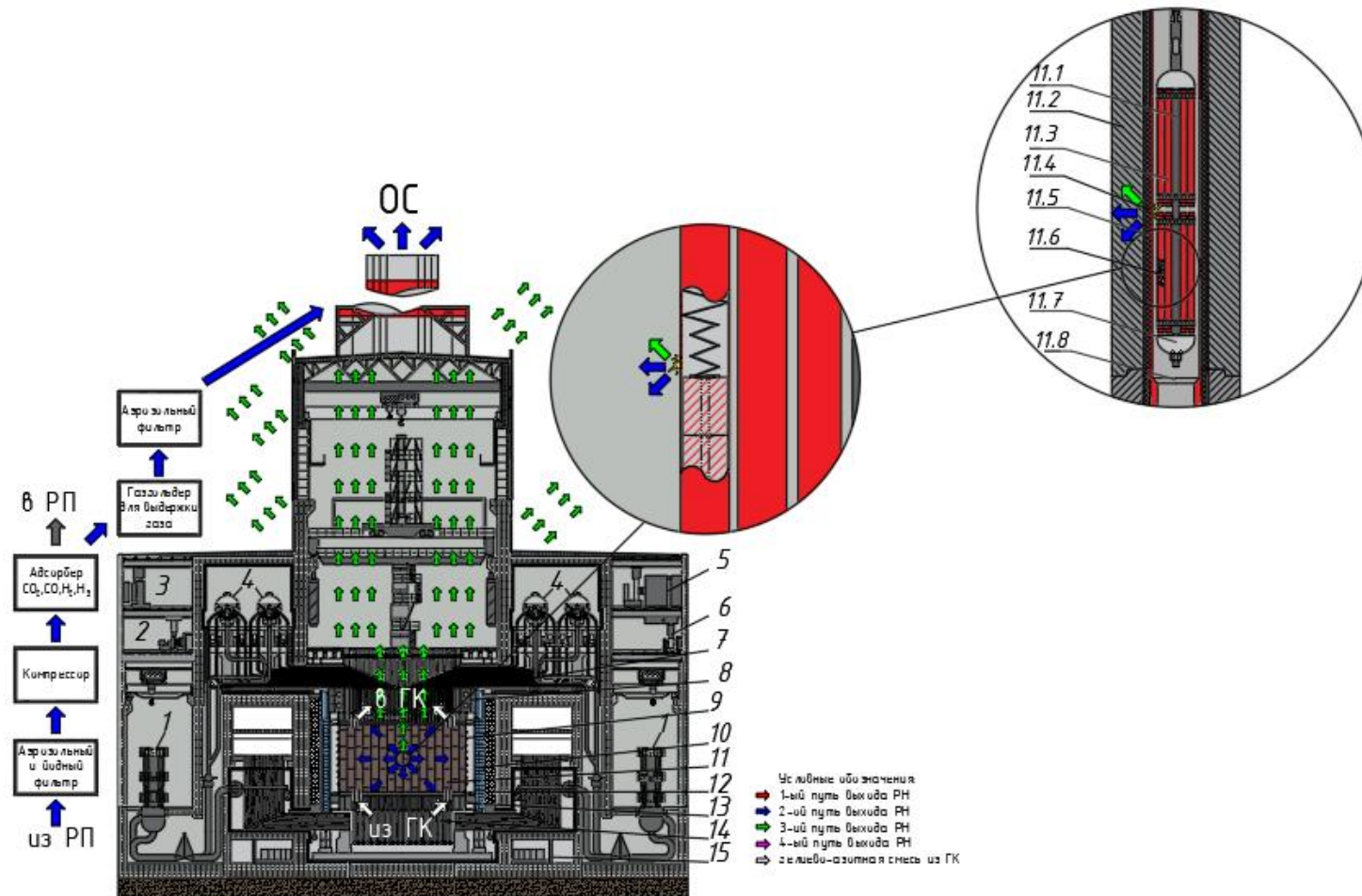


Рисунок 4.16 – Схема реактора РБМК-1000 и возможные пути выхода радионуклидов: 1 – главный циркуляционный насос; 2 – камера приточной вентиляции; 3 – камера вытяжной вентиляции; 4 – барабан-сепараторы; 5 – приточный вентилятор; 6 – вытяжка; 7 – пароводяные коммуникации; 8 – схема «Е»; 9 – схема «КЖ»; 10 – схемы «Л» и «Д»; 11 – активная зона; 11.1 – несущая труба ТВС; 11.2 – графитовые блоки; 11.3 – ТВЭЛы; 11.4 – графитовые кольца; 11.5 – труба канала; 11.6 – топливная таблетка из диоксида урана; 11.7 – нижний хвостовик; 11.8 – место сужения канала, переходник сталь-цирконий; 12 – песочный барьер; 13 – схема «ОР»; 14 – нижние водяные коммуникации; 15 – клапаны нижних гидроштуцеров.

1) При разрушении канальных труб РН выходят в РП, после разрушения ТВС часть топлива попадет в НВК, а часть образует «топливные столбы» в сужении нижней области канала, в месте переходника сталь-цирконий, соответственно, в первом случае топливо проплавит НВК, и РН попадут в подреакторные помещения, а во втором случае столбы проплавят стальные каналы схемы ОР, что приведет к разгерметизации КМПЦ, и РН также попадут в подреакторные помещения, а далее, через парораспределительный коридор ББ, в СЛА и через неплотности в стенах в окружающую среду (для энергоблоков второй очереди);

2) Из РП возможен выход в мокрый газгольдер, тогда выброс будет сосредоточенный, а радионуклиды поступят в атмосферу через вентиляционную трубу (для энергоблоков первой очереди);

3) При разрушении РП нуклиды попадают сразу в ЦЗ, а далее, через неплотности в здании, в окружающую среду;

4) При разрушении оболочки твэл РН выходят в объем КМПЦ, далее в БС, а при открытых БРУ-К через предохранительные клапаны конденсаторов турбин в окружающую среду.

В настоящее время для расчетов радиационной обстановки принимается, что все ИРГ, в конечном счете, выйдут в атмосферу. Относительно же РН йода и цезия в дальнейшем планируется учитывать их осаждение в помещениях, на металлоконструкциях, оборудовании, а также возможное взаимодействие друг с другом.

Для сравнения и понимания радиологической опасности радионуклидов для населения, которое проживает за пределами АЭС, в таблице 4.11, на примере некоторых радионуклидов, содержащихся в аварийном выбросе при аварии на Чернобыльской АЭС [85,86], приведена активность и коэффициенты дозового преобразования, необходимые для расчета радиационных последствий. В скобках приведен процент выхода РН в окружающую среду от накопленного в топливе. Чернобыльский выброс представляет собой растянутый на период около 10 дней выход активности с изменяющейся во времени интенсивностью. При этом,

однако, значительная часть интегрального по времени выброса приходится на начало аварии 26.04.1986 г [97].

Таблица 4.11 - Радионуклидный состав аварийного выброса с ЧАЭС

| Нуклид | Активность, 10^{15} Бк [85] | Процент выхода в ОС от накопленного в топливе, % [85] | R^r поверхность, Зв·м ² /с·Бк | R^r облако, Зв·м ³ /с·Бк | $R_{ингаляция}$, Зв/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 | | $4,49 \cdot 10^{-16}$ | $2,08 \cdot 10^{-14}$ | $1,1 \cdot 10^{-8}$ | 942 |

*для молекулярной формы йода

Из таблицы 4.11 видно, что основной вклад в дозу облучения от облака или поверхности при расчете радиационных последствий аварии будет давать йод и цезий. Процент выхода элементов пониженной степени летучести (для примера рассматривается стронций, лантан) на порядок ниже, однако, их учёт повышает дозу облучения на десятки процентов. При небольшом проценте выхода данных элементов их коэффициенты дозового преобразования могут быть сопоставимы или на порядок превышать коэффициенты для йода и цезия, что отчетливо прослеживается для *La-140*, который может также образоваться при распаде уже вышедшего из топлива *Ba-140*, а также для *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.

Анализируя данные [85, 97], 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 тяжелых (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).

Вывод по главе 4:

Для анализа аварий была выбрана гипотетическая авария, которую необходимо рассматривать в рамках анализа безопасности АЭС – запроектная авария с полным обесточиванием и авария с возможным попаданием топлива в графитовую кладку, последствия которой (количество топлива в графитовой кладке) до настоящего момента не конкретизированы ни в одном произошедшем случае.

Для выполнения расчетов в случае аварии с полным обесточиванием программа была интегрирована в полномасштабный код *STEPAN-T*, т.к. для реалистичных расчетов запроектных аварий необходимо учитывать состояние каждой конкретной ТВС: ее выгорание, температуру, расположение в активной зоне. Были получены зависимости скорости выхода от температуры 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 $\sim 2000^{\circ}\text{C}$.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Расчет выхода продуктов деления из топлива – является частью анализа радиационной безопасности АЭС. Для таких расчетов был создан необходимый инструмент, а именно 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. Модель основана на решении уравнения диффузии, коэффициенты подобраны эмпирическим путем. Вместо рассмотрения зерен и пузырьков газа в общем случае в уравнение диффузии добавляется слагаемое, отвечающее за миграцию РН внутри топливного фрагмента.

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 превышают ~100%, в основном для тестов отклонение составляет примерно ~10%. Для групп радионуклидов пониженной степени летучести отклонения расчетных значений оказались выше.

Для практического использования были проанализированы различные типы аварий, показано, что модель можно адаптировать под расчеты реактивностных аварий. Также 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.

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»), т.к. для реалистичных расчетов запроектных аварий необходимо учитывать состояние каждой конкретной ТВС: ее выгорание, температуру, расположение в активной зоне. 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 $\sim 2000^{\circ}\text{C}$. 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 Сокращений

| | |
|--------|---|
| АЭС | – атомная электрическая станция |
| ББ | – бассейн-барботер |
| БРУ-К | – быстродействующая редуционная установка со сбросом пара в конденсаторы |
| БС | – барабан-сепаратор |
| ВВЭР | – водо-водяной энергетический реактор |
| ГПД | – газообразные продукты деления |
| ЗРК | – запорно-регулирующий клапан |
| ИВВ-2М | – исследовательский водо-водяной реактор бассейнового типа |
| ИРГ | – инертный радиоактивный газ |
| ИРМ | – Институт Реакторных Материалов |
| КМПЦ | – контур многократной принудительной циркуляции |
| ЛАЭС | – Ленинградская АЭС |
| МОКС | – смешанное оксидное топливо |
| НВК | – нижние водяные коммуникации |
| ОС | – окружающая среда |
| ПА | – продукты активации |
| ПИК | – пучковый исследовательский корпусной реактор |
| ПД | – продукты деления |
| ПК | – продукты коррозии |
| ПС | – программное средство |
| РБГ | – радиоактивный благородный газ |
| РБМК | – реактор большой мощности канальный |
| РВ | – радиоактивное вещество |
| РИД | – результат интеллектуальной деятельности |
| РН | – радионуклид |
| РП | – реакторное пространство |
| РУ | – реакторная установка |
| СМ-2 | – исследовательский корпусной водо-водяной реактор на промежуточных нейтронах с нейтронной ловушкой |
| СЛА | – система локализации аварий |
| СУЗ | – стержень системы управления и защиты |
| ТВС | – тепловыделяющая сборка |
| ФЭИ | – Физико-энергетический институт |
| ЦЗ | – центральный зал |

| | |
|------|-------------------------------------|
| ЧАЭС | – Чернобыльская АЭС |
| ЭВМ | – электронная вычислительная машина |
| BWR | – Boiling Water Reactor |
| LWR | – Light Water Reactor |
| PWR | – Pressure Water Reactor |

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. НП-001-15 Общие положения обеспечения безопасности атомных станций. Утверждено Федеральная служба по экологическому, технологическому и атомному надзору приказом от 17 декабря 2015 г. №522.
2. IV. Accident response at TEPCO's Fukushima Dai-ichi NPS // Interim Report :/ Investigation Committee on the Accident at Fukushima Nuclear Power Stations of Tokyo Electric Power Company. — 2011, 188 p.
3. Nuclear Safety in Light Water Reactors Severe Accident Phenomenology 2012, Pages 425-517.
4. Ducros, G., Malgouyres, P.P., Ducros, G., Kissane, M., Boulaud, D., Durin, M., 2001. Fission product release under severe accident conditions: general presentation of the program and synthesis of VERCORS 1–6 results. Nucl. Eng. Des., V. 208, p. 191–203.
5. Markus H.A. Piro, Thermodynamic predictions of CANDU fuel volatilization and fission product behaviour under severe accident conditions, Journal of Nuclear Materials, Volume 558, 2022.
6. R. M. Carroll & O. Sisman In-Pile Fission-Gas Release from Single-Crystal UO₂* Nuclear Science and Engineering Volume 21, 1965 - Issue 2.
7. C. Wise, Recoil release of fission products from nuclear fuel, J. Nucl. Mater. 136 (1985) 30-47.
8. B.J. Lewis, Fission product release from nuclear fuel by recoil and knockout, J. Nucl. Mater. 148 (1987) 28-42.
9. I.J. Hastings, C.E.L. Hunt, J.J. Lipsett, Release of short-lived fission products from UO₂ fuel: effects of operating conditions, J. Nucl. Mater. 130 (1985) 407-417.
10. Y. Pontillon, G. Ducros Behaviour of fission products under severe PWR accident conditions VERCORS experimental programme—Part 2: Release and transport of fission gases and volatile fission products, J. Nucl. Eng. Des., V. 240 2010, p. 1853-1866.

11. J. Rest, M.W.D. Cooper, J. Spino, J.A. Turnbull, P. van Uffelen, C.T. Walker
Fission gas release from UO₂ nuclear fuel: A review. *J. of nuclear materials* V. 513, 2019, p. 310-345.
12. A.H. Booth, A Suggested Method for Calculating the Diffusion of Radioactive Rare Gas Fission Products from UO₂ Elements and a Discussion of Proposed In-reactor Experiments that May Be Used to Test its Validity, 1957.
13. A.H. Booth, A Method of Calculating Fission Gas Diffusion from UO₂ Fuel and its Application to the X-2-f Loop Test, Atomic Energy of Canada, LTD, 1957. Report CRDC-721; AECL-496, Chalk River.
14. H. Matzke, Gas release mechanisms in UO₂ - a critical review, *Radiat. Eff.* V. 53, 1980. P. 219-242.
15. J.A. Turnbull, C.A. Friskney, J.R. Findlay, F.A. Johnson, A.J. Walter, The diffusion coefficients of gaseous and volatile species during the irradiation of uranium oxide, *J. Nucl. Mater.* V. 107, 1982, p.168-184.
16. G. Pastore, I.P. Swiler, J.D. Hales, S.R. Novascone, D.M. Perez, B.W. Spencer, L. Luzzi, P. Van Uffelen, R.L. Williamson, Uncertainty and sensitivity analysis of fission gas behavior in engineering-scale fuel modeling, *J. Nucl. Mater.* V. 456, 2015, p.398-408.
17. D.A. Andersson, P. Garcia, X.Y. Liu, Atomistic modeling of intrinsic and radiation-enhanced fission gas (Xe) diffusion in UO_{2±x}: implications for nuclear fuel performance modeling, *J. Nucl. Mater.* V. 451 (1), 2014, p.225-242.
18. M. Tonks, D. Andersson, R. Devanathan, R. Dubourg, Unit mechanisms of fission gas release: current understanding and future needs, *J. Nucl. Mater.* V. 504, 2018, p.300-317.
19. J.R. Matthews, M.H. Wood, Modelling the transient behavior of fission gas, *J. Nucl. Mater.* V. 84, 1979, p.125-136.
20. D.R. Olander, D. Wongsawaeng, Re-resolution of fission gas e a review: Part I. Intragranular bubbles, *J. Nucl. Mater.* V. 354, 2006, p.94-109.

21. R.J. White, M.O. Tucker, A new mechanistic model for the calculation of fission gas release, in: International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, West Palm Beach, Florida, 1994, p. 196-202.
22. C. Baker, The fission gas bubble distribution in uranium dioxide from high temperature irradiated SGHWR fuel pins, *J. Nucl. Mater.* V. 66,1977, p.283-291.
23. M.V. Speight, A calculation on the migration of fission gas in material exhibiting precipitation and re-resolution of gas atoms under irradiation, *Nucl. Sci. Eng.* V. 37 (2),1969, p.180-185.
24. Y. Rashid, R. Dunham, R. Montgomery, Fuel Analysis and Licensing Code: FALCON MOD01, Electric Power Research Institute, 2004.
25. P. Van Uffelen, G. Pastore, V. Di Marcello, L. Luzzi, Multiscale modelling for the fission gas behavior in the TRANSURANUS code, *Nucl. Eng. Technol.* V. 43 (6), 2011, p.477-488.
26. K.J. Geelhood, W.G. Luscher, FRAPCON-3: a Computer Code for the Calculation of Steady-state, Thermal-Mechanical Behavior of Oxide Fuel Rods for High Burnup, Office of Nuclear Regulatory Research, 2014.
27. J. Killeen, Improvement of Computer Codes Used for Fuel Behaviour Simulation. Final Report of the Co-ordinated Research Project FUMEX-III, 2013. IAEA-TECDOC, IAEA, Vienna.
28. M.S. Veshchunov, A.V. Boldyrev, V.D. Ozrin, V.E. Shestak, V.I. Tarasov, A new mechanistic code SFPR for modeling of single fuel rod performance under various regimes of LWR operation, *Nucl. Eng. Des.* V. 241,2011, p.2822-2830.
29. T. Barani, E. Bruschi, D. Pizzocri, G. Pastore, P. Van Uffelen, R.L. Williamson, Analysis of transient fission gas behaviour in oxide fuel using BISON and TRANSURANUS, *Journal of Nuclear Materials* V. 486, 2017, p.96-110.
30. C. Struzik, V. Marelle, Validation of the Fuel Performance CEA Code ALCYONE, Scheme 1D, on Extensive Data Base, Top Fuel, European Nuclear Society, Manchester, United Kingdom, 2012.

31. V.G. Zborovskii, V.V. Likhanskii, T.N. Aliev, I.A. Evdokimov, A.A. Sorokin, V.D. Kanukova, L.A. Maslova, M.Y. Kolesnik, Simulation of High-burnup Fuel Rods under Nominal and Transient Conditions with the RTOP Code WWER Fuel Performance, Modelling and Experimental Support, Bulgarian Academy of Sciences, Albena, Bulgaria, 2011, p.365-374.
32. H. Albrecht, V. Matschoss, H. Wild Release of fission and activation products during light water reactor core meltdown, J. Nuclear Technology, V. 46, 1979, p. 559-565.
33. R.A. Lorenz, M.F. Osborne, A summary of ORNL Fission Product release tests with recommended release rates and diffusion coefficients, ORNL/TM-12801—NUREG/CR-6261, 1995.
34. Z. Lui, D.S. Cox, R.S. Dickson, P. Elder A summary of CRL fission product release measurements from UO₂ samples during post-irradiation annealing (1983-1992) Report COG (1994), p. 92-377.
35. J.P. Léveque, B. Andre, G. Ducros, G. Le Marois, G. Lhiaubet The HEVA experimental program, J. Nuclear Technology, V. 108,1994, p. 33-44.
36. Y. Pontillon, G. Ducros Behaviour of fission products under severe PWR accident conditions VERCORS experimental programme—Part 3: Release of low-volatile fission products and actinides, J. Nucl. Eng. Des., V. 240, 2010, p. 1867-1881.
37. A. Hidaka Outcome of VEGA Program on Radionuclide Release from Irradiated Fuel under Severe Accident Conditions, Journal of Nuclear Science and Technology, V. 48 (1),2011, p. 85-102.
38. A. Goryachev, et al. Techniques and first results of fission product release study in QUENCH tests with irradiated VVER rod simulators Proc. 12th Int. QUENCH workshop,2006,FZ Karlsruhe, Germany.
39. J.A. Turnbull, C.E. Beyer Background and Derivation of ANS-5.4 standard Fission Product Release Model, NUREG/CR7003 PNNL-18490, 2010.
40. P.V. Uffelen Contribution to the modeling of fission gas release in light water reactor fuel. A dissertation for the degree of Doctor in Applied Sciences, 2002.

41. J.R. Matthews, M.H. Wood, An efficient method for calculating diffusive flow to a spherical boundary, *J. Nucl. Eng. Des.* V. 56, 1980, p.439-443.
42. K. Ito, R. Iwasaki, Y. Iwano, Finite element model for analysis of fission gas release from UO₂, *J. Nucl. Sci. Technol.* V. 22 (2),1985), p.129-138.
43. K. Lassmann, H. Benk, Numerical algorithms for intragranular fission gas release, *J. Nucl. Mater.* V. 280 (2), 2000, p.127-135.
44. K. Forsberg, A.R. Massih, Fission gas release under time-varying conditions, *J. Nucl. Mater.* V. 127,1985, p.141-145.
45. K. Forsberg, A.R. Massih, Diffusion theory of fission gas migration in irradiated nuclear fuel, *J. Nucl. Mater.* V. 135,1985, p.140-148.
46. L.C. Bernard, J.L. Jacoud, P. Vesco, An efficient model for the analysis of fission gas release, *J. Nucl. Mater.* V. 302, 2002, p.125-134.
47. D. Pizzocri, C. Rabiti, L. Luzzi, T. Barani, P. Van Uffelen, P. Pastore, PolyPole-1: an accurate numerical algorithm for intra-granular fission gas release, *J. of Nuclear Materials* V. 478, 2016, p.333-340.
48. W. Hering The KWU fission gas release model for LWR fuel rods, *J. Nucl. Mater.* V. 114,1983, p.41-49.
49. M. Tayal, L.D. Macdonald, E. Kohn, W.P. Dovigo, A model for the transient release of fission products from UO₂ fuel: GASOUT code description, *Nucl. Technol.* V. 85,1989, p. 300-313.
50. J. Rest, Validation of mechanistic models for gas precipitation in solids during postirradiation annealing experiments, *J. Nucl. Mater.* V. 168 (3), 1989, p. 243-261.
51. S. Kashibe, K. Une, K. Nogita, Formation and growth of intragranular fission gas bubbles in UO₂ fuels with burnup of 6e83 GWd/t, *J. Nucl. Mater.* 206(1993) стр. 22-34.
52. K. Nogita, K. Une, High resolution TEM of high burnup UO₂ fuel, *J. Nucl.Mater.* 250 (1997) стр. 244-249.
53. Emilie Beuzet, Jean-Sylvestre Lamy, Hadrien Perron, Eric Simoni, Gérard Ducros, Ruthenium release modelling in air and steam atmospheres under severe

- accident conditions using the MAAP4 code, Nuclear Engineering and Design, Volume 246, 2012, Pages 157-162.
54. B.J. Lewisa, B.J. Corsea, W.T. Thompsona Low volatile fission-product release and fuel volatilization during severe reactor accident conditions. J. of Nuclear Materials V. 252, Is.3, February 1998, p. 235.
 55. G.T. Lawrence review of the diffusion coefficient of fission-product rare gases in uranium dioxide. J. of Nuclear Materials V. 71, Is. 2, January 1978, P. 195-218.
 56. Y. Pontillon, G. Ducros Behaviour of fission products under severe PWR accident conditions. The VERCORS experimental programme-Part 3: Release of low-volatile fission products and actinides. Nuclear Engineering and Design V. 240, Is. 7, July 2010, P. 1867-1881.
 57. Y. Pontillon, E.Geiger, S.Bernard Fission products and nuclear fuel behavior under severe accident conditions part 1: Main lessons learnt from the first VERDON test. J. of Nuclear Materials V. 495, November 2017, P. 363-384.
 58. G.Brillant, C.Marchetto, W.Plumecocq Fission product release from nuclear fuel I. Physical modelling in the ASTEC code. Annals of Nuclear Energy V. 61, November 2013, P. 88-95.
 59. B.J.Lewisa, P.K.Chana, Fission product release modelling for application of fuel-failure monitoring and detection - An overview. J. of Nuclear Materials V. 489, June 2017, P. 64-83.
 60. G.Brillant Interpretation and modelling of fission product Ba and Mo releases from fuel. J.1 of Nuclear Materials V.397, Is. 1-3, February 2010, P. 40-47.
 61. Ростехнадзор. «Аттестационный паспорт программы для электронных вычислительных машин CHAIN», регистрационный номер 543, 2021.
 62. **A.K. Smirnova, A.V. Krayushkin Modernization of the CHAIN code for fission gas release calculation. Journal of Physics: Conference Series, 1689, 2020.**
 63. Askew J.R., Fayers F.J., Kemshell P.B. A general description of the lattice code WIMS. IBNES, 1966, v.5, p.564-585.

64. O.W. Hermann, C.V. Parks, and J.P. Renier. Technical Support for Proposed Decay Heat Guide Using SAS2H/ ORIGEN-S Data. NUREG/CR-5625. ORNL-6698, 1994.
65. **В.Н. Бабайцев, И.Н. Гераскин, А.В. Краюшкин, А.К. Смирнова** **Применение диффузионной модели для расчета выхода радионуклидов из топлива. Вопросы атомной науки и техники, Серия: Физика ядерных реакторов, вып. 1, 2019, с. 74-79.**
66. P.A. Jackson, J.A. Turnbull R.J. White Enigma fuel performance code, Nucl Energy 1990 29 № 2 April, p 107-114.
67. **В.Н. Бабайцев, А.К. Смирнова, И.А. Тупотилов** **Программа для расчета температурных полей в РБМК КЛАДКА-2 Вопросы атомной науки и техники, выпуск 5, 2023г (в редакции).**
68. П.Н. Алексеев, А.В. Дьяков, А.С. Колокол и др. Об улучшении эксплуатационных характеристик оксидного топлива для ВВЭР. Атомная энергия, т. 102, вып. 2, февраль 2007. С. 109-113.
69. Андерсон Д., Таннехилл Дж., Плэтчер Р., «Вычислительная гидромеханика и теплообмен», в 2-х т., Мир, 1990 г.
70. Л.М. Лузанова, Д.А. Михайлов, Н.Ф. Репников «Количественная оценка величины выброса продуктов деления при тяжелых авариях на Смоленской АЭС», Отчет РНЦ «Курчатовский институт», 2006г.
71. В.Я. Абрамов и др. Канальный ядерный энергетический реактор РБМК; отв. ред.: Ю.М. Никитин, И.А. Стенбок; под общ. ред. А.А. Петрова. М. : НИКИЭТ, 2013.
72. Osborne, M.F., Collins, J.L., Lorenz, R.A., August 1987. Experimental studies of fission product release from commercial LWR fuel under accident conditions. Nucl. Technol. 78 (2), p. 157–169.
73. Fuel modelling at extended burnup. Report of the Co-ordinated Research Programme on Fuel Modelling at extended Burnup – FUMEX 1993-1996. IAEA-TECDOC-998, 1998. P. 21-25.

74. В.Ш. Сулаберидзе, Б.В. Самсонов. и др Препринт НИИАР-26(541) «Исследование выхода газообразных продуктов деления по оболочку опытных ТВЭЛОВ с компактной двуокисью урана», Димитровград-1982.
75. Анализ результатов исследований поведения топлива РБМК различных модификаций в условиях реакторного облучения. Отчет НИКИЭТ, отчет 48.147 ОТ, 2004.
76. А.В. Сухих, С.С. Сагалов, С.В. Павлов “Топливо каналных кипящих реакторов большой мощности: проблемы и решения”. Димитровград, 2016г.
77. Relwver (версия uni) – программное средство для расчета активности продуктов деления в технологических средах водо-водяного реактора типа ВВЭР в нормальных режимах эксплуатации, верификационный отчет НИЦ «Курчатовский институт», Инв. № 110.10-55/1-32-415.
78. Определение выхода ГПД из топлива с высоким выгоранием при авариях типа RIA и LOCA, отчёт РНЦ "Курчатовский институт", инв. № 32/1-181-407, 2006г.
79. Gregoire A.C., Haste T. Material release from the bundle in PHEBUS FP. *Annals of Nuclear Energy*, 2013. V. 61. P. 63–74.
80. Bechta S.V. et al, «Influence of corium oxidation on fission product release from molten pool», *Nuc. Eng. and Des.* 240 (2010) 1229–1241.
81. НП-082-07 Правила ядерной безопасности реакторных установок атомных станций. Утверждены постановлением Федеральной службы по экологическому, технологическому и атомному надзору от 10 декабря 2007 г. №4.
82. **A. V. Krayushkin, A. K. Smirnova Interrelation of the iodine-activity limit in RBMK coolant and the number of defective fuel pins. *Atomic Energy*, Vol. 128, No. 3, July, 2020, p. 188-190.**
83. Лузанова Л.М., Дубков А.П., Мигло В.Н., Тимошинов Н.А. Современные подходы и принципы анализа радиационных последствий для

- проектируемых и эксплуатируемых АЭС с ВВЭР. – Атомная энергия, 2011, Т. 110, вып. 1, с.48–54.
84. А.В. Краюшкин, И.А. Тупотилов Запроектная авария с полным обесточиванием РБМК. Анализ возможности возникновения повторной критичности, ВАНТ, Сер. Физика ядерных реакторов, вып. 5, 2022, стр. 90-97.
85. И.И. Крышев, Е.П. Рязанцев «Экологическая безопасность ядерно-энергетического комплекса России», изд АТ, 2010г.
- 86. В.Н. Бабайцев, А.В. Краюшкин, А.К. Смирнова, И.А. Тупотилов Запроектная авария с полным обесточиванием на реакторах типа РБМК, Вопросы атомной науки и техники, выпуск 5, 2023г (в редакции).**
87. H. Kleykamp, The chemical state of the fission products in oxide fuels, Journal of Nuclear Materials, Volume 131, Issues 2-3, 1985, Pages 221-246
88. U.S. Nuclear Regulatory Commission, "State-of-the-Art Reactor Consequence Analyses Project, Volume 2: Surry Integrated Analysis," Washington, DC, 2013.
89. Ari Auvinen Investigations on ruthenium transport in highly oxidising conditions, Conference: Nuclear Energy for New Europe, September 5-8, 2005
90. Masaki AMAYA , Tomoyuki SUGIYAMA & Toyoshi FUKETA Fission Gas Release in Irradiated UO₂ Fuel at Burnup of 45 GWd/t during Simulated Reactivity Initiated Accident (RIA) Condition, Journal of NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY, Vol. 41, No. 10, p. 966–972 (October 2004).
91. Kazuo Kakiuchi, Yutaka Udagawa, Masaki Amaya Fission gas release from irradiated mixed-oxide fuel pellet during simulated reactivity-initiated accident conditions: Results of BZ-3 and BZ-4 tests, Annals of Nuclear Energy 155, 108171, June 2021.
92. Yang-Hyun Koo, Jae-Yong Oh, Byung-Ho Lee, Yw Tahk Artificial neural network modeling for fission gas release in LWR UO₂ fuel under RIA conditions, Journal of Nuclear Materials 405(1), October 2010, p. 33-43.

93. D.Pizzocri, T.Barani, L.Luzzi SCIANITIX: A new open source multi-scale code for fission gas behaviour modelling designed for nuclear fuel performance codes Journal of Nuclear Materials Volume 532, 15 April 2020, 152042.
94. А. В. Краюшкин, Г.Б. Давыдова Взгляд через 30 лет на причины и развитие аварии на Чернобыльской АЭС, Вопросы атомной науки и техники. Серия: физика ядерных реакторов, вып. 5, 2017 г., стр. 44-50.
95. Д. Хетрик Динамика ядерных реакторов, М., Атомиздат, 1975.
96. К. Бекурц, К. Виртц Нейтронная физика, под ред. Л.А. Микаэляна и В.И. Лебедева. М., Атомиздат, 1968.
97. 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., стр 106-115.
98. **Г.Б. Давыдова, А.В. Краюшкин, А.К. Смирнова Оценка массы топлива в кладке РБМК в результате возможной аварии. Журнал ВАНТ. Сер. Физика ядерных реакторов (в редакции).**

СПИСОК ИЛЛЮСТРАЦИЙ

| | |
|---|-----|
| Рисунок 2.1 – Иллюстрация модели, заложенной в основу программы | 26 |
| Рисунок 2.2 – Зависимость размера зазора топливо-оболочка от выгорания | 36 |
| Рисунок 2.3 – Блок схема программы расчета выходов | 37 |
| Рисунок 2.4 – Радиальное распределение активности $Cs-137$ | 43 |
| Рисунок 2.5 – Радиальное распределение выхода цезия-137: — - удельный выход (с единицы площади), — - интегральный выход (с единицы радиуса) | 44 |
| Рисунок 2.6 – Выход цезия-137 в зависимости от граничных условий | 46 |
| Рисунок 2.7 – Иллюстрация цилиндрического источника | 50 |
| Рисунок 2.8 – Сравнение расчета и аналитического решения: | 52 |
| Рисунок 2.9 – Зависимость мощности ТВС (W) от выгорания (B) | 53 |
| Рисунок 2.10 – Суммарный выход ^{137}Cs из образцов UO_2 при их нагревании и последующем поддержании изотермического режима | 57 |
| Рисунок 3.1 – Относительное аксиальное распределение энерговыделения по твэлу верхнего пучка | 63 |
| Рисунок 3.2 – Радиальное распределение температуры в топливной таблетке РБМК для начала и конца кампании ТВС..... | 64 |
| Рисунок 3.3 – Расчетные величины выхода под оболочку ^{137}Cs | 65 |
| Рисунок 3.4 – Расчетные величины выхода под оболочку ^{131}I | 66 |
| Рисунок 3.5 – Зависимость выхода ^{88}Kr от глубины выгорания при различных температурах топлива (приведена температура центра таблетки)..... | 75 |
| Рисунок 3.6 – Зависимость выхода продуктов деления от выгорания [11]..... | 78 |
| Рисунок 3.7 – Зависимость выхода ПД из твэлов ВВЭР от времени: — - 200 Вт/см, — - 300 Вт/см..... | 78 |
| Рисунок 4.1 – Схема расположения каналов в полиячейке..... | 102 |
| Рисунок 4.2 – Распределение энерговыделения по твэлам ТВС в зависимости от ее положения в полиячейке | 104 |
| Рисунок 4.3 – Распределение потока тепловых нейтронов в ячейке реактора РБМК..... | 105 |
| Рисунок 4.4 – Распределение энерговыделения по радиусу твэлов | 106 |
| Рисунок 4.5 – Распределение температуры по радиусу твэла с учетом неравномерности профиля энерговыделения и без: — топливная таблетка без центрального отверстия, без учета профиля энерговыделения, — топливная таблетка без центрального отверстием, с учетом профиля энерговыделения, — топливная таблетка с центральным отверстием, без учета профиля энерговыделения, — топливная таблетка с центральным отверстием, с учетом профиля энерговыделения. | 106 |
| Рисунок 4.6 – Зависимости остаточного энерговыделения от времени при различной ширине всплеска мощности | 111 |
| Рисунок 4.7 – Спад температуры после всплеска мощности: – без учета остаточного энерговыделения, - - - с учетом остаточного энерговыделения..... | 112 |
| Рисунок 4.8 - Зависимость температуры топлива от времени: 1 – максимальная температура топлива; 2 - средняя температура топлива..... | 123 |
| Рисунок 4.9 – Зависимость от температуры скорости выхода для $I-131$ | 124 |
| Рисунок 4.10 – Зависимость от температуры скорости выхода для $Ru-103$ | 124 |
| Рисунок 4.11 – Зависимость выхода $I-131$ от времени | 127 |
| Рисунок 4.12 – Зависимость выхода $Cs-137$ от времени | 127 |
| Рисунок 4.13 – Зависимость от времени выхода $Sr-90$ | 128 |
| Рисунок 4.14 – Зависимость от времени выхода $La-140$ | 128 |

СПИСОК ТАБЛИЦ

| | |
|--|-----|
| Таблица 2.1 – Величины λ и $\sigma \cdot \Phi$ для наиболее радиационно значимых РН..... | 27 |
| Таблица 2.2 – Давление и состав газа под оболочкой твэла в процессе кампании..... | 34 |
| Таблица 2.3 – Средний выход РН по кампании для различных шагов временной сетки | 39 |
| Таблица 2.4 – Средний выход РН из топлива при варьировании числа точек конечно-разностной сетки | 40 |
| Таблица 2.5 – Выход цезия для различной величины доли открытого пространства в твэле | 41 |
| Таблица 2.6 – Выход цезия для различной величины доли открытого пространства в твэле | 42 |
| Таблица 2.7 – Зависимость температурного порога от выгорания топлива..... | 47 |
| Таблица 2.8 – Доля выхода $Cs-137$ в зависимости от выгорания с учетом и без учета эффекта температурного порога, %..... | 47 |
| Таблица 2.9 – Результаты расчетов выхода в зависимости от величины центрального отверстия | 53 |
| Таблица 2.10 – Зависимость от температуры составляющих коэффициента диффузии..... | 55 |
| Таблица 2.11 – Выход ^{137}Cs при нагреве топлива (% от накопленного) | 58 |
| Таблица 2.12 – Величина поправочного множителя $\chi(T)$ в функции температуры..... | 59 |
| Таблица 2.13 – Выход $Cs-137$ для вариантов твердого и расплавленного диоксида урана | 61 |
| Таблица 3.1 – Краткая характеристика экспериментов по измерению выхода РН при нагреве фрагментов топлива | 67 |
| Таблица 3.2 – Экспериментальные и расчетные величины выхода РН (%)..... | 67 |
| Таблица 3.3 – Выходы для различных изотопов йода (%) от исходного содержания..... | 68 |
| Таблица 3.4 – Результаты, полученные в тесте 2 <i>FUMEX</i> | 70 |
| Таблица 3.5 – Результаты измерений выхода ПД под оболочку твэлов | 73 |
| Таблица 3.6 – Результат расчета выхода ПД под оболочку | 73 |
| Таблица 3.7 – Сравнение измеренных и расчетных выходов ^{88}Kr | 76 |
| Таблица 3.8 – Сравнение выходов РН, полученных по программе <i>RELWVER</i> и <i>CHAIN</i> для твэла ВВЭР | 76 |
| Таблица 3.9 – Зависимость выхода ^{137}Cs от линейной нагрузки | 77 |
| Таблица 3.10 – Дополнительное сравнение выходов РН по программе <i>RELWVER</i> и <i>CHAIN</i> для твэла ВВЭР..... | 79 |
| Таблица 3.11 – Параметры для расчета коэффициентов диффузии РН..... | 80 |
| Таблица 3.12 – Основные характеристики экспериментов VI..... | 82 |
| Таблица 3.13 – Результаты сравнения расчетов выхода ПД с экспериментами VI-2..... | 83 |
| Таблица 3.14 – Результаты сравнения расчетов выхода ПД с экспериментами VI-3..... | 83 |
| Таблица 3.15 – Результаты сравнения расчетов выхода ПД с экспериментами VI-4..... | 84 |
| Таблица 3.16 – Результаты сравнения расчетов выхода ПД с экспериментами VI-5..... | 84 |
| Таблица 3.17 – Результаты сравнения расчетов выхода ПД с экспериментами VI-6..... | 85 |
| Таблица 3.18 – Основные характеристики экспериментов VR..... | 87 |
| Таблица 3.19 – Результаты сравнения расчетов выхода ПД с экспериментами VR-3 | 87 |
| Таблица 3.20 – Результаты сравнения расчетов выхода ПД с экспериментами VR-4 | 88 |
| Таблица 3.21 – Результаты сравнения расчетов выхода ПД с экспериментами VR-5 | 88 |
| Таблица 3.22 – Основные характеристики экспериментов ФЭИ | 90 |
| Таблица 3.23 – Результаты сравнения расчетов выхода ПД с экспериментами ФЭИ..... | 90 |
| Таблица 4.1 – Выход радионуклидов при нормальной работе из топлива реактора РБМК, % | 97 |
| Таблица 4.2 – Коэффициент неравномерности энерговыделения по ТВС | 103 |
| Таблица 4.3 – Расчет выхода цезия-137 для различных значений относительного энерговыделения (K_r) | 107 |
| Таблица 4.4 – Зависимость коэффициента диффузии от температуры..... | 113 |
| Таблица 4.5 – Удельная активность ИРГ в топливе, ГБк/г | 116 |
| Таблица 4.6 – Выходы РН в зависимости от размера частиц диоксида, % | 116 |
| Таблица 4.7 – Зависимость количества выходящих из топлива РН от температуры | 118 |

| | |
|--|-----|
| Таблица 4.8 – Оценки скорости поступления ИРГ из реакторного пространства при массе топлива 1 килограмм, ГБк/час | 120 |
| Таблица 4.9 – Величины накопленной в реакторе активности | 126 |
| Таблица 4.10 – Активность РН, вышедших из твэлов в результате их разгерметизации и нагрева, Бк... | 129 |
| Таблица 4.11 - Радионуклидный состав аварийного выброса с ЧАЭС | 133 |