ДЕТКИНА А.В., КАНАШОВ Б.А., ЛЕЩЕНКО А.Ю., СЕМЕНОВЫХ С.В.

ООО НПФ «Сосны», г. Димитровград, Россия

РАЗРАБОТКА МЕТОДА РАСЧЕТА КИНЕТИКИ НАКОПЛЕНИЯ ВОДОРОДА ДЛЯ ОБОСНОВАНИЯ БЕЗОПАСНОСТИ ТРАНСПОРТИРОВАНИЯ НЕГЕРМЕТИЧНЫХ ПУЧКОВ ТВЭЛОВ ОТВС РБМК-1000 БЕЗ ПРЕДВАРИТЕЛЬНОЙ ОСУШКИ

При обосновании пожаро- и взрывобезопасности транспортирования пучков твэлов (ПТ) некондиционных ОТВС РБМК-1000 с атомной станции на переработку (временное хранение) без предварительной осушки важной задачей является определение кинетики накопления радиолитического водорода в герметичных ампулах, используемых при транспортировании. На основе этих данных рассчитывается допустимая продолжительность транспортирования и временного хранения ампул с размещенными в них ПТ. В настоящей работе предложен метод расчета скорости накопления радиолитического водорода в герметичных ампулах за счет воздействия α- и β-излучения негерметичных твэлов на воду, которая может находиться под оболочкой твэлов. Метод не требует наличия исходной информации о количестве фрагментов, на которые растрескиваются топливные таблетки, ширине трещин между фрагментами, размерах зазоров между фрагментами топливных таблеток и стенками твэлов.

Введение

Расчетные методы обоснования пожаро- и взрывобезопасности при транспортировании некондиционных ОТВС РБМК-1000 состоят в определении максимальных (консервативных) значений объемных концентраций водорода в свободном объеме ампул, заполненных воздухом, (в предположении отсутствия уничтожения в воде первичного водорода в результате химических реакций и 100%-ного выхода первичного водорода из воды) и их сравнении с предельным значением – 4 об. % [1].

К источникам неопределенности в данных методах также следует отнести использование при расчетах радиолиза воды за счет альфа- и бета-излучения параметров, точные значения которых неизвестны:

– количество фрагментов, на которые раскалываются топливные таблетки в процессе эксплуатации;

– размеры зазоров между топливными таблетками (или их фрагментами) и стенками твэлов;

– размеры трещин в топливных таблетках;

– площадь соприкосновения ОЯТ с водой.

Расчеты накопления водорода при воздействии гамма-излучения на воду и водяной пар, содержащийся в ампулах и контейнерах, не вызывают особых проблем. В свою очередь, авторами предложен метод расчета скорости накопления водорода за счет альфа- и бета-излучения, позволяющий избегать использования «усредненной» информации о количестве фрагментов топливных таблеток, размеров трещин в таблетках и площадей соприкосновения ОЯТ с водой.

При расчетах в обоснование безопасности пилотного проекта вывоза ОТВС РБМК-1000 во ФГУП «ПО «Маяк» принимали следующие исходные данные:

– в составе пучка твэлов ОТВС РБМК-1000, помещенного в герметичную ампулу, присутствуют два негерметичных твэла, свободный объем которых (100 см^3)полностью заполнен водой [1];

– обогащение топлива 2,4%, выгорание 25,0 МВт·сут/кгU, выдержка 10 лет, состав радионуклидов в ОТВС – в соответствии с данными РНЦ «Курчатовский институт» [2];

– температура газовой среды внутри ампулы 72 ºС [1];

– ширина зазора между фрагментами растрескавшихся топливных таблеток 50-100 мкм для таблеток без центрального отверстия [3] и 25-50 мкм для таблеток с центральным отверстием [4].

Расчет скорости накопления водорода в ампулах с негерметичными твэлами РБМК-1000 (топливные таблетки без центрального отверстия)

Принятые консервативные допущения: топливные таблетки после эксплуатации растрескались и распределились по твэлу таким образом, что зазор «топливо-оболочка» твэла равен нулю. Радиолиз воды, попавшей в негерметичные твэлы, происходит между торцевыми поверхностями таблеток и между их фрагментами (в трещинах) при воздействии излучения в геометрии, близкой к 4 π.

Максимальный объем воды, которая может присутствовать в трещинах топливных таблеток, будет равен объему воды, которая могла бы присутствовать в зазоре «топливо-оболочка» твэла в том случае, если бы таблетки были целыми:

$$V_{\text{трещ}} = \pi \cdot l \cdot r_{\text{об}}^2 - \pi \cdot l \cdot r_m^2 = 13{,}73 \text{ см}^2, \qquad (1)$$

где l– высота топливного столба (343,2 см);

$r_{об}$ – внутренний радиус оболочки твэла (0,585 см);

r_m– радиус таблетки (0,574 см).

Поскольку, согласно данным [3, 4], ширина трещин между фрагментами таблеток и средний зазор между торцами таблеток [5] не превышают длины пробега бета-частиц в воде (для рассматриваемого ОЯТ), зависимость скорости накопления водорода от ширины трещин в таблетках можно представить в следующем виде:

$$v_H(\delta_{\text{трещ}}) = \begin{cases} v_H^{\alpha 1}(\delta_{\text{трещ}}) + v_H^{\beta}(\delta_{\text{трещ}}), \text{если } 0 < \delta_{\text{трещ}} \le L_\alpha, \\ v_H^{\alpha 2}(\delta_{\text{трещ}}) + v_H^{\beta}(\delta_{\text{трещ}}), \text{если } L_\alpha < \delta_{\text{трещ}} \le L_\beta, \end{cases} \qquad (2)$$

где $\delta_{\text{трещ}}$ – ширина трещин в таблетке, см;

$\upsilon^{\alpha 1}{}_{H}$ – скорость накопления водорода под воздействием альфа-излучения при ширине трещин $0<\delta_{трещ} \leq L_{\alpha}$ (уравнение (3)), моль/ч;

$\upsilon^{\beta}{}_{H}$ – скорость накопления водорода под воздействием бета-излучения при ширине трещин $0<\delta_{трещ} \leq 2\cdot\delta_{зазор}$ (уравнение (4)), моль/ч;

L_{α} – пробег альфа-частиц в воде со средней энергией E_{α}($42{,}5\cdot10^{-4}$ см) [1];

E_{α} – средняя энергия альфа-частиц рассматриваемого ОЯТ ($5{,}54\cdot10^{6}$ эВ) [1];

$\upsilon^{\alpha 2}{}_{H}(\delta_{трещ})$ – скорость накопления водорода под воздействием альфа-излучения при ширине трещин $L_{\alpha}<\delta_{трещ} \leq 2\cdot\delta_{зазор}$ (уравнение (5)), моль/ч;

$\delta_{зазор}$ – зазор между топливом и оболочкой, при условии, что таблетка целая (110 мкм).

$$\upsilon_{H}^{\alpha 1}(\delta_{трещ}) = \frac{0{,}5\cdot G_{H\alpha}\cdot E_{\alpha}\cdot A_{\alpha}\cdot R_{UO_2\alpha}}{100\cdot N_A}\cdot\left(\frac{2\cdot V_{торц}}{\delta_{торц}}+\frac{2\cdot V_{трещ}}{L_{\alpha}}\right), \qquad (3)$$

где $G_{H\alpha}$ – радиационный выход водорода при радиолизе воды под действием альфа-излучения (1,12 молекул/100 эВ) [6];

A_{α} – удельная активность альфа-излучателей ($1{,}1\cdot10^{8}$ Бк/г UO_2) [1];

$R_{UO2\alpha}$ – пробег альфа-частиц в UO_2 с энергией E_{α}($14{,}5\cdot10^{-3}$ г/см^2) [1];

N_A – число Авогадро ($6{,}022\cdot10^{23}$ молекул/моль);

$V_{торц}$ – суммарный объем воды между торцевыми поверхностями двух соседних таблеток в твэле (в твэле в среднем 229 таблеток) (3,2 см^3) [5];

$\delta_{торц}$ – средний зазор между торцевыми поверхностями таблеток (380 мкм) [5].

$$\upsilon_{H}^{\beta}(\delta_{трещ}) = \frac{0{,}5\cdot G_{H\beta}\cdot E_{\beta}\cdot A_{\beta}\cdot R_{UO_2\beta}\cdot(2\cdot V_{трещ}+2\cdot V_{торц})}{100\cdot N_A\cdot L_{\beta}}, \qquad (4)$$

где $G_{H\beta}$ – радиационный выход водорода при радиолизе воды под действием бета-излучения (0,45 молекул/100эВ) [6];

E_{β} – средняя энергия бета-частиц рассматриваемого ОЯТ ($314\cdot10^{3}$ эВ) [1];

A_{β} – удельная активность бета-излучателей ($6{,}98\cdot10^{9}$ Бк/г UO_2) [1];

$R_{UO2\beta}$ – пробег бета-частиц в UO_2 с энергией E_{β} ($1{,}72\cdot10^{-1}$ г/см^2) [1];

L_{β} – пробег бета-частиц в воде с энергией E_{β} ($9{,}03\cdot10^{-2}$ см) [1].

$$\upsilon_{H}^{\alpha 2}(\delta_{трещ}) = \frac{0{,}5\cdot G_{H\alpha}\cdot E_{\alpha}\cdot A_{\alpha}\cdot R_{UO_2\alpha}}{100\cdot N_A}\cdot\left(\frac{2\cdot V_{торц}}{\delta_{торц}}+\frac{2\cdot V_{трещ}}{\delta_{трещ}}\right).. \qquad (5)$$

Рассмотрим алгоритм получения формул (3)-(5) на примере формулы (3). Поток альфа-частиц, вылетающий с поверхностей фрагментов топлива, равен:

$$\upsilon_{H}^{\alpha\ нер} = \frac{0{,}5\cdot G_{H\alpha}\cdot E_{\alpha}\cdot A_{\alpha}\cdot R_{UO_2\alpha}}{100\cdot N_A}\cdot\left(\frac{V_{т.бок}^{нер}}{\delta_{бок}^{нер}}+\frac{2\cdot V_{торц}}{\delta_{торц}}\right) = 4{,}192\cdot10^{-7}\text{моль/ч}, \qquad (6)$$

где W_α – поток энергии альфа-частиц с поверхностей фрагментов топлива внутри тела растрескавшейся таблетки и с торцевых поверхностей таблетки, эВ/с;

$S_{\text{трещ}}$ – площадь поверхности фрагментов топлива внутри тела растрескавшейся таблетки, см^2;

$S_{\text{торц}}$ – площадь прилегающих друг к другу торцевых поверхностей таблеток, см^2.

Поток энергии альфа-частиц, поглощаемый водой, которая находится между фрагментами топлива, равен:

$$D_\alpha = k_\alpha \cdot W_\alpha = 0{,}5 \cdot k_\alpha \cdot E_\alpha \cdot A_\alpha \cdot (S_{\text{трещ}} + S_{\text{торц}}) \cdot R_{UO_2\alpha}, \tag{7}$$

где k_α – доля энергии частиц, поглощаемая водой:

$$k_\alpha = \frac{\delta}{L_\alpha} = \begin{cases} 1, & \delta \geq L_\alpha, \\ \frac{\delta}{L_\alpha}, & \delta < L_\alpha, \end{cases} \tag{8}$$

где δ – ширина зазора между фрагментами топлива (трещинами или торцевыми поверхностями), см.

Скорость накопления молекул водорода в воде под действием альфа-излучения равна [6]:

$$v_H^\alpha = \frac{G_{H\alpha} \cdot D_\alpha}{100 \cdot N_A}, \tag{9}$$

где v^α_H– скорость накопления водорода под воздействием альфа-излучения, моль/ч.

Тогда в случае неполного поглощения водой альфа-частиц между фрагментами топлива ($k_\alpha = \delta_{\text{трещ}}/L_\alpha$) и полного поглощения между торцевыми поверхностями таблеток (k_α=1), подставляя (7) в (9), получаем, что скорость накопления водорода составит:

$$v_H^\alpha = \frac{G_{H\alpha} \cdot 0{,}5 \cdot E_\alpha \cdot A_\alpha \cdot R_{UO_2\alpha} \cdot \delta_{\text{трещ}} \cdot S_{\text{трещ}}}{100 \cdot N_A \cdot L_\alpha} + \frac{G_{H\alpha} \cdot 0{,}5 \cdot E_\alpha \cdot A_\alpha \cdot R_{UO_2\alpha} \cdot S_{\text{торц}}}{100 \cdot N_A} = \frac{0{,}5 \cdot G_{H\alpha} \cdot E_\alpha \cdot A_\alpha \cdot R_{UO_2\alpha}}{100 \cdot N_A} \cdot \left(\frac{2 \cdot V_{\text{трещ}}}{L_\alpha} + \frac{2 \cdot V_{\text{торц}}}{\delta_{\text{торц}}} \right) \tag{10}$$

При графическом представлении выполненных расчетов (рис. 1) видно, что максимальная скорость накопления водорода соответствует ширине трещин, не превышающей величину пробега альфа-частиц в воде (42,5 мкм). Численное значение максимальной скорости накопления водорода равно 3,866·10^{-6} моль/ч. Минимальная скорость накопления водорода

на рассматриваемом участке при ширине трещин в таблетке, равной длине пробега бета-частиц в воде (220 мкм) равна $2{,}322 \cdot 10^{-6}$ моль/ч.

Таким образом, полученное отношение максимальной скорости накопления водорода к минимальной, равное $3{,}866 \cdot 10^{-6} / 2{,}322 \cdot 10^{-6} = 1{,}66$, что может служить показателем неопределенности, обусловленной отсутствием точной информации о ширине трещин в таблетках. Уточнение возможного диапазона ширины трещин в таблетках позволяет снизить консерватизм оценок.

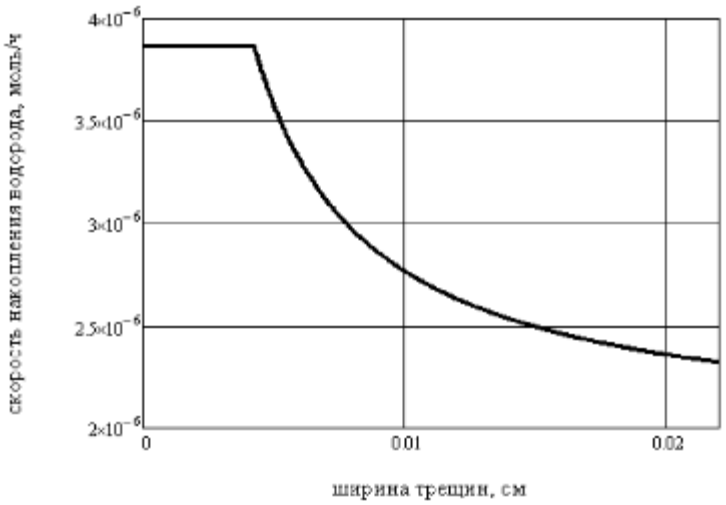

Рисунок 1. Зависимость скорости накопления водорода от ширины трещин в таблетках твэлов РБМК без центрального отверстия

При отсутствии растрескивания таблеток скорость накопления водорода за счет воздействия альфа-излучения на воду:

(11)

где $V^{нер}_{т.бок}$ – объем воды в зазоре «топливо-оболочка» целой таблетки (13,73 см^3);

$\delta^{нер}_{бок}$ – радиальная величина зазора между топливом и оболочкой (110 мкм).

Соответствующая скорость накопления водорода за счет воздействия β-излучения на воду:

(12)

Вследствие этого, скорость накопления водорода от действия альфа- и бета-излучения для целых таблеток ($1{,}55 \cdot 10^{-6}$ моль/ч) в 2,5 раза меньше максимально возможной скорости при наличии трещин в таблетке, что характеризует значение неопределенности, обусловленной отсутствием информации о наличии и ширине трещин в таблетках.

Расчет скорости накопления водорода в ампулах с негерметичными твэлами РБМК-1000 (таблетки с центральным отверстием)

Топливные таблетки данного вида имеют отверстие по центру радиусом $r_{отв}$ =0,095 см. Объем воды, которая может находиться в центральных отверстиях, равен:

$$V_{отв} = 229 \cdot \pi \cdot l_{отв} \cdot r_{отв}^2 = 7{,}27 \text{ см}^3, \quad (13)$$

где $l_{отв}$ – высота центрального отверстия в таблетке, см.

При использовании допущений, аналогичных приведенным в предыдущем разделе, скорость накопления водорода в таблетках с центральным отверстием можно представить следующим образом:

$$v_{H\,ЦО}(\delta_{трещ}) = \begin{cases} v_{H\,ЦО}^{\alpha 1}(\delta_{трещ}) + v_{H\,ЦО}^{\beta}(\delta_{трещ}), \text{если } 0 < \delta_{трещ} \le L_\alpha, \\ v_{H\,ЦО}^{\alpha 2}(\delta_{трещ}) + v_{H\,ЦО}^{\beta}(\delta_{трещ}), \text{если } L_\alpha < \delta_{трещ} \le L_\beta, \end{cases} \quad (14)$$

где $v^{\alpha 1}_{H ЦО}$ – скорость накопления водорода под воздействием альфа-излучения при ширине трещин $0<\delta_{трещ}\le L_\alpha$ (описывается уравнением (11));

$v^{\beta}_{H ЦО}$ – скорость накопления водорода под воздействием бета-излучения при ширине трещин $0<\delta_{трещ}\le 2\cdot\delta_{зазор}$ (описывается уравнением (12));

$v^{\alpha 2}_{H ЦО}(\delta_{трещ})$ – скорость накопления водорода под воздействием альфа-излучения при ширине трещин $L_\alpha<\delta_{трещ}\le 2\cdot\delta_{зазор}$ (описывается уравнением (13)).

Согласно экспериментальным данным [5, 6], количество трещин, образующихся в таблетках с центральным отверстием, меньше, чем в таблетках без центрального отверстия. Однако из консервативных соображений примем, что количество трещин одинаково. Тогда объем воды, который может оказаться в трещинах таблеток с центральным отверстием, будет составлять от соответствующего объема воды в таблетках без трещин:

$$\left(1 - \frac{d_{отв}^2}{d_{табл}^2}\right) = 0{,}97 \text{ раз}, \quad (15)$$

где $d_{отв}$ – диаметр центрального отверстия (1,9 мм);

$d_{табл}$ – диаметр таблетки (11,48 мм).

Таким образом, объем воды, который может находиться в трещинах таблеток с центральным отверстием, составит 13,32 см^3.

Несложно показать, что уравнения для расчета скоростей образования водорода $v^{\alpha 1}_{H ЦО}$, $v^{\alpha 2}_{H ЦО}(\delta_{трещ})$, $v^{\beta}_{H ЦО}$ в данном случае имеют вид:

$$v_{H\,ЦО}^{\alpha 1}(\delta_{трещ}) = \frac{0{,}5\cdot G_{H\alpha}\cdot E_\alpha\cdot A_\alpha\cdot R_{UO_2\alpha}}{100\cdot N_A}\cdot\left(\frac{2\cdot V_{торц}}{\delta_{торц}} + \frac{2\cdot V_{трещ\,ЦО}}{L_\alpha} + \frac{2\cdot V_{отв}}{r_{отв}}\right), \quad (16)$$

где $V_{трещ\ ЦО}$ – объем воды, который может находиться в трещинах таблеток с центральным отверстием (13,32 см^3).

(17)

(18)

При этом максимальная и минимальная скорость накопления водорода составляют, соответственно, $4{,}584 \cdot 10^{-6}$ моль/ч (для ширины трещин не более 42,5 мкм) и $3{,}087 \cdot 10^{-6}$ моль/ч (для ширины трещины 220 мкм). Отношение максимальной скорости накопления водорода к минимальной равно 1,49 (рис. 2).

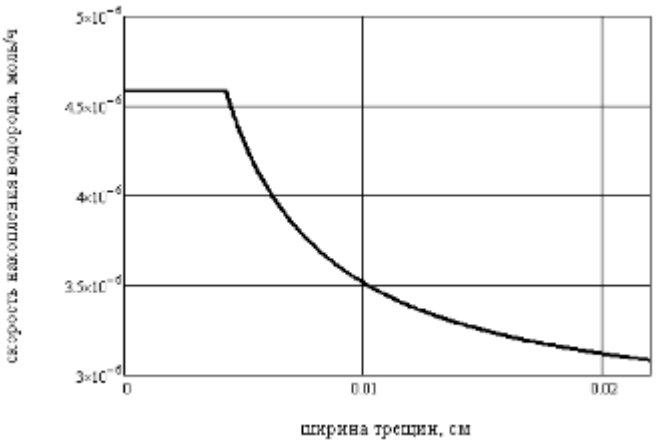

Рисунок 2. Зависимость скорости накопления водорода от ширины трещин в таблетках твэлов РБМК с центральным отверстием

Когда таблетки с центральным отверстием целые, скорость накопления водорода от действия альфа-излучения на воду составит:

(19)

Скорость накопления водорода от действия бета-излучения:

(20)

Таким образом, скорость накопления водорода от действия альфа- и бета-излучения на воду при целых топливных таблетках с центральным отверстием, равная $2{,}37 \cdot 10^{-6}$ моль/ч, меньше максимально возможной скорости в 1,93 раза.

При расчетах объемной концентрации радиолитического водорода следует использовать максимальные значения скоростей накопления водорода, рассчитываемые в соответствии с представленными алгоритмами.

При этом не требуется введение коэффициентов запаса, поскольку полученные значения объемной концентрации водорода будут заведомо консервативными из-за того, что при расчетах не учитывается снижение концентрации водорода за счет химических реакций. Учет последнего обстоятельства крайне сложен из-за наличия большого количества неопределенностей.

Библиографический список:

1. Оценка пожаро - и взрывобезопасности при транспортировке ОЯТ РБМК: техническая справка. /ООО НПФ «Сосны». – Москва, 2011.

2. Подготовка исходных данных по радиационным характеристикам и нуклидному составу ОЯТ РБМК-1000 для обоснования безопасности его транспортирования и оценки целесообразности переработки: техническая справка. / НИЦ «Курчатовский институт». – Москва, 2011.

3. New Generation VVER and RBMK Fuel: Results of Post-irradiation Examinations, Justification of Operational Reliability, D.V. Markov, S.V. Pavlov, A.Ye. Novoselov at al. // 2010 LWR Fuel Performance Meeting/TopFuel/WRFPM. – September 26-29, 2010, Orlando, Florida, USA.

4. МарковД.В., ПавловС.В., Новосёлов А.Е. и другие. Топливо ВВЭР и РБМК нового поколения: результаты послереакторных исследований, обоснование надёжности и работоспособности. // Сборник докладов 9-ой Российской конференции по реакторному материаловедению, ОАО «ГНЦ НИИАР», Димитровград, 14–18 сентября 2009.

5. Обоснование ядерной, пожаро- и взрывобезопасности, тепловой расчет транспортно-упаковочного комплекта ТУК-11Р-2, загруженного 16 пучками твэлов опытной партии некондиционных ОТВС реактора РБМК-1000 Ленинградской АЭС: отчет. /ООО НПФ «Сосны». – Димитровград, 2011.

6.КабакчиС.А., БулгаковаГ.П.. Радиационная химия в ядерном топливном цикле: учебное пособие. – М.: РХТУ им. Менделеева, 1997.

ГАЯЗОВ А.З.[1], КУЗЬМИН И.В.[1], ЛЕЩЕНКО А.Ю.[1], СЕРЕБРЯКОВ В.В.[2], ХРЕНОВ А.С.[2]

[1]ООО НПФ «Сосны», г Димитровград, Россия
[2]ОАО «Государственный научный центр научно-исследовательский институт атомных реакторов,г. Димитровград, Россия

ИССЛЕДОВАНИЕ ГРАНУЛОМЕТРИЧЕСКОГО СОСТАВА И ВЫХОДА РАДИОАКТИВНЫХ ВЕЩЕСТВ ИЗ ПРОДУКТОВ РЕЗКИ ПРИ МОДЕЛИРОВАНИИ РАЗДЕЛКИ ОЯТ АМБ ПОД ВОДОЙ

Представлены методы, оборудование и результаты экспериментальных исследований гранулометрического состава продуктов резки облученного твэла с дисперсным топливом (U-9%Mo)+Mg и выхода радиоактивных веществ из продуктов резки облученных твэлов с дисперсным топливом (U 9%Mo)+Mg и UC+Ca. Резку образцов прово-