

УДК 544.542

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/13

В.А. ГРАЧЕВ, А.Б. САЗОНОВ

ОБРАЗОВАНИЕ РАДИОЛИТИЧЕСКОГО ВОДОРОДА В БВ ВВЭР-1000 В РЕЗУЛЬТАТЕ АВАРИЙНОЙ ВЫГРУЗКИ ТОПЛИВА

Разработаны методика расчета мощности поглощенной дозы ионизирующего излучения в бассейне выдержки водо-водяного энергетического реактора и методика расчета скорости образования радиолитического водорода. Представлены результаты модельного расчета образования водорода при протекании запроектной аварии без плавления топлива с аварийной выгрузкой последнего. Показано, что для выбранных условий превышения содержания водорода в защитной оболочке не происходит.

Ключевые слова: ВВЭР, бассейн выдержки, водород, мощность поглощенной дозы, радиолиз, авария.

Введение

При проектировании атомных электрических станций (АЭС) особое внимание уделяется вопросам безопасности, связанным с протеканием проектных и запроектных аварий и с ликвидацией их последствий. В качестве примера запроектной аварии часто рассматривают сценарий полного обесточивания станции в течение 7 сут, без плавления топлива, с последующей его выгрузкой в бассейн выдержки (БВ) отработавшего ядерного топлива (ОЯТ).

В режиме нормальной эксплуатации реакторной установки (РУ) часть отработавших тепло-выделяющих сборок (ТВС) в конце цикла работы на мощности выгружается из активной зоны (АЗ) и помещается в БВ с целью снижения активности ОЯТ со временем. Многолетний опыт эксплуатации АЭС показывает, что создаваемая при этом мощность дозы излучения в БВ соответствует условиям, при которых равновесная концентрация водорода под защитной оболочкой (ЗО) реактора не превышает 0.2–0.3 об. %. Это на порядок меньше нижнего концентрационного предела распространения пламени.

В случае аварийной выгрузки топлива в БВ мощность дозы увеличивается, что вызывает ускоренное разложение воды и, следовательно, рост концентрации H_2 в воздухе. Как известно, нижний концентрационный предел распространения пламени в воздухе при нормальных условиях составляет $\sim 4H_2$ (об. %). Превышение этого значения является нарушением критерия пожаро- и взрывобезопасности помещения, что в контексте аварийной ситуации на АЭС недопустимо.

В настоящей работе излагается методика расчета скорости образования радиолитического водорода для РУ с ВВЭР-1000 при аварийной выгрузке ТВС в БВ, позволяющая прогнозировать его накопление в воздухе под ЗО.

Методика расчета

Мощность дозы в воде БВ

Мощность дозы излучения, поглощенного водой БВ, пропорциональна остаточному тепло-выделению (ОТВ) ТВЭЛов и обусловлена накопившимися в них как продуктами деления (ПД) ядерного топлива, так и продуктами захвата нейтронов. Поэтому радионуклидный состав ОЯТ представлен α -, β - и γ -излучающими ядрами.

Пробег α -частиц в конденсированных средах измеряется десятками микрометров, поэтому их вклад в формирование дозы в воде близок к нулю. Кроме того, основные α -излучатели ОЯТ (^{238}U , ^{235}U , ^{236}U и др.) имеют весьма длительные периоды полураспада, а содержание короткоживущих изотопов трансурановых элементов сравнительно невелико. В связи с этим вкладом α -излучателей в ОТВ на стадии хранения ОЯТ в БВ можно пренебречь. Для оценки количества водорода, выделяющегося в БВ, такой подход является не только консервативным, но и достаточно строгим, поскольку доля α -излучения в тепловыделении увеличивается со временем выдержки ОЯТ, но само тепловыделение, а значит, и скорость образования водорода при этом уменьшается.

Максимальный пробег β -частиц в материалах достигает нескольких миллиметров, а средний пробег γ -квантов – десятков сантиметров. Среди β - и γ -излучающих ПД – множество радионуклидов (РН), имеющих самые разные периоды полураспада, энергии распада и выходы при делении.

Ради простоты дальнейших оценок примем, что мощность дозы от наиболее высокоэнергетических β -частиц ПД (еще способных проникнуть через оболочку твэла) равна мощности дозы от самых низкоэнергетических γ -квантов (почти на 100% поглощающихся в оболочке). В этом случае можно считать, что мощность поглощенной дозы в бассейне выдержки определяется только γ -квантами, испускаемыми ПД. Согласно [1], энергии запаздывающего β - и γ -излучения ПД (как ^{235}U , так и ^{239}Pu) практически равны. Таким образом, можно вполне обоснованно принять, что энергия ОТВ твэлов, приходящаяся на γ -излучение, составляет 50% от их суммарного тепловыделения.

Взаимодействие γ -квантов с веществом, в ходе которого их энергия передается веществу, имеет место в общем случае в трех основных процессах: фотоэффекте, эффекте Комптона и образовании электрон-позитронных пар. В [2, 3] приведены уравнения, использовавшиеся для расчета сечений этих процессов, а также полного сечения передачи энергии γ -квантов веществу.

Далее будем считать, что в бассейне выдержки присутствуют четыре основных вида материалов: вода, ОЯТ, циркониевые сплавы, из которых изготовлены ТВС, а также материалы стеллажей (аустенитные стали). Без потери точности дальнейших расчетов примем, что химический состав ОЯТ соответствует формуле UO_2 , а в составе материалов ТВС и стеллажей присутствуют только цирконий и железо соответственно. С точки зрения вероятности поглощения γ -квантов наличие в ОЯТ продуктов деления (с меньшим атомным номером, чем у урана) компенсируется одновременным присутствием в нем трансурановых элементов, а содержание хрома в стали – содержанием в ней никеля. Эффектами, вносимыми другими элементами (ниобий, бор и т.п.), пренебрегаем ввиду их малой концентрации.

С учетом того, что размеры БВ существенно превышают средний пробег γ -кванта с энергией ~ 1 МэВ в воде, доля энергии γ -квантов, поглощенных водой бассейна, может быть оценена в пределе бесконечно большого объема как

$$f_{\text{H}_2\text{O}} = \frac{N_{\text{H}_2\text{O}} \sigma_{\text{H}_2\text{O}}}{N_{\text{H}_2\text{O}} \sigma_{\text{H}_2\text{O}} + N_{\text{UO}_2} \sigma_{\text{UO}_2} + N_{\text{Zr}} \sigma_{\text{Zr}} + N_{\text{Fe}} \sigma_{\text{Fe}}}, \quad (1)$$

где величины N_i обозначают количество веществ (моль), $i = \text{H}_2\text{O}$, UO_2 , Zr или Fe , а σ_i – полные сечения передачи энергии γ -квантов молекулам воды, диоксида урана, атомам циркония и железа соответственно. Так как в правую часть (1) входят сечения, определяемые для монохроматических γ -квантов, коэффициент $f_{\text{H}_2\text{O}}$ также зависит от E_γ .

В свете сделанных допущений мощность поглощенной дозы γ -излучения (Гр/с) в воде БВ можно рассчитать следующим образом:

$$\dot{D}_\gamma = \frac{W \cdot f_\gamma}{m_{\text{H}_2\text{O}}} \sum_{E_\gamma} f_{\text{H}_2\text{O}} \cdot f_{E_\gamma}, \quad (2)$$

где W – мощность ОТВ твэлов, Вт; $f_\gamma = 0.5$ – доля мощности ОТВ, приходящейся на γ -излучение; $m_{\text{H}_2\text{O}}$ – масса облучаемой воды, кг; f_{E_γ} – доля энергии γ -излучения, приходящейся на полосу спектра с энергией E_γ . Суммирование в формуле (2) ведется по всем полосам спектра испускаемых γ -квантов.

Для дискретного спектра γ -излучения ПД

$$f_{E_\gamma} = \frac{s(E_\gamma) \lambda(E_\gamma) y(E_\gamma) E_\gamma}{\sum_{E_\gamma} s(E_\gamma) \lambda(E_\gamma) y(E_\gamma) E_\gamma}, \quad (3)$$

где $s(E_\gamma)$ – выход РН при делении топлива; $\lambda(E_\gamma)$ – его постоянная распада; $y(E_\gamma)$ – интенсивность группы монохроматических γ -квантов с энергией E_γ . При соответствующем переопределении формула (3) может использоваться и для учета вклада трансурановых элементов в общий γ -спектр.

Значения плотности потока энергии γ -излучения, испускаемого АЗ остановленного реактора в течение первых 100 сут после останова, представлены в [4] для семи основных энергетических групп γ -квантов. Эти данные после нормирования на единицу (т.е. получив значения f_{E_γ}) использовали для расчета мощности дозы от ТВС с выдержкой менее года. Для ТВС с большим временем выдержки пользовались формулой (3), а также тем, что γ -активность ОЯТ на протяжении первых 10 лет хранения определяют на 99% и более следующие несколько РН: ^{134}Cs , ^{137}Cs , $^{106}\text{Ru} + ^{106}\text{Rh}$,

$^{144}\text{Ce}+^{144}\text{Pr}$, а также (в первые 1–2 года) $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$. В [5] приведены ядерно-физические свойства этих РН; выходы при делении ^{235}U и ^{239}Pu указанных РН представлены в [6].

В табл. 1 представлены данные по содержанию воды, топлива (на примере ТВС-2М) и основных конструкционных материалов БВ, использованные при расчете доли энергии γ -излучения, поглощаемого водой [7, 8]. Предполагается, что в условиях аварии емкость БВ по ОЯТ будет реализована практически на 100%. В силу этого все материалы будем считать распределенными между малым и большим отсеками бассейна пропорционально числу ТВС, размещаемых в них (214 и 345 ТВС соответственно).

Таблица 1

Содержание воды, топлива и конструкционных материалов в отсеках БВ

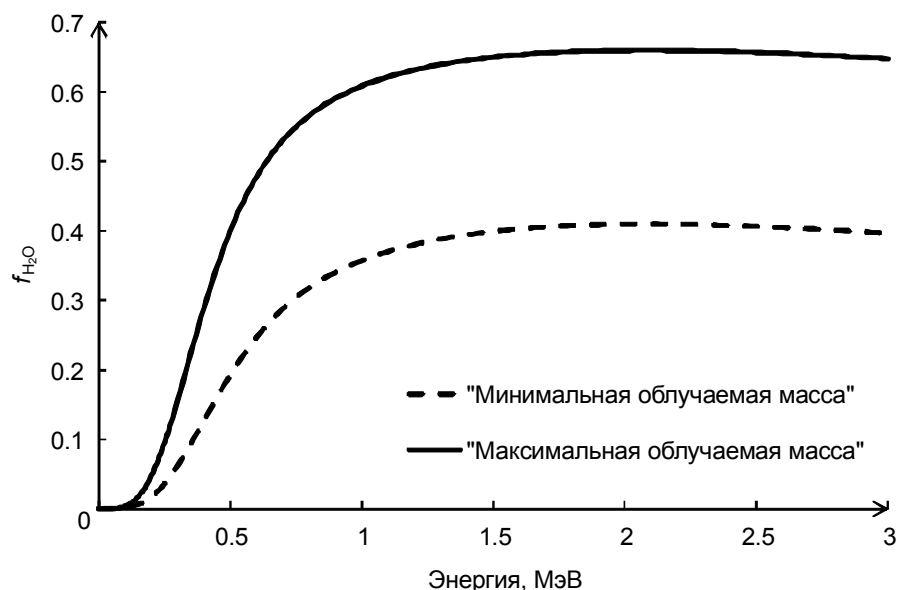
| Материал | Малый отсек, т | Большой отсек, т |
|---------------------------|----------------|------------------|
| Топливо (UO_2) | 114.2 | 184.1 |
| Zr (сплавы) | 74.9 | 120.8 |
| Аустенитная сталь | 86.1 | 138.9 |
| Вода | 507.6 | 818.4 |

Поскольку определение точного значения $f_{\text{H}_2\text{O}}$ для объекта конечных размеров и неправильной формы является довольно сложной задачей, были использованы следующие приближения.

1. «Минимальная облучаемая масса» воды БВ. Принимается, что энергия γ -излучения, испускаемого ТВС, поглощается, помимо всей массы топлива и конструкционных материалов, слоем воды, высота которого примерно равна высоте ТВС (в расчетах использовали значение 5 м).

2. «Максимальная облучаемая масса» воды БВ. Принимается, что энергия γ -излучения поглощается, помимо всей массы топлива и конструкционных материалов, всей массой воды, находящейся в бассейне.

Количество воды $N_{\text{H}_2\text{O}}$, входящее в формулу (1), рассчитывается для этих двух предельных случаев. Результаты расчетов $f_{\text{H}_2\text{O}}$ как функции E_γ представлены на рис. 1. Видно, что для самых «мягких» γ -квантов ($E_\gamma < 200$ кэВ) значения $f_{\text{H}_2\text{O}}$ стремятся к нулю, что обусловлено фотоэффектом в материалах с большими атомными номерами. Для «жестких» γ -квантов (с энергией 1.5 МэВ и выше) коэффициент $f_{\text{H}_2\text{O}}$ достигает максимума и далее меняется мало. Величина максимума зависит от соотношения между количествами материалов. Как показывает расчет, средние по спектрам γ -излучения ТВС значения $f_{\text{H}_2\text{O}}$ мало отличаются друг от друга: для «минимальной» облучаемой массы воды они равны 0.25 и 0.23, тогда как для «максимальной» массы это 0.53 и 0.52 в малом и большом отсеках соответственно. Доля делений ^{235}U и ^{239}Pu в общем числе делений топлива также не влияет на среднее $f_{\text{H}_2\text{O}}$.

Рис. 1. Доля энергии γ -излучения, поглощаемая водой бассейна

Радиолиз воды

Определение концентраций продуктов радиолиза воды в БВ осуществляется путем решения системы дифференциальных уравнений:

$$\frac{dC_i}{dt} = \frac{\dot{D}_\gamma \rho G_{0i}}{e N_A} - C_i \sum_j k_{ij} C_j + \sum_m \sum_n k_{mn} C_m C_n \delta_i(m, n), \quad (4)$$

где C_i – концентрация i -го компонента, моль/л; t – время, с; ρ – плотность воды, кг/л; G_{0i} – первичный выход образования (разложения) i -го компонента, молекула/эВ; e – элементарный заряд, Кл; N_A – число Авогадро, моль⁻¹; k_{ij} – константа скорости бимолекулярной реакции между i -м и j -м компонентами, л/(моль·с); $\delta_i(m, n)$ – множитель, равный 1, если в ходе реакции между m -м и n -м компонентами образуется i -й компонент, и нулю во всех остальных случаях.

Уравнения температурной зависимости G_{0i} при γ -радиолизе воды можно найти в работах [9, 10]. Перечень реакций, которые мы использовали для описания радиолиза воды, преимущественно взят из [11]. Кинетические характеристики реакций были взяты из базы данных [12]. Пересчет значений констант скоростей при 25 °С на другую температуру проводили по уравнению Аррениуса. Если для реакции не было найдено значение энергии активации, его принимали равным энергии активации самодиффузии воды, 12,6 кДж/моль. Данное допущение основано на том, что энергии активации большинства быстрых реакций в воде меньше или соизмеримы с энергией активации диффузии ее молекул.

Так как концентрации частиц могут изменяться во времени со скоростями, различающимися на несколько порядков величины, система (4) – жесткая. Ее решение в рамках данной работы осуществлялось методом формул дифференцирования назад.

Скорость образования радиолитического H_2 рассчитывалась с учетом работы вентиляционной системы, поддерживающей в условиях нормальной эксплуатации стационарную концентрацию водорода в воздухе на уровне 0,25 об. %. Равновесная ей концентрация H_2 в воде БВ определялась из закона Генри с использованием данных работы [13].

Пример расчета

Исходные данные

В следующем примере рассмотрим образование H_2 при аварийной выгрузке топлива в БВ. Примем, что ТВС семисуточной выгрузки полностью размещаются в малом отсеке БВ. Там же размещается 51 ТВС со временем выдержки 30 сут. Всего в малом отсеке находятся 214 ТВС, что соответствует полной емкости отсека. В большом отсеке находятся 15 ТВС со временем выдержки 30 сут и по 66 ТВС со временами выдержки от 1,5 до 7,5 лет с шагом 1,5 года, т.е. всего 345 ТВС. В табл. 2 представлены данные по остаточному тепловыделению ТВС различного времени выдержки в БВ. При расчетах учитывалось, что мощность ОТВ 7-суточных ТВС снижается, а для остальных ТВС – практически постоянна во времени.

Таблица 2

Мощность ОТВ для ТВС с различными временами выдержки

| Время выдержки ТВС в БВ | Количество ТВС в БВ, шт. | Мощность ОТВ одной ТВС, кВт | Мощность ОТВ группы ТВС, кВт |
|----------------------------|--------------------------|-----------------------------|------------------------------|
| 7 сут (аварийная выгрузка) | 163 | 50.42 | 8219 |
| 30 сут | 66 | 25.99 | 1715.2 |
| 1.5 год | 66 | 3.54 | 233.6 |
| 3 года | 66 | 1.63 | 108 |
| 4.5 года | 66 | 1.03 | 68 |
| 6 лет | 66 | 0.79 | 52.7 |
| 7.5 лет | 66 | 0.69 | 45.5 |

Дополнительные меры по управлению аварией подразумевают в том числе и работу установок системы специальной вентиляции для поддержания допустимой объемной активности в воздухе в зоне ограниченного доступа.

Таким образом, в герметичной оболочке в течение всего времени аварии осуществляется непрерывный воздухообмен.

В табл. 3 представлены данные о состоянии воды БВ и воздуха в ЗО, использованные для расчета.

Таблица 3

Состояние воды в БВ и воздуха внутри ЗО

| Параметр | Значение |
|---|----------|
| Температура воды в БВ, °С | 60 |
| Температура воздуха внутри ЗО, °С | 60 |
| Давление воздуха внутри ЗО, кПа | 101.3 |
| Объем воздуха в ЗО, м ³ | 65000 |
| Стационарная концентрация Н ₂ в воздухе, об. % | 0.25 |

Скорость образования радиолитического водорода

Количество образующегося Н₂ пропорционально энергии, поглощенной облучаемой средой. Из расчетов по (1) (см. рис. 1) следует, что при облучении «максимальной» массы количество образующегося Н₂ будет примерно в 2 раза больше, чем при облучении «минимальной» массы воды бассейна. То есть нижний предел образования Н₂ соответствует «минимальной облучаемой массе», а верхний предел – «максимальной облучаемой массе» воды бассейна.

В табл. 4 приведены значения мощности поглощенной дозы в малом и большом отсеках, рассчитанные по формуле (2) для «минимальной» и «максимальной» облучаемой массы воды в начальный момент времени и через 7 сут. Приведенные значения получены суммированием вкладов всех групп ТВС. Значения f_{H_2O} рассчитывались с учетом времени выдержки ТВС в бассейне. Мощность поглощенной дозы, которую создает γ -излучение 7- и 30-суточных ТВС в малом отсеке, изменяется линейно в соответствии с падением мощности ОТВ. Так как мощность ОТВ всех ТВС, кроме 7-суточных, принимается постоянной во времени, мощность поглощенной дозы γ -излучения от ТВС, располагающихся в большом отсеке, также постоянна.

Значения скорости образования водорода в малом и большом отсеках БВ также представлены в табл. 4. Согласно расчетам, для малого отсека скорость снижается от $2 \cdot 10^{-4}$ до $1.5 \cdot 10^{-4}$ кг/с в верхнем пределе и от $1 \cdot 10^{-4}$ до $0.75 \cdot 10^{-4}$ кг/с в нижнем пределе. В связи с тем, что мощность поглощенной дозы в большом отсеке остается постоянной в течение всего времени аварии, скорость образования водорода также постоянна и составляет $0.2 \cdot 10^{-4}$ кг/с в верхнем пределе и около $0.1 \cdot 10^{-4}$ кг/с в нижнем пределе.

Таблица 4

Мощность поглощенной дозы (Гр/с) / скорость образования водорода (10^{-4} кг/с)

| Масса облучаемой воды | Малый отсек | | Большой отсек | |
|-----------------------|----------------------------|-------------|----------------------------|-------------|
| | В начальный момент времени | Через 7 сут | В начальный момент времени | Через 7 сут |
| «Минимальная» | 7.8 / 1.0 | 6.0 / 0.75 | 0.43 / 0.1 | 0.43 / 0.1 |
| «Максимальная» | 4.7 / 2.0 | 3.6 / 1.5 | 0.27 / 0.2 | 0.27 / 0.2 |

На рис. 2 представлены расчетные значения массы водорода, поступившего в воздух ЗО из большого и малого отсека БВ.

Согласно результатам расчетов, под ЗО за счет разложения воды в малом отсеке БВ за 7 сут поступает от 54 до 110 кг водорода, а за счет разложения воды в большом отсеке БВ – еще от 6 до 13 кг. Это объясняется различием в мощностях дозы, создаваемой в отсеках бассейна ТВС с разным временем выдержки.

Суммарное количество водорода, которое может поступить в воздух под ЗО за 7 сут аварии, составляет от 60 до 123 кг.

Реальные мощности поглощенной дозы и скорости образования водорода в отсеках бассейна, а также количество водорода, которое поступает в воздушную часть контейнента, находятся между показателями нижнего и верхнего пределов.

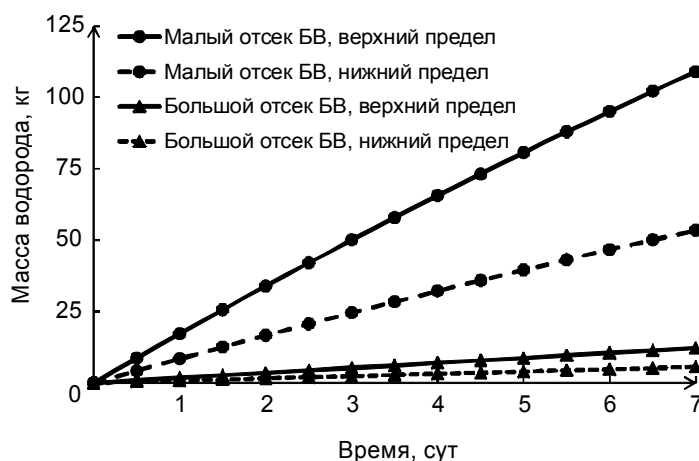


Рис. 2. Масса водорода, поступившего в воздух 3О из большого и малого отсеков БВ

Выводы

Результаты расчетов показывают, что в рассматриваемом сценарии аварии концентрация образующегося водорода не превышает нижнего концентрационного предела распространения пламени. Поступление водорода в количестве 123 кг соответствует его объемному содержанию около 2.5%. Следует учесть, что в приведенном примере все это количество не накапливается в воздухе под 3О, а удаляется благодаря работе системы вентиляции. В случае отказа последней накопление водорода возможно, однако повышение концентрации H_2 в воздухе увеличивает и его равновесную концентрацию в воде, что, как известно, замедляет процесс ее разложения. С этой точки зрения рассчитанная концентрация радиолитического H_2 (2.5%) является оценкой «сверху», и в рассматриваемом случае превышения концентрационного предела не будет наблюдаться ни при каких дополнительных условиях, предусмотренных сценарием аварии. С другой стороны, увеличение мощности дозы, например, вследствие повреждения оболочек ТВЭЛов и выхода ПД в воду БВ, является фактором, однозначно повышающим скорость образования и потенциально возможного накопления водорода выше предела пожаро- и взрывобезопасности.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Бабичев А.П., Бабушкина Н.А., Братковский А.М. и др. Физические величины: справочник / под ред. И.С. Григорьева, Е.З. Мейлихова. – М.: Энергоатомиздат, 1991.
2. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Теоретическая физика: учеб. пособие: в 10 т. Т. IV / В.Б. Берестецкий, Е.М. Лифшиц, Л.П. Питаевский. Квантовая электродинамика. – 3-е изд., испр. – М.: Наука, 1989.
3. Гусев Н.Г., Климанов В.А., Машкович В.П., Суворов А.П. Защита от ионизирующих излучений. Т. 1. Физические основы защиты от излучений. – М.: Энергоатомиздат, 1986.
4. Егоров Ю.А. Основы радиационной безопасности атомных электростанций: учеб. пособие для вузов / под общ. ред. Н.А. Доллежаля. – М.: Энергоиздат, 1982.
5. Mills R. W. Fission Product Yield Evaluation. – School of Physics and Space Research, University of Birmingham, 1995.
6. <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/index.asp>
7. Будаев М.А., Васильев А.Д., Звонарев Ю.А. и др. // Сб. трудов 8-й МНТК «Обеспечение безопасности АЭС с ВВЭР». – Подольск, Россия, 2013.
8. Безбородов А.Н., Меркулов В.В. // Сб. трудов 9-й МНТК «Обеспечение безопасности АЭС с ВВЭР». – Подольск, Россия, 2015.
9. Elliot A.J., Chenier M.P., and Ouellette D.C. // J. Chem. Soc., Faraday Trans. – 1993. – V. 89. – No. 8. – P. 1193–1197.
10. Sunaryo G.R., Katsumura Y., Hiroishi D., and Ishigure K. // Radiat. Phys. Chem. – 1995. – V. 45. – No. 1. – P. 131–139.
11. Бяков В.М., Ничипоров Ф.Г. Радиолитиз воды в ядерных реакторах. – М.: Энергоатомиздат, 1990.
12. <https://kinetics.nist.gov/solution/>
13. Himmelblau D.M. // J. Chem. Eng. Data. – 1960. – V. 5. – No. 1. – P. 10–15.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

НИЦ «Курчатовский институт», г. Москва, Россия

Грачев Василий Алексеевич, инженер НИЦ «Курчатовский институт», e-mail: vasya-grachyov@yandex.ru;

Сазонов Алексей Борисович, к.х.н., ведущ. науч. сотр. НИЦ «Курчатовский институт», e-mail: absazonov@mail.ru.

V.A. GRACHEV, A.B. SAZONOV

FORMATION OF RADIOLYTIC HYDROGEN IN VVER-1000 SPENT FUEL POOL CAUSED BY EMERGENCY FUEL DISCHARGE

The computational methods to estimate ionizing radiation absorbed dose rate in the spent fuel pool of water-water power reactor and to simulate formation of radiolytic hydrogen have been developed. The results of simulation in case of beyond design basis accident (without core meltdown) followed by emergency fuel discharge are presented. It is shown that concentration of hydrogen does not exceed the safety limit at the conditions described.

Keywords: *VVER, spent fuel pool, hydrogen, absorbed dose rate, radiolysis, accident.*

NRC «Kurchatov Institute», Moscow, Russia

Grachev Vasiliy Alexeevich, Engineer NRC «Kurchatov Institute», e-mail: vasya-grachyov@yandex.ru;

Sazonov Alexey Borisovich, Ph.D. Chemistry, Leading Research Scientist NRC «Kurchatov Institute», e-mail: absazonov@mail.ru.