

УДК 541.15+621.039.577

ФЕНОМЕН ГИСТЕРЕЗИСА ПРИ РАДИОЛИЗЕ ТЕПЛОНОСИТЕЛЯ РЕАКТОРА С ВОДОЙ ПОД ДАВЛЕНИЕМ И ЕГО ВЛИЯНИЕ НА КРИТИЧЕСКУЮ КОНЦЕНТРАЦИЮ ВОДОРОДА

Архинов О.П. (АО «НИКИЭТ», г. Москва), Кабакчи С.А. (НИЦ «Курчатовский ин-т», г. Москва)

Флуктуации качества и мощности дозы реакторного излучения могут быть причиной изменений кинетики радиолиза водного теплоносителя, таких, как возбуждение колебательного процесса или реализация множественности стационарных состояний при постоянных усредненных условиях облучения [1, 2]. Цель настоящей работы состоит в исследовании влияния теплофизических особенностей активной зоны реакторной установки на закономерности радиационно-химического процесса. В качестве индикатора выбрана минимальная концентрация водорода, достаточная для минимизации до коррозионно безопасного уровня концентрации окислителей в водном теплоносителе первого контура энергетических реакторов с водой под давлением.

В классическом уравнении материального баланса радиолиза воды

$$[\text{H}_2\text{O}_2] + 2[\text{O}_2] = [\text{H}_2] + \alpha,$$

где $[\text{H}_2\text{O}_2]$, $[\text{O}_2]$, $[\text{H}_2]$ — концентрация молекулярных продуктов радиолиза воды; $\alpha = ([\text{H}_2\text{O}_2]_{\text{нач}} + 2[\text{O}_2]_{\text{нач}} - [\text{H}_2]_{\text{нач}})$ — избыток окисляющего компонента [3]. Если раствор до облучения содержит окислители H_2O_2 и O_2 , то $\alpha > 0$, если только H_2 , то $\alpha < 0$. Величину α можно рассматривать как надстехиометрический избыток водорода с отрицательным знаком.

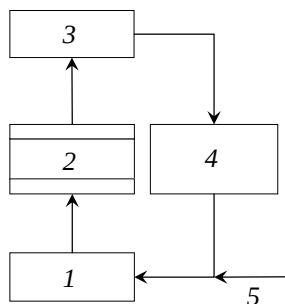
При облучении чистой воды ($\alpha = 0$) образуется как водород, так и окислительные продукты радиолиза — кислород и пероксид водорода. Изначальное наличие в облучаемой воде растворенного водорода ($\alpha < 0$) вызывает интенсификацию вторичных обратных реакций разрушения H_2O_2 и O_2 с образованием H_2O . С увеличением начальной концентрации водорода скорость обратных реакций приближается к скорости образования окислителей в первичных актах. Когда скорости прямых и обратных реакций становятся равными, система переходит в стационарное состояние, при котором выход разложения воды $G(-\text{H}_2\text{O})_{\text{набл}}$ становится равным нулю и резко снижается содержание в облучен-

ной воде всех продуктов радиолиза: как водорода, так и окислителей. Это явление принято называть подавлением радиолиза, соответствующую концентрацию водорода — критической концентрацией водорода. При дальнейшем повышении начальной концентрации водорода сверх критической в облучаемой системе не происходит видимых изменений: концентрация окислителей остается на очень низком уровне, содержание водорода почти равно исходному.

Явление подавления радиолиза используется в реакторах с водным теплоносителем для обеспечения коррозионной стойкости конструкционных материалов. В связи с этим определение критической концентрации водорода для эксплуатации конкретной реакторной установки актуально как для оценки запаса безопасной эксплуатации оборудования первого контура, так и при анализе возможности снижения нормируемой концентрации водорода в теплоносителе, влияющей на пожаровзрывобезопасность реактора [4]. Кроме того, корректное определение критической концентрации влияет на расчет состава теплоносителя в аварийных и стояночных режимах работы реакторной установки.

В исследовательском реакторе при условиях облучения, сходных с условиями энергетического реактора с водой под давлением, критическая концентрация водорода составила $\sim 0,02$ ммоль/кг [5, 6]. Ее экспериментальное определение в энергетическом реакторе невозможно по соображениям безопасности. Расчеты часто расходятся с экспериментом — расчетная критическая концентрация по базовой математической модели оказывается существенно ниже измеренной в исследовательском реакторе [6, 7].

Расчеты проводили с использованием методик [8, 9]. Была применена упрощенная модель контура циркуляции теплоносителя современной энергетической реакторной установки с водой под давлением (рис. 1). Условия облучения теплоносителя соответствовали типичной реакторной установке ВВЭР электрической мощностью 1000—1200 МВт, включая объем оборудования и трубопроводов, расход теплоносителя,



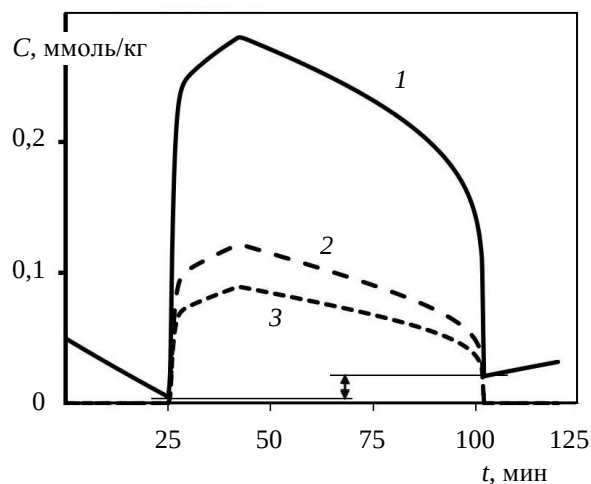
Р и с. 1. Расчетная схема: 1, 3 — напорная и сборная камера реактора соответственно; 2 — активная зона; 4 — циркуляционная петля; 5 — дозирование водорода, кислорода

мощность дозы ионизирующего излучения, температуру и состав теплоносителя. В расчетах использовали следующие численные параметры:

Время пребывания теплоносителя, с:	
в напорной камере реактора . . .	~1,6
в активной зоне . . .	~0,7
в сборной камере реактора . . .	~2,6
в циркуляционной петле . . .	~18
Мощность дозы излучения в центральной части активной зоны, кГр/с:	
быстрых нейтронов . . .	5
γ -излучения . . .	1,5
Плотность потока тепловых нейтронов, $\text{с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$. . .	10^{14}
Температура теплоносителя, °С:	
на входе в активную зону . . .	290
на выходе из активной зоны . . .	320
Концентрация:	
борной кислоты, г/кг . . .	4
КОН, мг/кг . . .	16

Активная зона была разбита на три участка — входной, центральный и выходной для учета краевых эффектов [10].

Избыток окисляющего компонента α варьировали путем дозирования в первый контур кислорода или водорода. На рис. 2 показана расчетная концентрация водорода, кислорода и пероксида водорода в сборной камере реактора (над активной зоной) при варьировании величины α . Начальное состояние — концентрация водорода в теплоносителе выше критической, концентрация окислителей O_2 , H_2O_2 — низкая, $\alpha < 0$, радиоллиз подавлен. В теплоноситель первого контура дозируется раствор кислорода, что приводит к постепенному росту величины α в теплоносителе, при этом концентрация водорода снижается вследствие его связывания кислородом под действием ионизирующего излучения в активной зоне. В момент времени 25 мин от начала расчета избыточная концентрация водо-

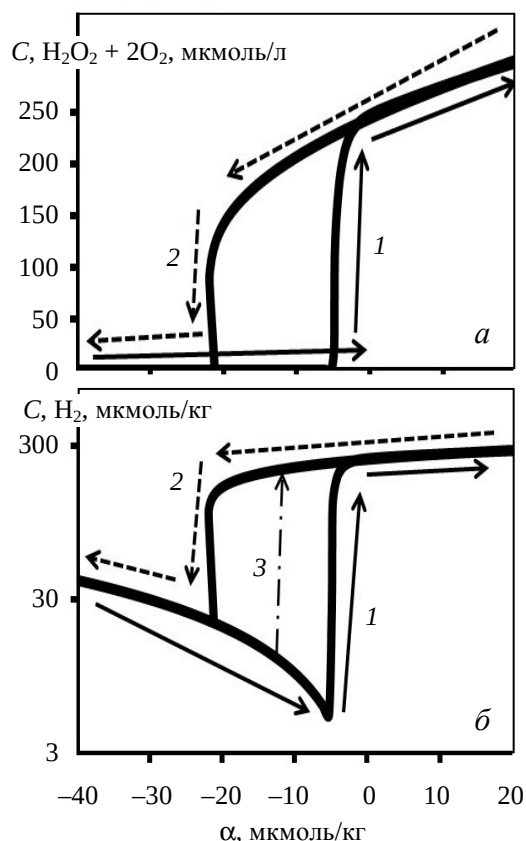


Р и с. 2. Расчетная зависимость концентрации H_2 (1), H_2O_2 (2), O_2 (3) в теплоносителе первого контура от принудительного изменения концентрации избыточного водорода: 0—42 мин — снижение содержания водорода путем дозирования кислорода, 42—120 мин — повышение содержания водорода путем его дозирования

рода снижается ниже критической и происходит резкий рост концентрации как окислительных продуктов радиоллиза воды, так и водорода. Продолжение дозирования кислорода в теплоноситель до времени 42 мин приводит к повышению величины α до положительной и некоторому росту концентрации продуктов радиоллиза воды, но уже не столь значительному. В момент времени 42 мин дозирование кислорода в теплоноситель прекращается, начинается ввод водорода, что приводит к снижению величины α , ее переходу в отрицательную область и росту избыточного водорода. К 102-й мин, когда избыток концентрации водорода достигает критического уровня, происходит резкое снижение концентрации H_2O_2 и O_2 в контурной воде во много раз, т.е. подавляется радиоллиз.

Качественное описание численного эксперимента соответствует как теоретическим представлениям о радиационно-химических процессах, так и экспериментам в исследовательском реакторе [5, 6]. Однако следует обратить внимание на существенную особенность процесса. В случае, когда исходно радиоллиз подавлен ($t = 25$ мин), расчетная критическая концентрация водорода существенно ниже, чем при подавлении развитого радиоллиза ($t = 102$ мин).

Проанализируем это явление на рис. 3. На рис. 3, а показано изменение суммарной концентрации окислителей ($\text{H}_2\text{O}_2 + 2\text{O}_2$) при постепенном снижении концентрации водорода в



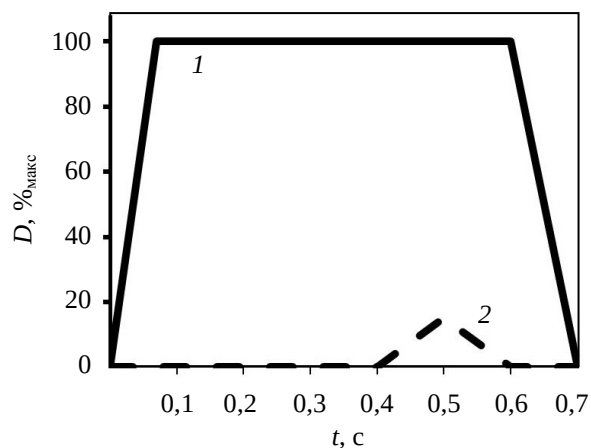
Р и с. 3. Зависимость суммарной концентрации окислителей (а) и концентрации водорода (б) от избытка окисляющего компонента α в теплоносителе первого контура

теплоносителя (1) и последующем постепенном его повышении (2). Видна петля гистерезиса. Это означает, что при величине α в диапазоне от -5 до -20 мкмоль/кг, т.е. при избытке водорода от 5 до 20 мкмоль/кг нельзя однозначно сказать, подавлен или не подавлен радиолит теплоносителя первого контура для данных условий облучения. В этом диапазоне нет однозначного соответствия суммарной концентрации H_2O_2 и O_2 конкретному значению α . Например, при $\alpha = 10$ мкмоль/кг суммарное содержание окислителей может варьировать от очень малого (радиолит подавлен) до ~ 150 мкмоль/кг (радиолит интенсифицирован).

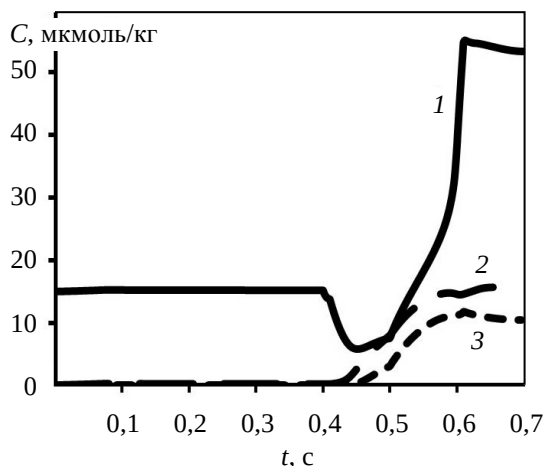
Из анализа рис. 3, б следует, что локальный минимум концентрации водорода, т.е. расчетная критическая концентрация водорода зависит от предыстории процесса. Если исходно радиолит подавлен (нижняя часть петли гистерезиса), то расчетная критическая концентрация равна $\sim 5,5$ мкмоль/кг, если радиолит интенсифицирован (верхняя часть петли гистерезиса), то ~ 20 мкмоль/кг.

Вариантные расчеты показали, что обнаруженное явление чувствительно к составу излучения. Гистерезис наблюдается при высокой доле выхода молекулярных продуктов в суммарном начальном радиационно-химическом выходе, т.е. при большом вкладе нейтронного облучения и/или облучения продуктами ядерной реакции $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$. В данном случае облучаемая система обладает, по существу, свойствами триггера, поскольку имеет два устойчивых состояния. В связи с этим практический интерес представляет критическая концентрация водорода в условиях реальной реакторной установки и, в частности, возможно ли переключение триггера с переходом облучаемой системы с нижней на верхнюю часть петли гистерезиса (кривая 3 на рис. 3, б) при локальном воздействии на систему. Для этого обе ветви гистерезиса рассчитывались для идеализированных условий облучения (без учета неравномерности состава теплоносителя, мощности дозы, состава излучения, температуры и др.), а в качестве примера локального воздействия рассматривалось влияние локального кипения теплоносителя, характерного для современных энергетических реакторов с водой под давлением. Расчет проведен по методике [9] для канала активной зоны. Принималось, что локальное кипение теплоносителя происходит в верхней части активной зоны и максимальное локальное паросодержание составляет 15% по массе (рис. 4). Характерное время перехода газами границы раздела фаз принималось равным $0,15$ с.

Расчеты показали, что в локальной области кипения теплоносителя сначала происходит снижение концентрации водорода из-за его час-



Р и с. 4. Зависимость от времени максимальной мощности поглощенной дозы D (1) и массового паросодержания (2)



Р и с. 5. Концентрация молекулярных продуктов радиолиза водорода (1), пероксида водорода (2), кислорода (3) при локальном кипении теплоносителя в активной зоне

тичного перехода в парогазовую фазу (рис. 5), как следствие, подавление радиолиза в локальной зоне прекращается, в теплоносителе начинается быстрый рост содержания молекулярных продуктов радиолиза, при этом облучаемая система начинает перемещаться к верхней части петли гистерезиса (см. рис. 3). Последующее схлопывание парогазовой фазы с растворением содержащегося в ней водорода не приводит к подавлению радиолиза. Расчеты также показали, что прекращение подавления радиолиза чувствительно к теплофизическим параметрам, а именно к изменению паросодержания, температуры, массопереноса газов через границу раздела фаз, мощности дозы ионизирующего облучения по высоте активной зоны, включая краевой эффект [10] и др.

Таким образом, в энергетическом реакторе по мере снижения концентрации водорода принципиально возможен срыв подавления радиолиза в отдельных областях активной зоны, начиная с наиболее теплонапряженных. При этом он может происходить при более высоком содержании водорода, чем это может быть получено расчетным путем при моделировании активной зоны без учета неравномерностей, в частности, локального кипения теплоносителя, локальных областей с максимальной мощностью дозы и др. Локальный срыв подавления радиолиза вследствие перемешивания теплоносителя может приводить к расширению области с повышенным содержанием молекулярных продуктов радиолиза как в объеме активной зоны, так и на выходе из нее. В предельном случае

подавление радиолиза прекратится в пределах всей активной зоны. Впрочем, для корректных количественных оценок такого явления требуется интеграция кода расчета радиолиза с трехмерным теплофизическим, моделирующим локальные явления в активной зоне.

Полученные результаты позволяют сделать следующие выводы:

по мере снижения концентрации водорода в теплоносителе энергетического реактора подавление радиолиза может прекращаться в локальных наиболее нагруженных областях активной зоны. При этом прекращение подавления радиолиза может происходить при более высокой концентрации водорода, чем это получено расчетом без моделирования локальных теплофизических неравномерностей в активной зоне;

локальный срыв подавления радиолиза приведет к повышению содержания молекулярных коррозионно-агрессивных окислительных продуктов как внутри, так и вне активной зоны;

применительно к реальному реактору критическая концентрация водорода может наблюдаться в некотором диапазоне его возможной концентрации в зависимости как от теплофизических особенностей активной зоны, так и от предыстории процесса;

корректный расчет прекращения подавления радиолиза возможен при условии подробного трехмерного моделирования теплофизических явлений во всем объеме активной зоны, т.е. при объединении кода расчета радиолиза с теплофизическим 3D-кодом.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Кабакчи С.А., Архипов О.П., Лукашенко М.Л. Особенности радиолиза воды и водных растворов H_2 и O_2 при действии смешанного n, γ -излучения с высокой долей нейтронного компонента. — Химия высоких энергий, 2013, т. 47, № 4, с. 251—255.
2. Кабакчи С.А., Архипов О.П. Множественность радиационно-химических стационарных состояний при радиолизе водного теплоносителя в ядерном реакторе. — Там же, 2016, т. 50, № 2, с. 121—126.
3. Аллен А.О. Радиационная химия воды и водных растворов. М.: Госатомиздат, 1963.
4. Pastina B., Isabey J., Hickel B. The influence of water chemistry on the radiolysis of the primary coolant water in pressurized water reactor. — Nucl. Mater., 1999, v. 264, p. 309—318.

5. **Elliot A., Stuart C.** Coolant Radiolysis Studies in the High Temperature, Fuelled U-2 Loop in the NRU Reactor. AECL EACL, 2008.
6. **Elliot A., Stuart C.** Radiation chemistry in reactor systems: does modelling provide answers or only insights? — In: 6th Intern. Workshop on LWR Coolant Radiolysis and Electrochemistry. Korea, 27 October, 2006, CD № 1.
7. **Bartels D., Wu W., Kanjana K. e.a.** Laboratory and modelling studies in search of the critical hydrogen concentration. — In: 9th Intern. Workshop on Radiolysis, Electrochemistry & Materials Performance. France, 28 September, 2012, CD № 1.
8. **Архипов О.П., Бугаенко В.Л., Кабакчи С.А.** Программное средство МОРАВА Н2. М., 2017.
9. **Arkhipov O.P., Kabakchi S.A.** Verification of computer code for calculation of coolant radiolysis in the VVER reactor core with regard for boiling in its upper part. — In: Intern. Conf. Water Chemistry of Nuclear Reactor Systems. Canada, October, 2010, CD № 1.
10. **Архипов О.П., Кабакчи С.А.** Краевой эффект при радиоллизе теплоносителя в активной зоне ВВЭР. — Атомная энергия, 2001, т. 90, вып. 4, с. 273—277.

Поступила в Редакцию 15.12.16

УДК 621.039.54

РАСПУХАНИЕ ДИСПЕРСИОННОЙ ТОПЛИВНОЙ КОМПОЗИЦИИ ДИОКСИД УРАНА—СИЛУМИН В ОПЫТНЫХ ТВЭЛАХ РЕАКТОРА СМ

*Гильмутдинов И.Ф., Шишин В.Ю., Крюков Ф.Н., Кузьмин С.В., Силантьев П.П., Миндукушева И.А.,
Старков В.А., Пименов В.В. (АО «ГНЦ НИИАР», г. Димитровград)*

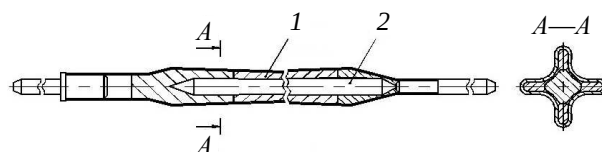
Настоящая работа является продолжением исследований, направленных на расширение экспериментальных возможностей реактора СМ для высокодозового облучения материалов атомной техники и повышения наработки изотопной продукции. Важная часть модернизации реактора связана с созданием ТВЭЛ с меньшим поглощением нейтронов. Использование таких ТВЭЛ позволит повысить плотность потока нейтронов, увеличит запас реактивности, снизит концентрацию и потребление топлива.

Ранее проведенные реакторные испытания и материаловедческие исследования первого из трех предложенных вариантов исполнения ТВЭЛ — с монолитным (сплошным) сердечником на основе гранул диоксида урана в матрице из силумина выявили некоторые их особенности, ограничивающие ресурс, и предполагаемые возможности ТВЭЛ второго и третьего вариантов исполнения [1]. Испытания и исследования ТВЭЛ второго исполнения — с вытеснителем в сердечнике и такой же, как и в ТВЭЛ первого исполнения, топливной композицией показали их преимущества, которые выражаются в отсутствии перегрева, существенно меньшем распухании и взаимодействии компонентов топливного сердечника и, как следствие, меньшем формоизменении ТВЭЛ.

В настоящей работе рассмотрены реакторные испытания ТВЭЛ второго варианта исполнения и их послереакторные материаловедческие

исследования. Основное внимание уделено анализу распухания топливной композиции как одного из явлений, влияющих на работоспособность ТВЭЛ.

Характеристика ТВЭЛ и условия их испытаний. Опытные ТВЭЛ всех трех вариантов исполнения (или конструкции) имеют крестообразную оболочку толщиной 0,2 мм из коррозионно-стойкой стали Х16Н15МЗБ (ЭИ-847) с закруткой по длине для самодистанционирования. В ТВЭЛ второго варианта размещен вытеснитель из низколегированного алюминия, вследствие чего топливная композиция расположена на участках выступов (четырех симметричных относительно оси ТВЭЛ). Материалом топлива служит дисперсионная композиция на основе гранул UO_2 в матрице из силумина. Фракционный состав гранул составляет 0,2—0,315 мм, их объемная доля в композиции ~0,45, пористость не более 8% (рис. 1). Расположение топлива на участках выступов ТВЭЛ, как предполагалось, улучшает температурный режим. Расчетными исследованиями показано, что размещение вытеснителя в центре сердечника, обеспечиваю-



Р и с. 1. ТВЭЛ со слабопоглощающим нейтроны матричным материалом и вытеснителем: 1 — топливная композиция; 2 — вытеснитель