

МОДЕЛИРОВАНИЕ ПОВЕДЕНИЯ АЭРОЗОЛЕЙ ПРОДУКТОВ ДЕЛЕНИЯ В ЗАЩИТНОЙ ОБОЛОЧКЕ

© 2022 г. Д. А. Назаров^а, Д. С. Синицын^{а, *}, Н. А. Мосунова^а, А. А. Сорокин^{а, **}

^аИнститут проблем безопасного развития атомной энергетики РАН,
Большая Тульская ул., д. 52, Москва, 115191 Россия

*e-mail: synitsyn@ibrae.ac.ru

**e-mail: sorokin@ibrae.ac.ru

Поступила в редакцию 20.01.2022 г.

После доработки 11.02.2022 г.

Принята к публикации 24.02.2022 г.

При тяжелой аварии на АЭС с разгерметизацией I контура и активной зоны реактора основная масса летучих и нелетучих продуктов деления поступает в атмосферу защитной оболочки в виде аэрозолей, которые являются многокомпонентными по составу и полидисперсными по размеру частицами. Размер частиц может варьироваться от нескольких нанометров до десятков микрометров. Размер и масса аэрозольных частиц определяют время их жизни во взвешенном состоянии в атмосфере помещений реактора. Радиационная активность частиц зависит от содержания в них радионуклидов и только косвенно связана с их массой и размером. Поэтому при моделировании поведения радионуклидов очень важно учитывать не только изменение дисперсных характеристик аэрозольных частиц, например их массы и размера, но и содержание в частицах малых или даже очень малых по массе, но высокорadioактивных примесей. Представлена модель поведения аэрозолей продуктов деления с учетом изменения концентрации, размера и состава аэрозолей, включая изменение плотности материала частиц. Модель реализована в приближении метода фракций для дискретной массы частиц. Для учета влияния состава компонентов на плотность материала смешанных аэрозолей рассмотрено приближение идеального раствора. Проведены тестовые расчеты для модельной задачи с двумя источниками аэрозольных частиц разного состава и диаметра в объеме модельного помещения. Первый источник состоял из частиц CsOH, а второй – из частиц UO₂. Показано, что при моделировании поведения многокомпонентных аэрозолей продуктов деления в помещениях важно учитывать изменение состава аэрозолей в результате коагуляции и, как следствие, изменение плотности материала аэрозольных частиц, которая зависит как от состава, так и от плотности индивидуальных компонентов.

Ключевые слова: продукты деления, радионуклиды, защитная оболочка, многокомпонентные аэрозоли, моделирование, коагуляция, осаждение, плотность аэрозолей, тяжелая авария, радиоактивные отложения

DOI: 10.56304/S0040363622090028

При тяжелой аварии на АЭС с водо-водяным энергетическим реактором основная масса продуктов деления (ПД) поступает в защитную оболочку из I контура реактора в составе аэрозолей, которые в большинстве случаев являются многокомпонентными и полидисперсными [1–4]. Размер частиц может варьироваться от нескольких нанометров до десятков микрометров, а число компонентов в составе аэрозолей доходит до нескольких десятков.

Аэрозоли в защитной оболочке представляют собой смесь полидисперсных частиц в жидком или твердом состоянии, взвешенных в газовой среде. Вследствие нуклеации разных по составу паров изначально образуются частицы-зародыши разного

состава. Последующие процессы конденсации на этих частицах разных по химическому составу паров и коагуляции частиц разного состава приводят к появлению многокомпонентных аэрозолей. Например, в атмосфере защитной оболочки аэрозольные частицы могут состоять из смеси таких соединений продуктов деления, как CsOH, CsI, Cs₂MoO₄, а также оксидов различных металлов и топлива, компонентов контрольного стержня и воды.

Размер и масса аэрозольных частиц определяют время их жизни во взвешенном состоянии в газовом объеме. В то же время радиационная активность аэрозольных частиц зависит от массы содержащихся в них радиоактивных компонен-

тов и только косвенно связана с их общей массой и размерами, которые определяют скорость процессов коагуляции и осаждения. Поэтому при моделировании поведения аэрозолей необходимо учитывать не только изменение массы и размера аэрозольных частиц, но и содержание в них малых или даже очень малых по массе, но высоко-радиоактивных нуклидов. Наиболее опасными компонентами ПД в составе аэрозольных частиц с точки зрения радиационной активности являются изотопы йода, теллура и цезия, а при определенных условиях и оксиды рутения. Из нелетучих компонентов, по данным интегральных экспериментов, существенный вклад в радиационную активность аэрозольных частиц вносят актиниды и изотопы стронция, молибдена, бария [3, 4].

Во всех существующих интегральных кодах оценки безопасности АЭС с водо-водяными реакторами ASTEC (Франция, Германия), MELCOR (США), СОКРАТ, TITAN, SFPSim (Россия) аэрозольные частицы моделируются в приближении метода фракций. При этом предполагается, что плотность материала всех аэрозолей, исследуемых при расчете, является одинаковой и постоянной независимо от размера и состава частиц. Обычно плотность материала аэрозолей задается пользователем во входном файле расчета.

Для расчета состава аэрозолей ПД в этих кодах рассматриваются два приближения. В кодах ASTEC (модуль SOPHAEROS) и СОКРАТ (модуль ПРОФИТ) состав всех частиц является одинаковым и соответствует среднему составу для суммарных масс всех компонентов и концентрации частиц. Для сравнения, в кодах MELCOR (модуль RN) и TITAN (модули AERMOD и AERCONT) используется более физически обоснованное приближение, в котором состав частиц определяется индивидуально для каждой фракции в соответствии с текущей массой компонентов в ней. Соответственно в этих кодах состав аэрозольных частиц из разных фракций может быть различным и выравнивание его происходит при “смешении частиц разного состава” в результате коагуляции и конденсации паров на частицах.

Важно отметить, что общим недостатком для всех кодов является предположение о постоянстве плотности материала аэрозольных частиц независимо от их поведения и изменения состава. Плотность обычно задается пользователем во входном файле на этапе инициализации расчета исходя из характера рассматриваемых задач (например, по данным об источнике выброса продуктов деления). При этом отсутствие знания реальной плотности и ее изменения предполагается компенсировать проведением многопараметрических расчетов с варьированием ее в некотором диапазоне относительно начального значения.

Однако даже такие расчеты не позволяют достоверно прогнозировать изменение плотности материала аэрозольных частиц во времени в зависимости от изменения их состава, в частности при перераспределении активности между взвешенными в атмосфере аэрозолями и радиоактивными отложениями на поверхностях. Для ответа на поставленные вопросы необходима разработка соответствующей модели и программного кода с последующим сравнением результатов расчетов для моделей с постоянной (входной параметр) и переменной (моделируемый параметр) плотностью материала аэрозолей.

Теплофизические параметры в объеме защитной оболочки влияют на скорости коагуляции и осаждения многокомпонентных аэрозолей, а значит, и на состав и плотность материала аэрозольных частиц. Более того, в условиях защитной оболочки, возможно, еще большее влияние на состав аэрозольных частиц могут оказывать поглощение водяного пара гигроскопическими аэрозолями и конденсация паров продуктов деления на аэрозолях. Интенсивность протекания этих процессов определяется такими теплофизическими параметрами, как влажность и температура атмосферы защитной оболочки, а также давление паров продуктов деления.

Целью данной работы является разработка модели для расчета поведения полидисперсных аэрозолей продуктов деления, состоящих из нескольких компонентов с различной плотностью исходного материала, с учетом изменения как размера, так и состава аэрозолей, включая изменение плотности материала частиц. Для конкретности представлены результаты тестового расчета, в котором рассматривается влияние изменения состава и плотности материала аэрозолей продуктов деления на их поведение в атмосфере модельной защитной оболочки.

Основная задача тестового расчета заключалась в сравнении распределения частиц аэрозолей по размеру для двух методов расчета плотности их материала:

при постоянной плотности ρ_{p0} материала смешанных аэрозолей из смеси компонентов p , задаваемой пользователем (базовый метод для всех существующих кодов применительно к моделированию поведения аэрозолей продуктов деления в атомной энергетике);

при переменной плотности ρ_p смешанных аэрозолей, зависящей от их состава и рассчитываемой в приближении модели идеального раствора (новый метод).

Кроме того, важными представляются оценка влияния изменения плотности материала смешанных аэрозолей продуктов деления на динамику их накопления в отложениях и возмож-

ность выхода состава полидисперсных многокомпонентных аэрозолей на равномерное распределение (т.е. одинаковый состав частиц независимо от их диаметра).

МЕТОД ФРАКЦИЙ ДЛЯ АЭРОЗОЛЬНЫХ ЧАСТИЦ С ПЕРЕМЕННОЙ ПЛОТНОСТЬЮ

Состав аэрозолей продуктов деления в атмосфере защитной оболочки может быть очень широким. Помимо продуктов деления в состав аэрозолей дополнительно могут входить компоненты материалов конструкций реактора, элементы топлива, вода, продукты взаимодействия расплава корнума с бетоном и продукты горения, а также неконденсирующиеся газы. В этом случае основными процессами в атмосфере помещений защитной оболочки являются:

- коагуляция аэрозолей;
- конденсация паров и испарение на аэрозольных частицах;
- осаждение аэрозолей на поверхность стен и образование отложений;
- конденсация паров и испарение отложений;
- нуклеация аэрозолей непосредственно в газовом объеме.

Основная идея метода фракций для аэрозолей с переменной плотностью материала частиц, состоящих из смеси различных компонентов, заключается в условии однозначного соответствия плотности составу компонентов. Масса одной частицы *i*-й фракции m_i , кг, определяется вкладом масс m_i^p составляющих ее компонентов $m_i = \sum_{\{p\}} m_i^p$. Объем частиц *i*-й фракции v_i , м³, и диаметр частиц d_i , м, могут быть вычислены в приближении модели идеального раствора для сферических частиц с

использованием плотностей составляющих частицу чистых компонентов по формулам

$$v_i = \sum_p \frac{m_i^p}{\rho_p^0}; \quad d_i = (6v_i/\pi)^{1/3},$$

где ρ_p^0 – плотность индивидуального *p*-го компонента в составе частиц данной фракции, кг/м³.

Следовательно, плотность материала частицы ρ_i однозначно определяется массой и индивидуальной плотностью компонентов в ее составе в соответствии с выражением

$$\frac{m_i}{\rho_i} = \sum_p \frac{m_i^p}{\rho_p^0}.$$

Модель многокомпонентных частиц переменной плотностью в приближении идеального раствора для смеси различных компонентов в составе аэрозольной частицы рассматривается в данной работе как развитие модели многокомпонентных частиц с постоянной плотностью. Для обеих моделей характерна реализация метода фракций для дискретных значений массы частиц. Дальнейшим развитием этого подхода является бинарная модель с реализацией метода фракций на двумерной поверхности (табл. 1). Особенность модели 2 (см. табл. 1) – возможность моделировать изменение объема частиц в зависимости от их состава. Диапазон возможных значений плотности индивидуальных компонентов в составе смешанных аэрозолей продуктов деления довольно широк, г/см³: для воды 1.0, для аэрозолей продуктов деления 2.5–4.5, для частиц топлива и материалов конструкций 4.0–11.0. Следовательно, при одинаковой массе, но разных составах объем частицы может изменяться на порядок.

Таблица 1. Иерархия моделей для расчета плотности материала и диаметра частиц для смешанных многокомпонентных аэрозолей

Номер модели	Уравнения модели	Описание модели многокомпонентных частиц
1	$m_p = m_1 + m_2;$ $v_p = m_p / \rho_{p0};$ $\rho_{p0} = \text{const};$ $d_p = (6v_p / \pi)^{1/3}$	С постоянной плотностью – используется во всех существующих кодах безопасности с модулями поведения аэрозолей ПД
2	$m_p = m_1 + m_2;$ $v_p = m_1 / \rho_1 + m_2 / \rho_2;$ $\rho_p = m_p / v_p$	С переменной плотностью – приближение идеального раствора
3	$v_p = f(m_1, m_2)$	С переменной плотностью – приближение неидеального раствора

Таким образом, математическая модель для расчета поведения полидисперсных многокомпонентных аэрозолей при переменной плотности материала частиц представляет собой систему уравнений для изменения со временем массы моделируемых компонентов M_i^p в составе частиц каждой фракции [5]. Тогда масса p -го компонента в составе одной частицы i -й фракции определяется соотношением $m_i^p = M_i^p / N_i$ (здесь N_i – количество частиц в данной фракции). Число уравнений для переменных M_i^p соответствует числу фракций, умноженному на число моделируемых компонентов в составе частиц. Число фракций обычно задается при инициализации расчета и в большинстве случаев определяет точность численного расчета (точность повышается с увеличением числа фракций). Общее число уравнений, очевидно, будет довольно большим. Например, при 50 фракциях и 20 различных компонентах в составе частиц и в паровой фазе число моделируемых уравнений для аэрозолей будет равняться 1000 плюс 20 уравнений для массы компонентов в паровой фазе.

Для расчета поведения полидисперсных аэрозолей используется метод фракций с фиксированными модами массы частиц m_i (здесь $i = 1, 2, \dots, k$; k – общее число фракций для дискретного распределения массы аэрозольных частиц). Распределение фракций по массе частиц вычисляют, предполагая равномерное распределение дискретных масс, в логарифмическом масштабе по выражению

$$\lg(m_i) = \lg(m_1) + (i - 1) \frac{\lg(m_k) - \lg(m_1)}{k - 1},$$

где m_1 – масса одной частицы для первой фракции, содержащей частицы с минимальной массой; m_k – масса одной частицы для последней фракции, содержащей частицы с максимальной массой.

Основной моделируемой переменной для аэрозольных частиц в рассматриваемой модели является масса компонента p в составе всех частиц i -й фракции M_i^p в объеме расчетной ячейки. Соответственно этим переменным определяется концентрация частиц n_i , $1/\text{м}^3$, для каждой фракции на дискретной оси массы аэрозольных частиц

$$n_i = \frac{\sum M_i^p}{m_i V_c},$$

где V_c – объем расчетной ячейки, м^3 .

ПОСТАНОВКА ТЕСТОВОЙ ЗАДАЧИ

Для наглядности рассматривается простая модель защитной оболочки в виде цилиндрического

Таблица 2. Начальные параметры источника выброса аэрозолей продуктов деления для тестовой задачи с поведением двухкомпонентных аэрозолей

Параметр	Состав аэрозолей	
	CsOH	UO ₂
d_i , м	10^{-8}	10^{-6}
Выброс частиц, кг/с	1.1×10^{-6}	2.5×10^{-6}
ρ_p^0 , кг/м ³	3600	11 000
m_i , кг	1.89×10^{-21}	5.76×10^{-15}

сосуда, параметры которой качественно соответствуют параметрам макета защитной оболочки установки РНЕВУС [3, 4]: объем 10 м^3 , высота 5 м, диаметр основания 1.6 м, площадь пола (потолка) 2 м^2 , площадь боковой поверхности 25.1 м^2 . Давление воздушной атмосферы в защитной оболочке составляет 0.1 МПа, температура 50°C .

В начальный момент времени предполагается выброс в атмосферу защитной оболочки с постоянной интенсивностью двух сортов монодисперсных аэрозолей, состоящих из частиц гидроксида цезия CsOH и частиц топлива UO₂. Массы соединений в выбросе соответствуют данным из эксперимента РНЕВУС [4] в предположении, что образовавшиеся в твэлах продукты деления попадают в атмосферу защитной оболочки без задержки в макете I контура установки. Длительность выброса составляет 6000 с (100 мин). Параметры выброса и начальные свойства частиц представлены в табл. 2.

В начальный момент времени происходит выброс в атмосферу защитной оболочки аэрозолей с частицами различных диаметров и составов в виде двух монодисперсных фракций. Вследствие коагуляции происходит образование смешанных по составу аэрозолей с одновременным осаждением их на пол и поверхность потолка и стен. Результаты расчетов представлены для двух моделей расчета плотности материала смешанных аэрозолей: при постоянной плотности, задаваемой во входном файле (базовая модель в существующих кодах), и при переменной плотности, зависящей от состава аэрозолей (новая модель). В табл. 1 эти варианты соответствуют моделям 1 и 2.

РЕШЕНИЕ ТЕСТОВОЙ ЗАДАЧИ В ПРИБЛИЖЕНИИ МОДЕЛИ ПОВЕДЕНИЯ ДУХКОМПОНЕНТНЫХ АЭРОЗОЛЕЙ

В методе фракций рассматривается дискретное распределение массы аэрозольных частиц в виде дельта-функций. Масса m_s новых аэрозольных частиц, поступающих из источника в атмосферу защитной оболочки, в большинстве случаев

ев не совпадает с массой частиц для дискретной сетки m_j . Поэтому необходимо соответствующим образом распределять поток новых частиц из источника между соседними по массе фракциями. Качественно такая схема распределения показана на рис. 1, где индекс “ is ” соответствует номеру фракции, для которой выполняется соотношение $m_{is} \leq m_s < m_{is+1}$.

Коэффициенты распределения δ_1 и δ_2 определяются требованием выполнения законов сохранения потоков массы для p -го компонента G_k^p , кг/с, из источника и числа частиц:

$$m_{is} \leq m_s < m_{is+1};$$

$$\frac{dM_{is}^p}{dt} + \frac{dM_{is+1}^p}{dt} = G_k^p = \delta_1 G_k^p + \delta_2 G_k^p;$$

$$G_N = \frac{G_k^p}{m_s}; \quad \frac{\delta_1 G_k^p}{m_{is}} + \frac{\delta_2 G_k^p}{m_{is+1}} = G_N = \frac{G_k^p}{m_s},$$

где t – время, с; $G_N = \frac{G_k^p}{m_s}$ – поток частиц из источника (далее источник), частиц/с.

В результате получаются соотношения для коэффициентов распределения и соответствующих источников в уравнениях для изменения массы компонентов в соседних к источнику фракциях (см. рис. 1):

$$\delta_1 = \frac{(m_{is+1} - m_s) m_{is}}{(m_{is+1} - m_{is}) m_s}; \quad \delta_2 = 1 - \delta_1;$$

$$\frac{dM_{is}^p}{dt} = \delta_1 G_k^p; \quad \frac{dM_{is+1}^p}{dt} = (1 - \delta_1) G_k^p.$$

В рассматриваемой тестовой задаче есть два источника: G_k^{CsOH} и $G_k^{UO_2}$. В системе в начальный момент времени могут генерироваться четыре моды частиц в соответствии с неравенствами $m_1 < m_{CsOH} < m_2$ (для удобства представления выбрана минимальная масса частиц первой фракции) и $m_{iu} \leq m_{UO_2} < m_{iu+1}$ [номер индекса зависит от частоты распределения масс m_i , которая определяется шириной моделируемого диапазона дискретных масс $lg(m_k) - lg(m_1)$ и числом рассматриваемых фракций k].

Алгоритм расчета коагуляции частиц аналогичен алгоритму для распределения новых частиц из источника по дискретным фракциям. Предполагается столкновение частиц из фракции i с массой одной частицы m_i и фракции j с массой одной частицы m_j . Эти частицы состоят из смеси нескольких p -компонентов $m_i = \sum_p m_i^p$ и $m_j = \sum_p m_j^p$. В результате столкновения образуется новая частица суммарной массой $m_{ij} = m_i + m_j = \sum_p (m_i^p + m_j^p)$,

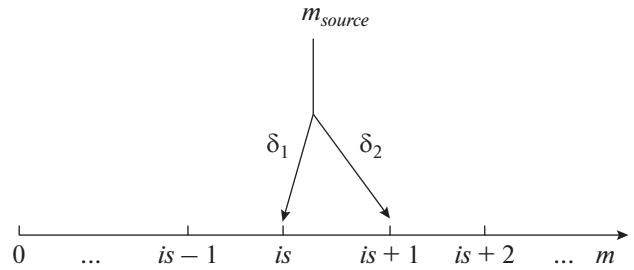


Рис. 1. Схема дискретного распределения новых частиц из источника аэрозолей m_{source} в объем расчетной ячейки между соседними по массе фракциями

соответствующей массам индивидуальных компонентов в сталкивающихся частицах. Следовательно, при коагуляции возникают массовый источник p -компонента G_{ij}^p , кг/с, в составе новых частиц массой m_{ij} и сток этого компонента G_{i-j}^p и G_{j-i}^p из фракций i и j :

$$G_{ij}^p = G_{ij}^N (m_i^p + m_j^p);$$

$$G_{i-j}^p = G_{ij}^N m_i^p; \quad G_{j-i}^p = G_{ij}^N m_j^p.$$

Частота столкновений G_{ij}^N частиц массами m_i и m_j при концентрациях n_i и n_j в единицу времени в объеме расчетной ячейки V_c определяется соотношением

$$G_{ij}^N = (1 - g_{ij}) V_c K_{ij} n_i n_j; \quad g_{ij} = \begin{cases} 0, & i \neq j; \\ 1/2, & i = j, \end{cases}$$

где K_{ij} – скорость коагуляции между частицами с массами m_i и m_j и диаметрами d_i и d_j , м³/с, рассчитываемая с учетом возможности как свободно-молекулярного, так и диффузионного режима столкновений аэрозольных частиц в газовой среде.

Важно отметить, что в зависимости от состава частицы при одинаковой массе могут иметь разные объем, сечение столкновения или скорость коагуляции с другими частицами. Коэффициент g_{ij} учитывает результат взаимного столкновения частиц из одной фракции, когда число возможных столкновений уменьшается в 2 раза. Новые частицы массой $m_{ij} = m_i + m_j$ распределяются между ближайшими по массе фракциями m_{ic} и m_{ic+1} в соответствии с неравенством $m_{ic} \leq m_{ij} < m_{ic+1}$ с коэффициентом распределения δ_c :

$$\delta_c = \frac{(m_{ic+1} - m_{ij}) m_{ic}}{(m_{ic+1} - m_{ic}) m_{ij}}; \quad \frac{dM_{ic}^p}{dt} = \delta_c G_{ij}^p;$$

$$\frac{dM_{ic+1}^p}{dt} = (1 - \delta_c) G_{ij}^p;$$

$$\frac{dM_i^p}{dt} = -G_{i-j}^p; \quad \frac{dM_j^p}{dt} = -G_{j-i}^p.$$

Таким образом, для расчетного моделирования коагуляции необходимо на каждом шаге по времени рассматривать все возможные пары столкновений в системе дискретных масс $\{m_i\}$, затем убрать “частицы-реагенты” из своих фракций и распределить новые частицы с полученной суммарной массой между соответствующими ближайшими по массе фракциями.

Для аэрозольных частиц в атмосфере помещений основными механизмами осаждения в большинстве случаев являются гравитационное осаждение частиц на пол и диффузионное осаждение на стенки и потолок помещения. Соответственно в уравнениях изменение массы компонента M_i^p в составе аэрозольных частиц i -й фракции определяется скоростью осаждения частиц данной фракции и моделируется с учетом механизма осаждения, объема ячейки, из которой частицы выпадают в осадок, а также площади поверхности, на которую частицы оседают.

При осаждении радиоактивных аэрозолей на поверхность образуются радиоактивные отложения. Уравнения для радиоактивных отложений записываются аналогично уравнениям аэрозольной фазы для изменения массы p -компонента в составе отложений на рассматриваемой поверхности M_{surf}^p , где нижний индекс $surf = \{floor, ceil, wall\}$ отражает возможность осаждения на различные поверхности в расчетном объеме.

Таким образом, общая система уравнений для расчета изменения $M_i^p(t)$ вследствие коагуляции и осаждения имеет следующий вид:

$$\begin{aligned} \frac{dM_i^p}{dt} = & f_{p,1} \left[f_{i,i} \delta_1 G_k^1 + f_{i,i+1} (1 - \delta_1) G_k^1 \right] + \\ & + f_{p,2} \left[f_{i,i2} \delta_2 G_k^2 + f_{i,i2+1} (1 - \delta_2) G_k^2 \right] + \\ & + \frac{M_{i-1}}{m_{i-1}} \sum_{j=1}^{i-1} (1 - \delta_c^{i,j}) (m_{i-1}^p + m_j^p) \frac{K_{i-1,j}}{V_c} \frac{M_j}{m_j} - \\ & - \frac{M_i}{m_i} \sum_{j=1}^{i-1} \left[m_i^p - \delta_c^{i+1,j} (m_i^p + m_j^p) \right] \frac{K_{i,j}}{V_c} \frac{M_j}{m_j} - \\ & - 2 \left(1 - \delta_c^{i+1,i} \right) m_i^p \frac{K_{i,i}}{V_c} \frac{M_i M_i}{m_i^2} - \frac{M_i}{m_i} m_i^p \sum_{j=i+1}^{k-1} \frac{K_{i,j}}{V_c} \frac{M_j}{m_j} - \\ & - \left[S_{floor} V_i^{grav} + (S_{wall} + S_{ceil} + S_{floor}) V_i^{dif} \right] \frac{M_i^p}{V_c}; \\ \delta_c^{i,j} = & \frac{[m_i - (m_{i-1} + m_j)]}{(m_i - m_{i-1})} \frac{m_{i-1}}{(m_{i-1} + m_j)}; \\ 1 - \delta_c^{i,j} = & \frac{m_i m_j}{(m_i - m_{i-1})(m_{i-1} + m_j)}; \\ 2 \left(1 - \delta_c^{i+1,i} \right) = & \frac{m_{i+1}}{m_{i+1} - m_i}, \end{aligned}$$

где $f_{i,j} = 1$ при $i = j$ и $f_{i,j} = 0$ при $i \neq j$.

Для обоснования правильности программной реализации алгоритма решения уравнений коагуляции результаты численного решения для изменения со временем концентрации частиц сравнивали с точным аналитическим решением для тестовой задачи. Рассматривали коагуляцию частиц в замкнутом объеме с заданной начальной концентрацией монодисперсных частиц в предположении постоянной скорости коагуляции. Для этих условий было получено аналитическое решение для изменения со временем суммарной концентрации частиц в виде гиперболической функции [6]. Аналогичную проверку проводили также для модели осаждения частиц на поверхность с постоянной скоростью. В этом случае аналитическое решение соответствовало экспоненциальному решению для концентрации частиц.

РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ ДЛЯ ТЕСТОВОЙ ЗАДАЧИ

Для тестовой задачи по расчету поведения полидисперсных аэрозолей продуктов деления в объеме модельной защитной оболочки с двумя источниками легких ($CsOH$) и тяжелых (UO_2) аэрозольных частиц были рассмотрены две задачи: первая – коагуляция частиц и образование смешанных аэрозолей с учетом изменения и без изменения плотности материала частиц, вторая – с дополнительным учетом осаждения смешанных частиц вследствие процессов броуновской диффузии и гравитационного осаждения.

Результаты расчетов задачи, когда учитывается только процесс коагуляции, для функции распределения массы аэрозолей в зависимости от диаметра частиц для модели с переменной плотностью материала смешанных частиц в сравнении с результатами расчетов для модели с постоянной плотностью на момент времени 6000 с представлены на рис. 2. Функцию распределения вычисляли по соотношению $f_M = M_i(t)/(d_i - d_{i-1})$, где M_i – суммарная масса аэрозолей для i -й фракции, зависящая от времени. Для расчетов с постоянной плотностью рассматривали два варианта: при плотности материала легких ($CsOH$) и тяжелых (UO_2) частиц.

Из представленных на рис. 2 результатов следует, что функция распределения массы аэрозольных частиц существенно изменяется при учете зависимости плотности материала смешанных частиц от состава компонентов. Функция распределения для модели с переменной плотностью занимает промежуточное положение на оси размеров частиц. При этом также меняется форма функции распределения.

Значение задаваемой постоянной плотности для материала смешанных аэрозолей существенно влияет на распределение массы моделируемых

компонентов по размеру частиц для процесса коагуляции. Для меньшей плотности материала частиц (т.е. независимо от состава частиц их плотность равна плотности гидроксида цезия CsOH, которая составляет 3.6 г/см^3 , для сравнения плотность UO_2 составляет 11 г/см^3) функция распределения массы компонентов по размеру частиц существенно смещена в область более крупных частиц. Это связано с тем, что при той же массе, но меньшей плотности материала частиц увеличиваются их объем и диаметр. Соответственно повышается скорость столкновения частиц между собой. Увеличение интегральной скорости коагуляции приводит к перетоку массы аэрозолей в область более крупных частиц.

Интенсивность образования аэрозольных отложений на поверхностях зависит от размера и концентрации частиц или, другими словами, от функции распределения. Следовательно, полученные результаты для первой задачи (учитывается только коагуляция частиц) должны повлиять на интенсивность образования отложений для второй задачи (коагуляция плюс осаждение частиц). На рис. 3 приведены результаты расчетов изменения со временем суммарной массы отложений на всех поверхностях в объеме защитной оболочки для модели с переменной плотностью материала частиц в сравнении с результатами расчетов для модели с постоянной плотностью материала аэрозолей, соответствующей начальной плотности аэрозолей в двух источниках (CsOH или UO_2).

На рис. 3 видно, что для модели с постоянной плотностью материала смешанных аэрозолей неопределенность суммарной массы отложений на момент окончания расчета составляет примерно 50%. При этом модель с переменной плотностью дает некоторое промежуточное значение между вариантами расчетов для модели с постоянной плотностью.

Основная доля (примерно 90%) в суммарной массе отложений на всех поверхностях приходится на отложения, образующиеся на полу помещения в результате гравитационного осаждения аэрозолей, что связано с большими начальным диаметром и массой аэрозолей топлива UO_2 во втором источнике. Главный вклад в массу отложений аэрозолей на боковых стенках вносят аэрозоли из первого источника, содержащие CsOH. Следовательно, влияние модели, выбранной для расчета плотности материала смешанных аэрозолей, на скорость диффузионного осаждения аэрозолей на боковые поверхности может быть существенным, так как скорость диффузионного осаждения зависит от размера частиц и массы аэрозолей.

В качестве иллюстрации на рис. 4 приведены результаты расчетов временной динамики накопления массы CsOH в отложениях на боковых стенках. Представленные на рис. 4 кривые свиде-

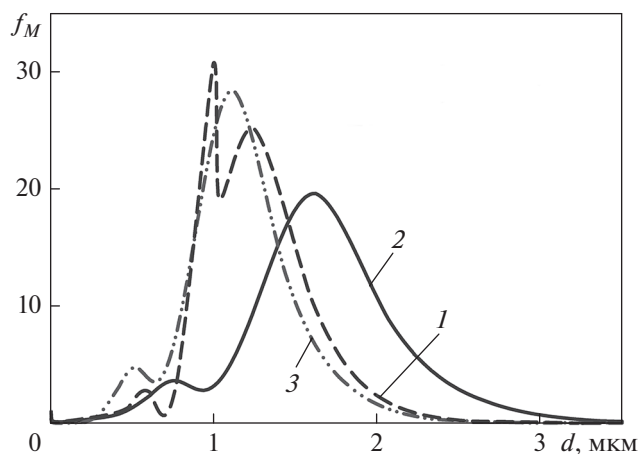


Рис. 2. Функция распределения массы двухкомпонентных аэрозолей f_M по диаметру для модели с переменной плотностью материала частиц (1) на момент времени 6000 с в сравнении с результатами двух вариантов расчета для модели с постоянной плотностью CsOH (2) и UO_2 (3)

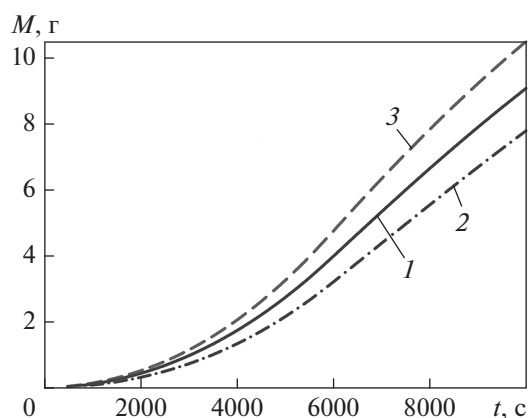


Рис. 3. Изменение со временем суммарной массы отложений на поверхностях для модели с переменной плотностью материала смешанных аэрозолей (1) в сравнении с результатами вариантов расчета для модели с постоянной плотностью для CsOH (2) и UO_2 (3)

тельствуют о том, что результаты расчета по модели с переменной плотностью материала смешанных аэрозолей близки к результатам расчета с использованием модели с постоянной плотностью, которая равна плотности аэрозолей гидроксида цезия из первого источника. При этом расчеты с плотностью материала топливных аэрозолей, т.е. как для аэрозолей из второго источника, приводят к погрешности расчета более чем в 2 раза.

Полученный результат объясняется выбранным сценарием для источников (наночастицы CsOH в первом источнике и относительно большие частицы UO_2 во втором источнике). Как следствие, мелкие частицы, которые содержат CsOH,

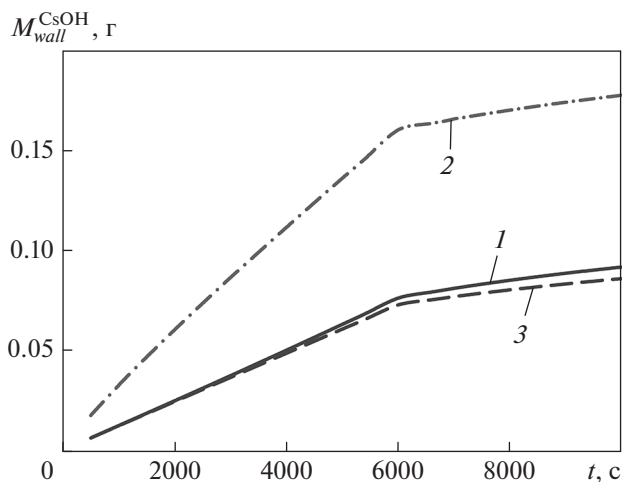


Рис. 4. Изменение со временем массы гидроксида цезия в отложениях на стенках M_{wall}^{CsOH} для модели с переменной плотностью материала смешанных частиц (1) в сравнении с результатами расчетов для приближения с постоянной плотностью UO_2 (2) и $CsOH$ (3)

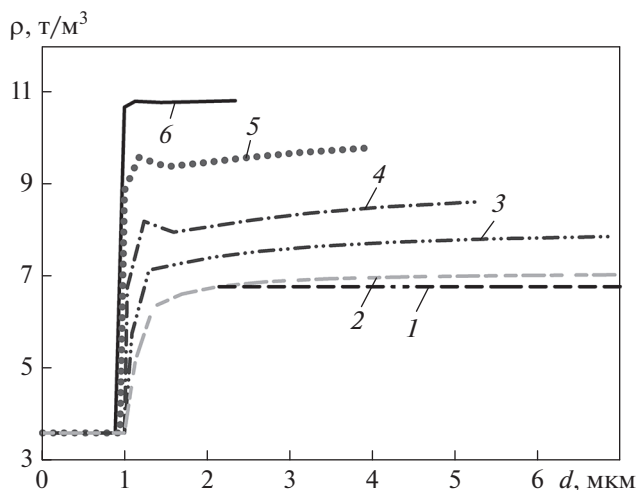


Рис. 5. Расчетная функция распределения удельной плотности материала смешанных аэрозолей в зависимости от диаметра частиц.
1 – при равновесной плотности; t , с: 2 – 20000; 3 – 10000; 4 – 6000; 5 – 3000; 6 – 500

оседают преимущественно на стенках вследствие броуновской диффузии, тогда как относительно более тяжелые частицы, которые содержат материал топливных аэрозолей, опускаются главным образом на пол помещения вследствие доминирования для них механизма гравитационного осаждения.

Таким образом, приведенные результаты показывают, что для адекватного моделирования поведения многокомпонентных аэрозолей продуктов деления в атмосфере защитной оболочки,

включая образование радиоактивных отложений на поверхностях, необходимо учитывать изменение плотности материала смешанных по составу аэрозолей. Использование упрощенной модели с постоянной плотностью может приводить к большим различиям в динамике накопления массы радионуклидов в отложениях и их распределения по поверхностям в защитной оболочке.

Вследствие коагуляции происходит выравнивание составов аэрозольных частиц и выход плотности материала смешанных аэрозолей на “равновесное” значение, определяемое суммарной массой компонентов в аэрозольной фазе в объеме защитной оболочки. В качестве примера на рис. 5 приведены результаты, полученные для расчетной функции распределения плотности материала смешанных аэрозолей в различные моменты времени.

Из представленных на рис. 5 данных следует, что в первые несколько сот секунд распределение плотности является ступенчатым и соответствует плотности начальных аэрозолей в источниках (для мелких частиц плотность гидроксида цезия, а для крупных – плотность топливных аэрозолей). С течением времени вследствие коагуляции плотность смешанных по составу аэрозолей принимает некоторое промежуточное значение, которое зависит от интенсивности источников и плотности материала начальных аэрозолей.

Важным результатом проведенных расчетов является получение близкого к однородному распределения плотности материала аэрозолей в диапазоне размеров больше 1 мкм. Предельной плотностью перемешанных аэрозолей в отсутствие существенного влияния осаждения частиц на поверхность должна быть плотность, рассчитываемая при условии полного смешения аэрозолей из двух источников, которая в рассматриваемом тестовом примере равна 6.76 г/см^3 . Видно, что за время примерно 20000 с происходит практически полное смешение аэрозолей из двух источников и выравнивание состава смешанных аэрозолей независимо от размера их частиц. Фактически только с этого момента модель коагуляции и осаждения многокомпонентных аэрозолей с постоянной плотностью может дать физически правильное значение.

ВЫВОДЫ

1. При моделировании поведения многокомпонентных аэрозолей продуктов деления в атмосфере защитной оболочки необходимо учитывать изменение состава аэрозолей вследствие коагуляции и, как следствие, изменение плотности материала смешанных аэрозолей.

2. Использование обычного подхода с предположением о постоянной плотности многокомпонентных аэрозолей независимо от их состава мо-

жет приводить к результатам, отличающимся от результатов, получаемых с помощью модели с переменной плотностью материала аэрозолей, в несколько раз для таких параметров, как масса многокомпонентных аэрозолей в атмосфере помещения и, в особенности, масса радионуклидов в отложениях на поверхностях.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Accident** source term for light-water nuclear power plants / L. Soffer, S.B. Burson, S.M. Ferrell, R.Y. Lee, J.N. Ridgely. Final Report, NUREG 1465, 1995.
2. **Разработка** модели расчета кинетики поведения аэрозолей в помещениях защитной оболочки в аварийных ситуациях на АЭС с ВВЭР / М.А. Затевахин, А.А. Игнатъев, В.В. Безлепкин, Ю.Г. Леонтьев, И.М. Ивков // Теплоэнергетика. 2007. № 2. С. 23–27.
3. **Herranz L.E., Clement B.** In-containment source term: Key insights gained from a comparison between the PHEBUS-FP programme and the US-NRC NUREG-1465 revised source term // Prog. Nucl. Energy. 2010. V. 52. P. 481–486. <https://doi.org/10.1016/j.pnucene.2009.11.003>
4. **Containment** behavior in Phébus FP / M. Laurie, P. March, B. Simondi-Teiseire, F. Payot // Ann. Nucl. Energy. 2013. V. 61. P. 122–134. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2013.03.032>
5. **Сорокин А.А.** Моделирование коагуляции аэрозолей продуктов деления // Атомная энергия. 2015. Т. 118. Вып. 4. С. 228–232.
6. **Seinfeld J.Y., Pandis S.N.** Atmospheric chemistry and physics. N.Y.: John Wiley & Sons, 1998.

Simulating the Behavior of Fission Product Aerosols in the Containment

D. A. Nazarov^a, D. S. Sinitsyn^{a, *}, N. A. Mosunova^a, and A. A. Sorokin^{a, **}

^a Nuclear Safety Institute, Russian Academy of Sciences, Moscow, 115191 Russia

*e-mail: synitsyn@ibrae.ac.ru

**e-mail: sorokin@ibrae.ac.ru

Abstract—During a severe accident at an NPP involving loss of the primary coolant circuit and reactor core tightness, the majority of volatile and nonvolatile fission products are released into the containment atmosphere in the form of aerosols, the particles of which are multicomponent in composition and polydisperse in size. The particle sizes may vary from a few nanometers to several tens of micrometers. The size and mass of aerosol particles determine their lifetime in a suspended state in the atmosphere of the reactor premises. The radiation activity of particles depends on the content of radionuclides in them and is only indirectly connected with their mass and size. Therefore, in simulating the behavior of radionuclides, it is very important to take into account not only the change in the disperse characteristics of aerosol particles, e.g., their mass and size, but also the content of low- and even very low-mass but highly radioactive admixtures in the particles. The article presents a fission product aerosols' behavior model, which takes into account a change in the concentration, size, and composition of aerosols, including a change in the particle material density. The model is implemented in the fraction method approximation for a discrete mass of particles. For taking into account the effect that the composition of components has on the density of mixed aerosol material, the ideal solution approximation is considered. Test calculations for the model problem with two sources of aerosol particles having different composition and diameter in the modeled room volume were carried out. The first source consisted of CsOH particles, and the second one of UO₂ particles. It is shown that it is important when simulating the behavior of multicomponent fission product aerosols in premises to take into account the change in the composition of aerosols as a result of coagulation and, as a consequence, the change in aerosol particle material density, which depends both on the composition and density of individual components.

Keywords: fission products, radionuclides, containment, multicomponent aerosols, simulation, coagulation, deposition, aerosol density, severe accident, radioactive deposits