

Jan Matuła

Instytut Techniki Ciepłej  
Politechniki Warszawskiej

## UPROSZCZONA METODA OCENY WYDZIELANIA PRODUKTÓW ROZSZCZEPIENIA Z PALIWA JĄDROWEGO REAKTORA ENERGETYCZNEGO

W artykule przedstawiono uproszczony sposób oceny wydzielania produktów rozszczepienia z paliwa oraz ich akumulacji w szczelinie gazowej elementów paliwowych reaktora typu PWR.

Metoda ta odnosi się do wybranej grupy produktów rozszczepienia oraz do ustalonego stanu pracy reaktora.

Prezentowany sposób pozwala na uniknięcie szeregu trudności, które występują w przypadku stosowania złożonych modeli matematycznych.

### WYKAZ OZNACZEŃ

N	- koncentracja atomów izotopu promieniotwórczego w paliwie	$\left[ \frac{m^{-3}}{m^2 s^{-1}} \right]$
D	- współczynnik dyfuzji izotopu w paliwie	$\left[ m^2 s^{-1} \right]$
B	- prędkość powstawania izotopu w wyniku rozszczepienia jąder U-235	$\left[ \frac{m^{-3} s^{-1}}{s^{-1}} \right]$
$\lambda$	- stała rozpadu promieniotwórczego	$\left[ s^{-1} \right]$
t	- czas	$\left[ s \right]$
R	- prędkość wydzielania atomów izotopu promieniotwórczego z paliwa	$\left[ \frac{m^{-3} s^{-1}}{s^{-1}} \right]$
$S_K$	- powierzchnia kulki równoważnej	$\left[ m^2 \right]$
$V_K$	- objętość kulki równoważnej	$\left[ m^3 \right]$
Q	- energia aktywacji	$\left[ J mol^{-1} \right]$
a	- promień kulki równoważnej	$\left[ m \right]$
r	- współrzędna	$\left[ m \right]$

- F - cząstkowa prędkość wydzielania izotopu z paliwa
- $D_0$  - graniczna wartość współczynnika dyfuzji  $[m^2 s^{-1}]$
- $R_g$  - uniwersalna stała gazowa  $[J mol^{-1} deg^{-1}]$
- T - temperatura  $[deg]$
- M - całkowita ilość atomów izotopu promieniotwórczego wydzielonego z paliwa do szczeliny gazowej elementu paliwowego
- V - objętość paliwa w elemencie paliwowym  $[m^3]$
- $R_v$  - prędkość wydzielania atomów izotopu promieniotwórczego z paliwa całego elementu paliwowego  $[s^{-1}]$
- $\delta$  - przekrój czynny na absorpcję neutronu termicznego  $[m^2]$
- $\phi$  - strumień neutronów termicznych  $[m^{-2} s^{-1}]$
- b - promień pastylki paliwowej  $[m]$
- $T_b$  - temperatura na powierzchni paliwa  $[deg]$
- Y - wydajność powstawania izotopu promieniotwórczego w wyniku rozszczepienia jądra U-235
- $\Sigma_f$  - makroskopowy przekrój czynny na rozszczepienie jądra U-235 przez neutron termiczny  $[m^{-1}]$
- k - wydajność powstawania izotopu promieniotwórczego przez rozpad prekursora
- n - numer izotopu w łańcuchu rozpadów promieniotwórczych

### Wstęp

Powstające w paliwie reaktora produkty rozszczepienia wydostają się na zewnątrz w wyniku różnych zjawisk fizycznych, które nie są jeszcze dokładnie poznane. Nastęrcza to poważne trudności w ujęciu ilościowym wpływu tych zjawisk na prędkość wydzielania produktów rozszczepienia w modelach matematycznych.

Dlatego też istniejące modele matematyczne wydzielania produktów rozszczepienia uwzględniają w zasadzie tylko zjawisko dyfuzji. Wpływ innych zjawisk uwzględniany jest globalnie

przez doświadczalne wyznaczenie wartości współczynników dyfuzji dla różnych produktów rozszczepienia. Dotychczasowe wyniki eksperymentów odznaczają się dużym rozrzutem i niepewnością. Wyniki obliczeń uzyskiwane z różnych modeli matematycznych, w których stosuje się wyznaczone doświadczalnie wartości współczynników dyfuzji są tak samo mało dokładne i rozbieżne.

Obecnie obserwuje się w praktyce tendencję do poszukiwania prostych i ekonomicznych metod oszacowania aktywności wydostających się z paliwa produktów rozszczepienia. Dokładność takich oszacowań jest w praktyce wystarczająca.

## 2. MODELE MATEMATYCZNE

Najczęściej stosowanym modelem matematycznym w obliczeniach prędkości wydzielania produktów rozszczepienia jest tzw. "prosty model dyfuzji" [1].

Model ten opiera się na założeniu, że pastylkę paliwową można traktować jako zbiór tzw. kulek równoważnych o promieniu "a", wydzielanie produktów rozszczepienia natomiast jako dyfuzję z takiej kulki.

Zmianę koncentracji danego produktu rozszczepienia w kulce równoważnej, z uwzględnieniem produkcji i rozpadu promieniotwórczego można opisać następującym równaniem

$$\frac{\partial N}{\partial t} = DV^2N + B - \lambda N, \quad (1)$$

z warunkiem początkowym  $N(r,0) = 0$  i brzegowym  $N(a,t) = 0$ .

Prędkość wydzielania z jednostki objętości paliwa, określona na podstawie prawa Ficka, wyraża się następującym wzorem

$$R = -\frac{S_k}{V_K} D \left[ \frac{\partial N(r,t)}{\partial r} \right]_{r=a}. \quad (2)$$

Dla stanu ustalonego wyrażenie (2) przyjmuje następującą postać

$$R = 3B \left( \sqrt{\frac{D}{\lambda a^2}} \coth \sqrt{\frac{\lambda a^2}{D}} - \frac{D}{\lambda a^2} \right). \quad (3)$$

Cząstkowa prędkość wydzielania jest określona następującym wyrażeniem

$$F = \frac{R}{B} = 3 \left( \frac{\sqrt{D}}{\sqrt{\lambda a^2}} \coth \sqrt{\frac{\lambda a^2}{D}} - \frac{D}{\lambda a^2} \right). \quad (4)$$

Występujący w powyższych równaniach współczynnik dyfuzji  $D$  zależy od temperatury zgodnie z równaniem Arrheniusa

$$D = D_0 e^{-\frac{Q}{RT}}. \quad (5)$$

Celem dotychczasowych eksperymentów było określenie wartości wydzielania cząstkowego  $F$  dla różnych produktów rozszczepienia w różnych temperaturach.

Korzystając z tych pomiarów można z wyrażenia (4) obliczyć wartość  $D$ , a następnie z wykresu funkcji  $\ln D = f\left(\frac{1}{T}\right)$  określić stałą  $D_0$  i energię aktywacji  $Q$ .

Prosty model dyfuzji pozwala więc obliczyć prędkość wydzielania danego produktu rozszczepienia, jeśli znane są wartości  $D_0$  i  $Q$ , charakterystyczne dla tego produktu.

Akumulację wydzielającego się produktu w szczelinie gazowej elementu paliwowego można obliczyć rozwiązując następujące równanie

$$\frac{dM}{dt} = R_v - \lambda M - \delta \phi M, \quad (6)$$

gdzie:

$$R_v = R V,$$

$V$  jest objętością paliwa w elemencie paliwowym.

Podstawowa trudność w stosowaniu tego modelu do obliczeń polega na prawidłowym określeniu promienia kulki równoważnej "a". Ponadto rdzeń reaktora należy podzielić na dużą ilość stref promieniowo-osiwych, a obliczenia powtarzać dla każdej strefy oddzielnie. Wynika to z charakteru zależności współz-

czynnika dyfuzji od temperatury. Rezultaty otrzymywane na podstawie tego modelu są obciążone dużym błędem. Jest to spowodowane z jednej strony brakiem dokładnych danych, z drugiej zaś nieuwzględnieniem szeregu zjawisk fizycznych, mających wpływ na wydzielanie produktów rozszczepienia.

Drugim modelem stosowanym w obliczeniach jest tzw. model równowagi [4]. Model opiera się na założeniu, że wydzielanie atomów produktów rozszczepienia z paliwa zależy od gradientu energii swobodnej Gibbsa.

Podstawowe równanie tego modelu, opisujące zmianę koncentracji atomów produktów rozszczepienia jest następujące

$$\frac{\partial N(r,t)}{\partial t} = B(r,t) - \lambda N(r,t) + v \left[ \frac{D(r,t)N(r,t)}{RT(r,t)} \nabla G(r,t) \right], \quad (7)$$

gdzie

$G(r,t)$  - energia swobodna Gibbsa.

Rozwiązanie tego równania dla stanu ustalonego ma postać następująca

$$b^2 T_b e^{\frac{Q}{RT}} \ln(1-F) = \frac{D_0}{\lambda} f \left( \int K dt \right), \quad (8)$$

gdzie:

$b$  - promień pastylki paliwowej,

$f \left( \int K dt \right)$  jest funkcją, której wartości zależą od całki przewodnictwa w paliwie.

Stosowanie tego modelu wymaga znajomości oprócz poprzednio wspomnianych wartości  $Q$  i  $D_0$ , jeszcze wartości funkcji  $f \left( \int K dt \right)$ , która zwana jest funkcją wydzielania.

Jak wynika z wyrażenia (8) funkcję wydzielania można określić na podstawie zmierzonych wartości  $F$ . Dotychczas model ten był stosowany do obliczeń wydzielania tylko niektórych gazowych produktów rozszczepienia. Dla obliczania innych brak jest danych.

W modelu drugim nie występuje pojęcie kulki równoważnej, pojawiają się natomiast inne trudności.

Inne modele matematyczne są modyfikacją prostego modelu dyfuzji [6] lub modelu stałej równowagi [2].

### 3. UPROSZCZONA METODA OCENY PRĘDKOŚCI WYDZIELANIA I AKUMULACJI PRODUKTÓW ROZSZCZEPIENIA Z PALIWA DO SZCZELINY MIĘDZY PALIWEM A KOSZULKĄ ELEMENTU PALIWOWEGO

Głównym źródłem zagrożenia są produkty rozszczepienia nagromadzone w szczelinach elementów paliwowych. Produkty te w razie uszkodzenia koszulki wydostają się natychmiast do obiegu pierwotnego.

W stanie ustalonym istnieje równowaga między koncentracją produktów w paliwie, prędkością ucieczki z paliwa do szczeliny oraz ilością produktów zgromadzonych w szczelinie. Koncentrację dowolnego produktu rozszczepienia w paliwie, w stanie ustalonym można określić rozwiązując następujący układ równań

$$\frac{\sum_f \phi Y_1 - \lambda_1 N_1 - \delta_1 \phi N_1 = 0}{\sum_f \phi Y_n - \lambda_n N_n - \delta_n \phi N_n + k_{n-1} \lambda_{n-1} N_{n-1} = 0}, \quad (9)$$

Układ równań (9) zależy od rodzaju łańcucha, w którym występuje wybrany produkt rozszczepienia.

Z przeprowadzonych obliczeń koncentracji dużej ilości produktów rozszczepienia, ważnych z punktu widzenia bezpieczeństwa radiologicznego, wynika że podobne rezultaty można otrzymać uwzględniając jedynie wpływ bezpośredniego prekursora na koncentrację wybranego produktu. Wystarczy więc rozwiązać następujący układ dwu równań:

$$\sum_f \phi Y - \lambda N - \delta \phi N + k_p \lambda_p N_p = 0, \quad (10)$$

$$\sum_f \phi Y_p - \lambda_p N_p - \delta_p \phi N_p = 0,$$

gdzie

wielkości z indeksem p odnoszą się do prekursora.

Najlepsze wyniki uzyskuje się przyjmując wartość  $Y_p = Y_1 + Y_2 + Y \dots Y_p$ , tzn. wydajność powstawania prekursora z rozszczepienia, jest równa sumie wydajności wszystkich produktów od początku łańcucha, łącznie z wydajnością samego prekursora.

Dla tej grupy produktów rozszczepienia, dla której w reaktorze energetycznym jest spełniona nierówność  $\lambda \gg \delta\phi$ , koncentracja nasycenia wybranego izotopu wyraża się następująco

$$N = \frac{\sum_f \phi (Y + k_p Y_p)}{\lambda} \quad (11)$$

Całkowitą ilość atomów danego izotopu w elemencie paliwowym lub w całym rdzeniu reaktora, można obliczyć mnożąc (11) przez objętość paliwa w elemencie paliwowym lub w rdzeniu reaktora. Oczywiście, że takie oszacowanie jest słuszne dla określonej średniej wartości strumienia neutronów termicznych w reaktorze.

Produkty rozszczepienia wychodzące z paliwa, gromadzą się w szczelinach między paliwem a koszulkami elementów paliwowych.

W stanie ustalonym istnieje równowaga między prędkością wydzielania z paliwa do szczeliny a rozpadem promieniotwórczym i zanikiem przez absorpcję neutronów. Ilość atomów dowolnego izotopu nagromadzonych w szczelinie gazowej elementu paliwowego, można określić rozwiązując następujący układ równań:

$$\begin{aligned} R_v - \lambda M - \delta\phi M + k_p \lambda M_p &= 0, \\ R_{vp} - \lambda M_p - \delta\phi M_p &= 0, \end{aligned} \quad (12)$$

gdzie:

$R_v, R_{vp}$  - prędkość wydzielania danego izotopu i prekursora z paliwa do szczeliny elementu paliwowego,  
 $M, M_p$  - całkowita liczba atomów danego izotopu i prekursora w szczelinie elementu paliwowego.

Rozwiązując układ równań (12) oraz uwzględniając, że  $\lambda \gg \delta\phi$ , liczbę atomów dowolnego izotopu w szczelinie gazowej elementu paliwowego w stanie ustalonym można wyrazić następująco

$$M = \frac{R_v + k_p R_{vp}}{\lambda} \quad (13)$$

Dzieląc stronami (13) przez (11) otrzymano

$$\frac{M}{N} = \frac{R_v + k_p R_{vp}}{\sum_f \phi(Y + k_p Y_p)} \quad (14)$$

Oznaczając prędkość powstawania danego izotopu oraz prekursora w wyniku rozszczepienia, jako  $B = \sum_f \phi Y V$  i  $B_p = \sum_f \phi Y_p V$ , wyrażenie (14) można zapisać następująco

$$\frac{M}{N_v} = \frac{R_v + k_p R_{vp}}{B + k_p B_p} \quad (15)$$

Dzieląc przez  $B \cdot B_p$  oraz oznaczając stosunek  $\frac{R_v}{B}$  i  $\frac{R_{vp}}{B_p}$  odpowiednio przez  $F$  i  $F_p$ , wyrażenie (15) przyjmuje poniższą postać

$$\frac{M}{N_v} = \frac{F + k_p F_p \frac{Y_p}{Y}}{1 + k_p \frac{Y_p}{Y}} \quad (16)$$

Występująca w wyrażeniu (16) wielkość  $F$  jest nazywana wydzielaniem cząstkowym. Wartość ta jest wyznaczana doświadczalnie. Jak wykazały dotychczasowe badania zależy ona od temperatury, obciążenia cieplnego, gęstości paliwa i jego wypalenia. W dotychczasowych pracach wyznaczone doświadczalnie wartości  $F$ , były używane do określenia współczynnika dyfuzji lub funkcji wydzielania dla potrzeb wspomnianych poprzednio modeli matematycznych. Następnie rozwiązując równanie dyfuzji określano prędkość wydzielania  $R$  i dalej obliczano akumulację produktów w szczelinie gazowej.

Przedstawiony sposób pozwala na użycie tych samych wartości  $F$ , wprost do określenia liczby atomów i aktywności danego izotopu nagromadzonego w szczelinie elementu paliwowego w stanie ustalonym. Oznaczając prawą stronę wyrażenia (16) przez  $k_w$  - można interesującą wielkość  $M$  określić jako iloczyn

$$M = k_w N_v \quad (17)$$

Współczynnik  $k_w$ , zwany współczynnikiem "wyjścia" lub uwolnienia, określony na podstawie danych doświadczalnych z



wyrażenia (16), uwzględnia wpływ prekursora na ilość produktu nagromadzonego w szczelinie gazowej.

#### 4. OBLICZENIE WSPÓŁCZYNNIKÓW WYJŚCIA $k_w$ NIEKTÓRYCH PRODUKTÓW ROZSZCZEPIONIA NA PODSTAWIE DANYCH DOŚWIADCZALNYCH

W zamieszczonej tabeli 1 podano wartości współczynników  $k_w$  obliczonych wg wyrażenia (16), na podstawie niektórych publikowanych wartości  $F$ , określonych doświadczalnie.

Tabela 1

Grupa prod. rozszcz.	Średnie wartości $k_w$ - obliczone na podst. danych				Wartość $k_w$ wg [5]
	[7]	[5]	[6]	[4]	
Xe, Kr	0,031	0,0282	0,041	0,046	0,03
J, Br	0,056	0,07	0,075	0,08	0,05
Cs, Rb	0,13	0,095	-	-	0,15
Sr, Ba	0,036	0,013	-	-	0,01
Te	0,124	0,097	-	-	0,10

W ostatniej kolumnie tabeli zamieszczono wartości współczynników  $k_w$  zalecane do stosowania w [5]. Wartości współczynników  $k_w$ , zalecane w [5], oszacowano w przybliżeniu na podstawie analizy uzyskiwanych wyników obliczeniowych i doświadczalnych.

Autorzy tych oszacowań nie ukrywają, że proponowane wartości mogą być kilka razy większe lub kilka razy mniejsze.

W przedstawionym artykule wykazano, że podobne wartości współczynników można otrzymać sposobem analitycznym.

Przedstawiony sposób oceny ilości produktów rozszczepienia w szczelinach gazowych elementów paliwowych, umożliwia uzyskanie wyników dla określonych średnich parametrów fizycznych reaktora (strumień neutronów termicznych, temperatura). W za-

leżności od przyjętego przebiegu awarii i stopnia uszkodzenia rdzenia, pozwala on na szybkie oszacowanie aktywności szczególnie niebezpiecznych produktów rozszczepienia, które mogą uwolnić się do obiegu pierwotnego i budynku reaktora, a następnie do otoczenia elektrowni jądrowej.

### BIBLIOGRAFIA

- [1] Booth A.H.: A suggested method for calculating the diffusion of radioactive rare gas fission products from  $UO_2$  fuel elements AECL-DCI-27. 1958.
- [2] Matuła J.: Model analityczny wydzielania radioaktywnych produktów rozszczepienia w elemencie paliwowym jądrowego reaktora energetycznego. Praca doktorska PW 1975 (nie publikowana).
- [3] Matuła J.: Ocena zasobów produktów rozszczepienia w rdzeniu jądrowego reaktora energetycznego. Biuletyn Informacyjny ITC PW Nr 49. Warszawa 1978 r.
- [4] Yuil W.A. et al.: An analytical model describing the behaviour of fission products in operating fuel pins. TID-4500. 1971 r.
- [5] Ritzman R.L. et al.: Release of radioactivity in reactor accidents. WASH-1400, App.VII-USAEC. 1974.
- [6] Ronchi C. and Matzke H.: Calculations on the in-pile behaviour of fission gas in oxide fuels - Joint Nuclear Research Centre Karlsruhe. 1972 r.
- [7] Parker GW. and Barton C.J.: Fission product release. The Technol of Nucl. React. Saf.-Chapt. 18-MIT. 1964.

### УПРОЩЕННЫЙ МЕТОД ОЦЕНКИ ВЫХОДА ПРОДУКТОВ РАЩЕПЛЕНИЯ ИЗ ТОПЛИВА ЯДЕРНОГО ЭНЕРГЕТИЧЕСКОГО РЕАКТОРА

#### К р а т к о е   с о д е р ж а н и е

В работе описывается упрощенный метод оценки выхода продуктов расщепления ядерного топлива и их аккумуляции в газовом зазоре топливных элементов реактора типа ВВЭР.

Метод относится к избранной группе продуктов расщепления и к установившемуся режиму работы реактора. Предлагаемый метод обеспечивает возможность исключения ряда затруднений, ко-

горые приходится преодолевать в случае использования сложных математических моделей.

## THE SIMPLIFIED METHOD OF ESTIMATION OF FISSION PRODUCTS RELEASE FROM FUEL OF NUCLEAR POWER REACTORS

### S u m m a r y

The simplified method of estimation of fission products release from fuel and its accumulation in gas gaps of fuel elements of PWR reactors has been presented.

This method can be used for chosen group of fission products for the steady state operation of a nuclear reactor.

The accuracy of the proposed method is comparable with that of more complex models.

Rękopis dostarczono 2 sierpnia 1979 r.