# Модуль CONTFP

Для моделирования поведения летучих форм йода и других радиоактивных ПД в помещениях и водных растворах в контейнменте при авариях на реакторном блоке и оценки радиационных последствий аварий на местности разработан программный модуль CONTFP. Модель, используемая в модуле CONTFP, основана на методике расчета, разработанной в НТЦ ЯРБ ГАН РФ [50].

## Основные определения и процессы

### Замечания общего характера

Ядра элементов, образующиеся в топливе в результате деления тяжелых ядер, будем называть радионуклидами. В результате физико-химических процессов радионуклиды могут образовывать в топливе и под оболочками твэлов химические соединения, количество которых будет зависеть от концентрации радионуклидов. Совокупность радионуклидов и их соединений будем называть продуктами деления.

Радиационная обстановка на местности при авариях на АС обусловливается вышедшими в атмосферу окружающей среды радиоактивными продуктами деления. При этом часть продуктов деления будет находиться в газообразном виде, а часть продуктов деления будет находиться на аэрозольных частицах.

В случае проектных аварий появление продуктов деления в атмосфере технологических помещений и окружающей среды, как правило, связано с истечением теплоносителя из первого контура. Активность теплоносителя контура циркуляции реактора ВВЭР-1000 составляет около 3,7 108 Бк/м3. В случае разрывов трубопроводов малого диаметра, происходит выход продуктов деления, накопившихся в теплоносителе первого контура, а при обрыве трубопровода большого диаметра дополнительно к этому количеству могут выйти продукты деления, накопившиеся под оболочками твэлов (от 1% до 3% от накопленного количества продуктов деления в топливе). Массовая доля аэрозольных частиц в полном балансе продуктов деления, находящихся в воздухе под защитной оболочкой реакторного блока, при проектных авариях составляет не более 10% [51].

Расчетный анализ запроектных аварий показал, что при авариях с плавлением активной зоны количество радиоактивных продуктов в атмосфере составляет лишь незначительную долю от количества неактивного вещества. основную проблему при запроектной аварии представляют аэрозольные частицы, концентрация которых в атмосфере гораздо выше, чем при проектных авариях [52].

Вместе с тем, концентрация различных соединений йода при запроектных авариях также значительно выше, чем при проектных авариях. Это обусловлено ранним и почти полным выходом йода из топлива на стадии разогрева и плавления топлива в активной зоне (для ВВЭР-1000 это около 16 кг). Тепло-гидравлические параметры среды под защитной оболочкой (температура, давление и т.д.) при запроектных авариях будут принимать более высокие значения, и подвергаться более резкому изменению, чем при проектных авариях.

Таким образом, области определения параметров важных для описания переноса и поведения продуктов деления, которые зависят от характеристик среды, будут отличаться для проектной и запроектной аварии.

### Среда распространения продуктов деления

В процессе аварии продукты деления могут находиться в газовой и жидкой средах, а также на различных поверхностях в объеме защитной оболочки.

В газовой среде (в последующих формулах обозначается индексом G) могут находиться газообразные продукты деления, пары летучих продуктов деления и аэрозоли. В жидкой среде (в последующих формулах обозначается индексом W) могут находиться различные химические реагенты и продукты деления в растворимой форме. На поверхностях (в последующих формулах обозначается индексом S) помещений, оборудования, аэрозольных частиц могут осаждаться продукты деления, находящиеся в газовой или жидкой среде. Газообразные и летучие продукты деления в процессе аварии могут переходить из одной среды в другую в результате работы систем локализации, осаждения на поверхностях и десорбции с них.

### Группы продуктов деления

По своим физико-химическим свойствам продукты деления, вышедшие за пределы первого контура, можно разделить на несколько групп: газообразные продукты, например, радиоактивные благородные газы Kr, Xe, Ar (РБГ), пары продуктов деления и их химических соединений, могут образовываться в среде при аварии, и аэрозольные частицы, образующиеся за счет конденсации паров.

При массопереносе продуктов деления из одной среды в другую и осаждении их на поверхностях возможно изменение физико-химической формы этих продуктов в результате химических реакций и изменения условий. При этом скорость массопереноса на границе раздела двух сред или в ламинарном слое у поверхности и скорость физико-химических превращений соединений могут отличаться. Если скорость массопереноса через границу раздела сред выше, чем скорость физико-химических превращений, то эти реакции не будут оказывать влияние на массоперенос между средами или на процесс адсорбции/десорбции с поверхности. При более высоких скоростях физико-химических реакций в процессе массопереноса может образовываться значительное количество соединений, которые обладают другими физико-химическими свойствами, что может повлиять на скорость массопереноса радиоактивных продуктов между средами. Для осуществления математического моделирования можно выделить три группы продуктов деления:

Первая группа: соединения продуктов деления, скорость физико-химических реакций которых мала. Поскольку эти соединения практически не взаимодействуют с водой, воздухом и поверхностями стен, то они могут не учитываться при описании массопереноса между средами. К этой группе относятся радиоактивные благородные газы и трудноулавливаемые соединения йода, представителем которых, как правило, рассматривается йодистый метил (СН3I).

Вторая группа: соединение продуктов деления, скорость физико-химических реакций которых существенна для расчетов. Эта группа продуктов деления должна учитываться при описании массопереноса между средами. К данной группе относятся неорганические соединения йода, представителем которой обычно берется наиболее химически стабильное соединение — элементарный йод (I2).

Третья группа: продукты деления на аэрозолях. Все другие продукты деления, кроме инертных газов и органических соединений йода, находятся в аэрозольной форме.

### Основные уравнения для произвольной группы радионуклидов

#### Постановка задачи

С математической точки зрения задача сводится к следующему. Для заданных начальных и граничных условий и для каждого момента времени необходимо рассчитать изменение содержания продуктов деления в помещениях, системах обеспечения безопасности блока, средах помещений и систем, на поверхностях помещений и систем, а также выход продуктов деления в окружающую среду с учетом источников продуктов деления в помещения и системы аварийного энергоблока для вышепринятых трех групп и перехода радионуклидов из группы в группу.

Эти значения, которые могут быть определены с помощью физико-химического анализа, получаются путем решения системы дифференциальных уравнений с заданными начальными условиями.

#### Процессы, учитываемые в расчетах

Радиационные последствия аварий определяются количеством и видом продуктов деления, выходящих с газообразной и жидкой средой за пределы герметичных помещений системы локализации. Если пренебречь утечкой жидкой среды из СЛА (Система Локализации Аварии), то радиационная обстановка на местности будет определяться величиной объемной утечки газовой среды (Gg) и концентрацией радионуклидов в ней.

Концентрация радионуклидов в газовой среде зависит от процессов обмена между газовой и жидкой средами, между газовой средой и поверхностями и от скоростей физико-химических превращений соединений радионуклидов, т.е. от скорости перехода радионуклидов из одной группы в другую. Эти процессы могут протекать различными способами в зависимости от состава и свойств каждой среды.

#### Построение системы уравнений

Обозначим через , — количество продуктов деления *i*-ой группы в объеме герметичного помещения системы локализации в газовой, жидкой средах и на поверхностях, соответственно. Тогда, если поступление *k*-го радионуклида *i*-ой группы продуктов деления в помещение составляет  (где Gen — расход среды, поступающей в помещение;  — удельная активность *k*-го радионуклида *i*-ой группы продуктов деления), а утечка осуществляется за счет утечки паро-воздушной среды с расходом — Gex(t)**,** то система, описывающая баланс *k*-го радионуклида *i*-ой группы, будет иметь вид:



 (8.1)



Здесь:

|  |  |
| --- | --- |
| Fi (G,W) | функционал, описывающий переход продуктов деления *i*-ой группы из газовой среды в жидкую среду, где *i* изменяется от 1 до 3 (количество групп продуктов деления). |
| Fi (W,G) | функционал, описывающий переход продуктов деления *i*-ой группы из жидкой среды в газовую среду. |
| Fi (G,S) | функционал, описывающий переход продуктов деления *i*-ой группы из газовой среды на поверхность. |
| Fi (S,G) | функционал, описывающий переход продуктов деления *i*-ой группы с поверхности в газовую среду. |
| Fi (W,S) | функционал, описывающий переход продуктов деления *i*-ой группы из жидкой среды на поверхность. |
| Fi (S,W) | функционал, описывающий переход продуктов деления *i*-ой группы с поверхности в жидкую среду. |
| FG(I,L) | функционал, описывающий переход продуктов деления *i*-ой группы в *l*-ю группу в жидкой среде. |
| FW(I,L) | функционал, описывающий переход продуктов деления *i*-ой группы в *l*-ю группу в газовой среде. |
| FS(I,L) | функционал, описывающий переход продуктов деления *i*-ой группы в *l*-ю группу на поверхности. |

В случае, если в результате распада некоторого радионуклида образуется заметное количество i-го радионуклида, то это учитывается с помощью дополнительного члена в каждом уравнении.

#### Рассматриваемые функционалы и их использование

В таблице 8.1 указано, какие функционалы и когда используются для анализа проектных аварий. «Нет» означает, что данный функционал не используется в расчетах переноса приведенной в колонке таблицы группы продуктов деления. «Да» означает, что данный функционал используется в расчетах переноса приведенной в колонке таблицы группы продуктов деления.

Значения соответствующих функционалов должны быть определены для следующего диапазона изменения теплогидравлических параметров при проектных авариях:

Температура от 20ºС до 150ºС

Давление паро-воздушной среды от 0,05 до 0,5 МПа

Парциальное давление воздуха от 0,0 до 0,15 МПа

Таблица . – перечень рассматриваемых функционалов

| Функционал, F | Первая группа | | Вторая группа | Третья группа |
| --- | --- | --- | --- | --- |
|  | РБГ | СН3I и др. органические соединения йода |  |  |
| Fi (G,W) | нет | да | да | да |
| Fi (G,S) | нет | нет | да | да |
| FG (I,L) | нет | нет | нет | нет |
| FW (I,L) | нет | да | да | нет |
| FS (I,L) | нет | нет | да | да |
| Fi (W,G) | нет | да | да | да |
| Fi (W,S) | нет | нет | нет | нет |
| Fi (S,G) | нет | да | да | нет |
| Fi (S,W) | нет | нет | нет | нет |

#### Функционал, описывающий переходы различных групп радионуклидов из газовой среды в жидкую (Fi (G,W))

Функционал, описывающий переход i-го радионуклида k-ой группы из газовой среды в жидкую, в зависимости от используемых технических средств, может иметь различный вид. Переход из газовой среды в жидкую может осуществляться при работе спринклерной системы, водоэжекционных охладителей, при барбортаже, а также за счет диффузии из газовой среды в жидкую. Последний процесс, как правило, незначителен и им пренебрегают.

Из-за слабой растворимости в воде в рассматриваемом диапазоне температур и давлений переход РБГ в воду также не рассматривается.

##### Спринклерная система

В соответствии с рекомендациями работы [56] функционал Fi(G,W) для первой и второй группы радионуклидов может быть записан в виде:

F1,2(G,W) = Е1, 2 (t) H1, 2 (t) L/V, (8.2)

где L — расход водного раствора, подаваемого на форсунки спринклерной системы;

V — объем помещения, где происходит разбрызгивание раствора;

Е1,2(t) — эффективность абсорбции радионуклидов первой и второй группы соответственно спринклерной системы (определяется в соответствии с рекомендациями, изложенными в Приложении А);

H1,2(t) — коэффициенты распределения радионуклидов первой и второй группы соответственно, определяемые в соответствии с рекомендациями, изложенными в Приложении Б.

Для третьей группы этот функционал будет иметь вид:

F3(G,W) = E3  (t) L/V. (8.3)

Значение E3(t) для радионуклидов третьей группы можно определить в соответствии с рекомендациями, изложенными в Приложении А.

##### Водо-эжекционные охладители

Величины F1,2(G,W) для водо-эжекционных охладителей находятся по тем же соотношениям (8.2, 8.3), что и для спринклерной системы, Значения промежуточных параметров, используемых в соотношениях, приведены в Приложениях А и Б в соответствующих разделах.

##### Барботажные устройства

Переход из газовой в жидкую среду и обратно может происходить также при барботаже. При этом барботер может быть представлен как помещение без газовой среды, т.е. только с жидкой средой. Если принять, что концентрация соединений йода, относящихся к первой и второй группе, в паро-воздушной смеси внутри пузырька при всплытии в воде барботера приходит в равновесие с концентрацией их в воде барботера, то уравнение расчета взаимодействия соединений йода, растворенных в паро-воздушной смеси, с водой барботера будет иметь вид:

d(NW(t,2))/dt=NG(t,l)⋅Gen(G+St)/V(l)–Gen(G)⋅NW(t,2)/ (V(2)⋅H(t)), (8.4)

где:

NW(t,2) — количество *i*-го радионуклида первой и второй группы в воде барботера;

NG(t,l) — количество *i*-го радионуклида первой и второй группы в газовой среде помещения перед барботером;

Gen(G+St) — расход пара и воздуха на барботер;

Gen(G) — расход воздуха на барботер;

V(1) — объем помещения до барботера;

V(2) — объем воды в барботере.

Таким образом, при принятом допущении, выражение для Fi(G,W) для барботажа имеет вид:

F1,2(G,W) = Gen (G)/(V(2) Н1,2(t)). (8.5)

В случае, если равновесие между концентрацией соединений йода в паро-воздушной смеси внутри пузырька и в воде барботера не достигается, то необходимо в формуле F1,2(G,W) использовать эффективность абсорбции, которая может быть определена расчетным или экспериментальным путем. С учетом выше сказанного формула (8.5) будет иметь вид:

F1,2(G,W) = F1,2(t) Gen(G)/(V(2) Н1,2(t)). (8.6)

Для 3-ей группы этот функционал будет иметь вид:

F3 (G,W) = Е3 (t). (8.7)

##### Переходы различных групп радионуклидов из газовой среды в жидкую у поверхности бассейна с водой

Массовый поток химического соединения через поверхность *Ae* может быть записана следующим образом: *Φ = *, где *J* —вектор массового потока через единичную поверхность и dS — единичный вектор поверхности. Перенос через поверхность *Ae* является молекулярной диффузией. В этом случае можно применить закон Фика, тогда токовый вектор для вещества можно задать с помощью выражения: *J =* –*D grad C*, где *C* — массовая концентрация химического соединения.

Перенос массы через поверхность является сложным явлением и его можно разбить на четыре компонента:

* объем газовой среды;
* газовая пленка на разделе;
* водяная пленка на разделе;
* объем жидкой среды.

Предполагая, что газовая среда хорошо перемешана и жидкая среда хорошо перемешана и что градиент концентрации одинаков через поверхность *Ae*, можно записать [63–65]: Φ = D δC/δn Ae,, где n — направление, перпендикулярное к поверхности.

Поток газа от воды в атмосферу будет тогда определятся формулами [66, 67]:

Φ = kg (C\*g – Cg) Ae,= kl (Cl – C\*l) Ae, (8.8)

где (kg, kl) — коэффициент переноса массы на стороне газа или жидкости; (Cg,Cl) и (C\*g,C\*l), соответственно, представляют собой концентрации газа или в общей массе газа или жидкости и концентрации в пленке, которая разделяет газ и жидкость. Концентрации газа или жидкости в пленке, которая разделяет газ и жидкость C\*g, и C\*l неизвестны, однако предполагается, что равновесие достигается очень быстро, так что газообмен подчиняется закону Генри: 1/H = H\* = C\*l/C\*g .

После исключения C\*g и C\*l из формулы для Φ получим следующее выражение для потока [66]:

— на основе жидкой фазы

Φ = kg (Cl – Cg H\*) (1/kl + H\*/ kg) Ae = Kl Ae(Cl – Cg H\*), (8.9)

где1/Kl = 1/kl + H\*/kg ,

— на основе газовой фазы

Φ = (Cl/H\* – Cg) / (1/kg + 1/H\*kl) Ae = Kg Ae(Cl/H\* – Cg), (8.10)

где1/Kg = 1/kg + 1/H\*kl .

Оба коэффициента Kl и Kg, даже, если они имеют различные значения, относятся к, так называемому, «полному коэффициенту массового переноса». Поэтому, важно знать, относится ли выражение, заключенное в кавычки, к основе жидкой фазы или к основе газовой фазы. Тогда имеем соотношение:

Kg/Kl = H\*.(8.11)

Взаимный полный коэффициент массового переноса, то есть, 1/Kl или 1/Kgявляется мерой сопротивления переносу газа. Полное сопротивление обмену каким-либо газом будет благодаря комбинации сопротивлениям газовой и жидкой фаз. Это зависит от констант обмена отдельных фазkl и kg, а также от значения константы закона Генри H = 1/H\*. Численные значения и для для какого-либо газа говорит нам об относительной важности сопротивления жидкой и газовой фаз для массообмена именно данным газом.

Экспериментальные значения парциального коэффициента H\* в зависимости от температуры жидкой фазы Tl, выводятся с использованием эмпирической зависимости, полученной в работах [68, 69]:

H\*I2 = 231,285 exp(1,65017 10–4 (Tl – 571,243) (Tl – 273,15)), (8.12)

H\*CH3I = exp(– 6,97 + 2641,0/Tl ). (8.13)

Коэффициенты диффузии DI2 и DCH3I рассчитываются в коде при использовании теории простой диффузии в газе при низкой плотности [63, 65]. Если известны H\* и D, то можно оценить массовый коэффициент переноса для I2 и для СH3I.

Коэффициент массопереноса выводится на основе газовой фазы по аналогии с процессом теплового массопереноса. Поток газа из воды в атмосферу равен

Φ1 = Kg (Cl/H\* – Cg) Ae. (8.14)

Аналогия с процессом теплового массопереноса выражается в том, что λ/h = D/Kg, где *λ* представляет собой теплопроводность в атмосфере, а h — коэффициент теплопередачи [67].

Можно рассмотреть две возможности:

— если концентрация газа выше в атмосфере (Cg > Cg\*), то поток Φ1рассчитывается с использованием приближения Ушиды [70]. В этом приближении эффективный коэффициент теплопереноса λ/h= D /Kg, задается формулой h= hTPQC/PQT, где hT — полный коэффициент теплопереноса; PQC и PQT — тепловая мощность за счет конвекции и полная тепловая мощность, соответственно, на границе раздела газ–вода. Формула Ушиды дает нам следующее выражение для коэффициента [70]: hT= 11,351 + 283,77 X, где X = mv/mi, mv — масса пара, а mi — масса неконденсируемых газов. В этом случае поток Φ1 и полный коэффициент массопереноса рассчитываются на основе газовой фазы и определяются формулами:

Φ1 = D/λ hT PQC/PQT Ae. (Cl/H\* – Cg), (8.15)

Kg = D/λ hT PQC/PQT, (8.16)

— если концентрация газа выше в водной фазе (Cg\* > Cg), то поток Φ1рассчитывается с использованием корреляций теплопереноса, которые применяются в условиях естественной конвекции [63, 67, 71]. Эта корреляция выражается в терминах числа Нуссельта Nu, в числе Грасхофа Gr и в числе Прандля Pr :

Nu = a (Gr Pr)m, где Nu = hl/λ, а l — длина области теплообмена или «диаметр приямка», который равен*:* l = (4 Ae/π)1/2.

Gr= g (l3/ν2)(|Tg– Tl|)/Tl, где g — ускорение свободного падения, *ν* — кинематическая вязкость атмосферы, Tg и Tl — температура атмосферы и воды, соответственно.

Pr= Cp μ/λ, где Cp — удельная теплоемкость атмосферы, а μ — динамическая вязкость атмосферы.

Коэффициенты a и m принимают следующие значения:

если 104 < Gr < 2 107 и Tg > Tl, то a = 0,54 и m = 0,25;

если 104 <Gr < 2 107 и Tg < Tl, то a = 0,27 и m = 0,25;

если 2 107 ≤ Gr < 1020 и Tg > Tl, то a = 0,14 и m = 0,33;

если 2 107 ≤Gr < 1020 и Tg < Tl, то a = 0,27 и m = 0,25.

Заметим, что предел для Gr был расширен. В дальнейшем коэффициенты a и m будут определяться по отношению к Gr (в работе [71] они определены по отношению к Gr, Pr).

Поток Φ1и полный коэффициент массопереноса на основе газовой фазы Kg затем рассчитываются следующим образом:

Φ1 = D/l a(Gr Pr) m (Cl/H\* – Cg) Ae , (8.17)

Kg = D/l a(Gr Pr) m. (8.18)

Заметим, что, если Tg = Tl, Gr = 0, то Φ1 = 0.

С учетом выше сказанного формула для F1,2(G,W) будет иметь вид:

F1,2(G,W) = – Kg (Cl/Cg/H\* – 1) Ae/Vg . (8.19)

##### Переходы различных групп радионуклидов из газовой среды в жидкую при конденсации пара на поверхностях конструкций и воде

В условиях, при которых конденсируется пар, ожидается интенсивный массовый поток по направлению к поверхностям, что приведет к увеличению переноса паров йода в поверхностную жидкую пленку, включая молекулярный йод и органический йод. В формализме этого явления газы предполагаются идеальными, подчиняющимися следующим соотношениям:

Для газа А: PA Vg = nA R Tg, где PA — парциальное давление газа А, Vg — полный объем газовой фазы, nA — число молекул газа А, (nA = mA/MA), R — постоянная идеального газа и Tg — температура газовой фазы.

Если предположить идеальный перенос, то есть, предположить, что отношение массы пара и массы газа А постоянно (mv/mA), то можно записать:

dmv/mv = dmA/mA. (8.20)

Вводя молекулярную концентрацию газа и используя закон идеального газа для пара в следующем виде:

dmA/mA = dCA/CA,

1/mv = R Tg/(Mv Pv Vg),

можно записать следующее:

dmv/dt R Tg/(Mv Pv Vg)= dCA/dt 1/CA. (8.21)

При этом ηs = dmv/dt — масса пара, сконденсированного на стенах контейнмента и на поверхности воды в единицу времени при условии dmv/dt < 0.

Поток ΦZA газа А, растворенного в сконденсировавшемся паре, будет равен:

ΦZA = Vg dCA/dt = ksCA , где (8.22)

ks = – ηs R Tg/(Mv Pv). (8.23)

Предполагается, что конденсат, образуемый на стенах контейнмента, целиком попадает в воду приямка. Предполагается, что атмосфера хорошо перемешана так, что константа конденсации одинакова для всех конденсируемых соединений.

F1,2(G,W) будет иметь вид:

F1,2(G,W) = – ksAe/Vg . (8.24)

Для аэрозолей рассматривается диффузиофорез.

Диффузиофорез — механизм осаждения на стенках, определяемый потоком на конденсацию пара и увлекаемым им потоком неконденсируемого газа (поток Стефана), идущими из атмосферы, содержащей аэрозоли, по направлению к окружающей ее поверхности стенки. Соответствующая скорость выведения дается выражением:

RD =с–1 (8.25)

с поправочным коэффициентом:

F = .

Где:

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
| Ps | парциальное давление пара | бар |
| P | давление газа | бар |
| ms | масса пара в объеме | г |
| W | массовая скорость потока пара на конденсацию | кг/с |
| MS | молекулярная масса пара | г/моль |
| Mi | молекулярная масса компонента i | г/моль |
| Xi | молярные доли неконденсируемых газов и пара | - |

Замечание: В этой формулировке считается, что конденсация пара происходит на всех стенках объема.

F3(G,W) = RD. (8.26)

#### Переход радионуклидов различных групп из газовой cреды на поверхности (Fi (G,S))

Как следует из таблицы 8.1, скорость осаждения радионуклидов первой группы (РБГ и органические соединения йода) из газовой cреды на поверхности считается незначительной, т.е. Fi (G,S) = 0.

Скорость осаждения радионуклидов второй группы вычисляется по формуле [63]:

F2(G,S) = 10−2  S/V; (8.27)

где:

S — площадь внутренних поверхностей в м2;

V — объем помещения в м3;

10−2 — коэффициент в м2/с.

Выведение радионуклидов третьей группы из объема на поверхности может осуществляться за счет различных процессов. В частности, в условиях перемешивания, модель выведения аэрозолей хорошо известна [64]. Изменение счетной концентрации аэрозолей dN(r) за время dt за счет осаждения на поверхности:

dN(r)/dt = – N(r) u(r) S/V; (8.28)

где V — объем, в котором содержатся аэрозоли;

S — связанная с процессом площадь, на которую имеет место осаждение частиц;

u(r) — скорость осаждения;

u(r) = F B(r); (8.29)

которой обладает частица радиуса r и подвижности B(r) под воздействием действующей силы F. Для сферической частицы подвижность B(r) дается законом Стокса:

B(r) = C(r)/(6πνr); (8.30)

где:

ν — вязкость газа-носителя,

С(r) — эмпирический поправочный коэффициент Каннингема

С(r) = 1 + 1,246 Kn exp(– 0,87/Kn) (8.31)

(Kn — число Кнудсена).

Параметр размера **r** является эквивалентным радиусом объема, который в обычных применениях равен радиусу Стокса (см. Приложение А для детальной информации).

Для гравитационного осаждения скорость осаждения в стационарном состоянии получается подстановкой силы тяжести F в уравнение (8.28)

uS(r) = 2 ρeff g/(9 ν) r2 C (r), (8.32)

где

g — гравитационная постоянная;

ρeff — эффективная плотность (сферической) частицы.

Для гравитационного осаждения площадь поверхности А в уравнении (1) нужно брать в виде суммы всех направленных вверх проекций поверхностей в объеме V. Для всех других процессов ориентация поверхностей не важна.

Для диффузионного осаждения используется уравнение:

uS (r) = D(r)/δD (8.33)

D(r) — коэффициент диффузии;

D(r) = k T B(r), (8.34)

где k — постоянная Больцмана;

Т — абсолютная температура;

δD — толщина диффузионного пограничного слоя, в котором концентрация частиц спадает до нуля с постоянным градиентом. В большинстве случаев принимаемая величина δD=0,01 см.

Для рассматриваемых случаев выражение для F3(G,S) будет иметь вид:

F3(G,S) = **∑**u i(r) S i /V, (8.35)

а значение ui(r) выбирается в зависимости от описываемого процесса.

Для оценки скорости осаждения, когда трудно оценить влияние тех или иных процессов, часто используются эмпирические соотношения, полученные экспериментально в условиях, приближенных к проектной аварии. В качестве такого эмпирического соотношения используется выражение для постоянной скорости осаждения следующего вида [65]:

F3(G,S) = 5 10−2  S/V. (8.36)

#### Переход радионуклидов из группы в группу (FG,W,S(I,L))

Из-за разнообразия механизмов, обуславливающих переход радионуклидов из одной группы в другую, описать этот процесс наиболее трудно. Переход может осуществляться как за счет механизмов физической природы (распад продуктов деления, испарение и т.д.), так и за счет химических реакций. Так, в результате распада некоторых радионуклидов инертных радиоактивных газов (первая группа) могут образовываться радионуклиды цезия или рубидия, аэрозоли которых входят в третью группу. Взаимодействие неорганических соединений йода (вторая группа) с органическими примесями в атмосфере может привести к образованию органических соединений (первая группа). В дальнейшем принимается, что:

* переход радионуклидов из одной группы в другую за счет радиоактивного распада незначителен и им можно пренебречь;
* переход радионуклидов инертных радиоактивных газов в другие группы не происходит (FG,W,S(1,L)) = 0;
* возможное образование органических соединений йода (первая группа) в результате химических реакций в газовой среде соединений йода первой и второй группы учитывается с помощью введения доли йодистого метила (первая группа).

##### Газовая среда

Как следует из таблицы 8.1 скорость перехода радионуклидов в газовой среде (FG(I,L)) из одной группы в другую не учитывается, т.е. принимается равной нулю. Таким образом, в расчетах последствий проектных аварий считается, что в газовой среде не происходит никаких физико-химических реакций приводящих к изменению свойств веществ.

##### Жидкая среда

Переход радионуклидов органических соединений йода (1-я группа) в группу неорганических соединений (2-я группа) осуществляется за счет реакций гидролиза и других реакций с химическими добавками в воде. В этом случае, FW(1,2) равно сумме констант скоростей реакций первого и псевдопервого порядка.

Значения некоторых констант скоростей для различных условий приведены в Приложении В.

Образование нерастворимых и нелетучих соединений йода (3-я группа) за счет химических реакций с соответствующими добавками как органических, так и неорганических соединений можно учесть с помощью констант скоростей реакций первого и псевдопервого порядка. Следовательно,

FW(1,3) равно сумме констант скоростей реакций первого и псевдопервого порядка,

FW(2,3) равно сумме констант скоростей реакций первого и псевдопервого порядка.

В настоящее время нет достаточно надежных сведений по химическим реакциям неорганических соединений йода (2-я группа), осевшего на аэрозольных частицах, с образованием органических соединений, которые могли бы быть использованы для проектных расчетов. Есть лишь косвенные сведения, что такие реакции возможны. Поэтому, в дальнейшем этот переход не учитывается, а значения FW(2,1) и FW(3,1) принимаются равными нулю. (FW(2,1) = FW(3,1) = 0). Аналогично принимается, что и FW(1,3) = FW(2,3) = FW(3,2) = 0.

##### Поверхности

Принято, что радионуклиды первой группы не осаждаются на поверхности. Отсюда, FS(1,2) = FS(1,3) = 0.

При взаимодействии соединений второй группы с химическими соединениями на поверхностях могут образовываться органические соединения (1-я группа). Аналогичные реакции могут иметь место для радионуклидов 3-ей группы. Эксперименты показывают [66], что при десорбции йода с поверхностей часть его соединений находится в «летучей», скорее всего в органической форме (1-я группа), а часть в виде хорошо улавливаемых соединений (скорее всего, неорганических, т.е. 2-й группы). Поскольку эти процессы в достаточной степени не изучены, то учет перехода радионуклидов 2-й и 3-й группы в 1-ую и 2-ую группу учитывается с помощью коэффициентов при функционале перехода с поверхности в газовую среду, полученных экспериментально.

#### Переход радионуклидов различных групп из жидкой среды в газовую (Fk(W,G))

##### Соединения первой и второй группы

При описании процессов перехода соединений первой и второй группы из жидкой среды в газовую среду, предполагается, что процесс растворения газов и газообразных веществ является обратимым. Поэтому, при превышении отношения концентрации химических веществ в жидкости к соответствующей концентрации в газе некоторого предела (NWK(t)/NGK(t) = HK(t)) происходит обратное поступление соединений из жидкой среды в газовую. Например, при работе спринклерной системы раствор, поступающий в газовую среду помещения в виде капель, имеет некоторую начальную концентрацию (NWKо(t)/V(W) = A0). В процессе падения капля раствора поглощает (или отдает) некоторое количество соединений k**-**ой группы и средняя концентрация в капле становится равной Аm. Если обозначить равновесную концентрацию (когда NWK(t)/NGK(t) = HK(t)) через Аеq, то соотношение, определяющее направление процесса массопереноса будет иметь вид: (Аm – А0)/(Аеq – А0). Из соотношения видно, что если начальная концентрация в растворе меньше произведения концентрации в газовой среде на коэффициент распределения (NGK(t) HK(t)), то массопередача направлена внутрь капли; если они равны, то массоперенос не происходит; если больше, то идет массоперенос из капли, т.е. из жидкой среды в газовую.

Принимается, что массоперенос симметричен, т.е. скорость массопереноса одинакова вне зависимости от направления переноса. С учетом этого предположения функционал, описывающий перенос радионуклидов первой и второй группы, будет иметь следующий вид:

— для спринклерной системы и водоэжекционных охладителей значение Fi(G,W) может быть рассчитано по формуле (1);

— для барботажа, значение Fi(G,W) может быть рассчитано по формуле (8.5).

Значения параметров Fi(t) и Нi(t) могут быть рассчитаны по соотношениям, приведенным в приложениях А и Б в соответствующих разделах.

##### Третья группа

При проектных авариях выход аэрозолей из жидкой среды в основном определяется образованием мелкодисперсной влаги при работе водоразбрызгивающих систем (спринклерной системы и водоэжекционных охладителей). Все используемые для водоразбрызгивающих систем форсунки имеют определенное распределение капель по размерам. Тогда левый край этого распределения может быть использован для оценки количества мелкодисперсной влаги, образующейся при работе систем. В качестве минимального размера выбирается минимальный размер капель для используемой форсунки. В качестве правой границы распределения мелкодисперсных капель может быть выбран размер, при котором капля может находиться в стабильной паро-воздушной среде заданное время, например, 30 мин. По известным границам и форме распределения может быть легко найдено количество мелкодисперсной влаги, образующейся при работе системы. Практически все форсунки для водоразбрызгивающих систем имеют логнормальное распределение капель по размерам.

#### Переход радионуклидов различных групп из жидкой среды на поверхности (Fi(W,S)) и с поверхностей в жидкую среду (Fi(S,W))

В настоящее время нет достаточно надежных экспериментальных данных о процессах осаждения различных групп соединений на поверхности из водного раствора, поведения этих соединений на поверхностях и выхода с поверхностей в жидкую среду. Поэтому эти процессы не учитываются, т.е. принимается, что Fi(W,S) = Fi(S,W) = 0.

#### Переход радионуклидов различных групп с поверхностей в газовую среду (Fi(S,G))

Процесс десорбции с поверхностей является сложным, меняющимся во времени процессом. В Приложении Г дан краткий анализ некоторых экспериментальных исследований по десорбции и обоснование предлагаемого способа математического моделирования этого процесса. Переход радионуклидов йода с поверхностей в газовую среду предлагается учитывать с помощью постоянного коэффициента, который независит от времени, температуры и концентрации на поверхности, и равен 10–7 1/с.

При этом считается, что половина десорбированного йода находится в молекулярной форме (вторая группа), а половина в органической форме (первая группа). Таким образом: F1(S,G) = 10–8, 1/c, а F2(S,G) = 10–8, 1/c.

Описанные выше функционалы используются для составления системы дифференциальных уравнений переноса, решив которую, можно определить концентрации продуктов деления в средах для каждой группы, а также утечку продуктов деления в окружающую среду.

Для решения задачи (8.1), для кода СОКРАТ/В3 был разработан модуль CONTFP**.** Этот модуль позволяет рассчитывать величины, необходимые для оценки радиационных последствий проектных аварий с выходом продуктов деления, а именно: содержание радионуклидов в различных формах в объемах системы локализации аварий, выброс радионуклидов в окружающую среду и дозы для наихудших условий выброса на заданном расстоянии от аварийного блока.

#### Модели осаждения аэрозолей в ЗО за счет термофореза, гравитации и броуновской диффузии

##### Уравнение движения аэрозольных частиц

Уравнение движения твердой или жидкой аэрозольной частицы представляется в виде

|  |  |
| --- | --- |
| , | (8.37) |
| . | (8.38) |

Здесь:

 — время, с,

 — скорость частицы, м/с,

 — скорость несущей парогазовой среды, м/с,

 — время динамической релаксации частицы, с,

 — ускорение силы тяжести, = 9,8 м/с2,

 и  — плотности материала частиц и несущей среды, кг/м3.

Параметр  характеризует отношение плотностей материала частиц и несущей среды,

 — коэффициент присоединенной массы.

Символ  обозначает субстанциональную производную, т.е.

|  |  |
| --- | --- |
| . |  |

Первый член в правой части уравнения (8.37) описывает силу гидродинамического сопротивления. Второй член учитывает силу тяжести. Третий член обусловлен эффектами вытесненной и присоединенной масс и проявляется благодаря конвекции несущего потока. Четвертый член  обозначает так называемую подъемную силу, индуцированную градиентом скорости несущего потока. Пятый член обозначает силу термофореза , возникающую при движении частицы в неизотермической среде. Последний член определяет случайную броуновскую силу .

Следует отметить, что плотность аэрозольных частиц, как правило, намного больше плотности окружающей парогазовой среды (ρp >> ρf, ). В этом случае эффекты, обусловленные вытесненной массой (силой Архимеда), присоединенной массой и «памятью» (силой Бассэ) не играют существенной роли. Поэтому уравнение (8.37) записано без учета силы Бассэ, однако эффекты вытесненной и присоединенной масс учитываются, поскольку их введение не усложняет проводимый ниже анализ. При рассмотрении движения частиц в турбулентной среде также предполагается, что их размер не превышает пространственный колмогоровский микромасштаб. Это условие необходимо, чтобы уравнение движения для частиц могло быть представлено в приближении точечных сил, приложенных к их центрам масс. Эффекты, связанные с вращением частиц и существенные при анализе движения относительно крупных частиц могут не учитываться.

Для описания осаждения аэрозолей часто пользуются не только понятием скорости осаждения частиц, *V*p (м/с), но и константой осаждения частиц, Rτ (1/с), которая характеризует относительное изменение концентрации аэрозолей за единицу времени:

|  |  |
| --- | --- |
| , |  |

где *A*S— площадь поверхности осаждения, м2,

Ω — объем помещения, м3.

Заметим, что если единица измерения не приведена, то по умолчанию используется система единиц СИ.

##### Время релаксации аэрозольной частицы

Время динамической релаксации небольшой аэрозольной частицы определяется соотношением

|  |  |
| --- | --- |
| , , | (8.39) |

где:

 — время релаксации при стоксовом обтекании частицы (), с,

 — диаметр частицы, м,

 — коэффициент кинематической вязкости несущей парогазовой среды, м2/с,

 — число Кнудсена,

 — длина свободного пробега молекул в окружающей парогазовой среде,

 — число Рейнольдса обтекания частицы.

Поправка  учитывает эффект присоединенной массы. Коэффициент присоединенной массы  для сферических частиц равняется 0,5.

Зависимость , называемая поправкой Каннингема−Милликена, описывает влияние разреженности окружающей частицу среды на силу гидродинамического сопротивления и представляется в виде

|  |  |
| --- | --- |
| . | (8.40) |

В литературе известны различные варианты для констант в (8.40). Наиболее часто используются следующие значения: ; ;  и ; ; . Отметим, что поправка Каннингема−Милликена является весьма существенной не только для субмикронных, но и для микронных аэрозолей. Так для =1 *мкм* в воздухе при нормальных условиях, когда длина свободного пробега молекул равняется 0,07 *мкм*, Kn=0,14 и первый и второй наборы констант в (8.40) дают =1,176 и =1,168, соответственно. Влияние поправки (8.40) становится малозаметным только на верхней границе размеров рассматриваемых аэрозольных частиц, когда для =20 *мкм* (=0,007) и влияние поправки (8.40) составляет меньше одного процента. Таким образом, поправку  в (8.39) следует учитывать практически во всем диапазоне изменения размеров рассматриваемых в отчете аэрозолей.

Для мелкодисперсных аэрозолей (), обтекание которых происходит в свободномолекулярном режиме, выражение (8.40) переходит в

|  |  |
| --- | --- |
| . | (8.41) |

Из (8.39) с учетом (8.41) следует, что время релаксации аэрозолей при  равно

|  |  |
| --- | --- |
| . | (8.42) |

Как видно из (8.42), время релаксации мелкодисперсных аэрозольных частиц пропорционально их размеру, в отличие от относительно крупных частиц, обтекание которых происходит в континуальном стоксовом режиме, а время релаксации пропорционально диаметру частицы.

Зависимость  в (8.39) характеризует влияние сил инерции на гидродинамическое сопротивление частицы. Для определения этой зависимости в литературе предложено большое количество формул, аппроксимирующих стандартную кривую сопротивления для сферической частицы. Наибольшее распространение получила аппроксимация Шиллера−Неймана:

|  |  |
| --- | --- |
|  | (8.43) |

Однако легко показать, что даже на верней границе размеров рассматриваемых аэрозольных частиц, влияние поправки (8.43) не существенно. Для оценки  в (8.43) относительную скорость между частицей и несущей средой положим равной скорости седиментации за счет силы тяжести при стоксовом обтекании ≈, где = 9,8 *м/с*2. Тогда ≈, и при нормальных условиях в воздухе для  = 103 и  = 20 *мкм* получаем ≈ 0,02 и  = 1,01. Таким образом, поправка  в (8.39) даже для наиболее крупных аэрозольных частиц не превышает одного процента и, следовательно, в отличие от поправки  может не приниматься во внимание во всем интересующем нас диапазоне изменения размеров аэрозолей. Отметим, что неучет поправки  облегчает проведение расчетов, т.к. позволяет избежать итерационной процедуры при определении времени релаксации .

##### Броуновское движение

Броуновская случайная сила может моделироваться -коррелированным во времени гауссовым процессом, т.е. представляться в виде так называемого белого шума. Первый и второй корреляционный моменты броуновской случайной силы удовлетворяют соотношениям

|  |  |
| --- | --- |
| ,  . | (8.44) |

Первое соотношение в (8.44) выражает тот факт, что осредненная броуновская сила равна нулю. Второе соотношение определяет корреляционный момент броуновской силы через коэффициент броуновской диффузии  и, кроме того, указывает, что броуновская сила является изотропной. Коэффициент броуновской диффузии равен

|  |  |
| --- | --- |
|  | (8.45) |

где

 — постоянная Больцмана, *kB* = 1,3805∙10–23 Дж/град,

 — объем частицы, м3,

 — осредненная температура окружающей среды, К,

 — коэффициент динамической вязкости несущей парогазовой среды, кг/(м∙с).

Отметим, что вследствие разных масштабов турбулентного и броуновского движений эти процессы можно считать статистически независимыми; поэтому при турбулентном движении среды в (8.45) входит осредненная температура потока.

Как видно из (8.45) с учетом (8.40), коэффициент броуновской диффузии уменьшается с ростом размера частиц, причем  при свободномолекулярном режиме () и  при континуальном стоксовом режиме обтекания ().

##### Гравитационное осаждение аэрозолей (седиментация)

Наиболее известным явлением выведения аэрозолей из атмосферы канала или помещения является седиментация — осаждение аэрозолей за счет сил тяжести. Скорость гравитационного осаждения, *V*G зависит главным образом от силы сопротивления движению аэрозольной частицы и определяется выражением

|  |  |
| --- | --- |
| , | (8.46) |

где

*g* — ускорение силы тяжести,

*κ* — коэффициент захвата частиц поверхностью, равный отношению потока осевших на поверхность частиц к полному потоку осаждения (предполагается, что *κ* = 1),

*φ* — угол между направлением силы тяжести и нормалью к поверхности,

выражение для величины А приведено в (8.38).

Скорость гравитационного осаждения, VG (м/с), записывается через скорость Стокса следующим образом:

,

— скорость Стокса,

 — поправочный коэффициент,

***Cn*** — параметр Каннингема для аэрозоля.

|  |  |
| --- | --- |
| , | (8.47) |

где

*rp* — радиус частицы, м,

χ — поправочный коэффициент на форму аэрозоля, в нашем случае (шар) равен 1.

Параметр Каннингема для аэрозоля запишем в виде:

|  |  |
| --- | --- |
| . | (8.48) |

Число Кнудсена равно:

|  |  |
| --- | --- |
| , | (8.49) |

λf — длина свободного пробега в среде, вычисляется по формуле:

|  |  |
| --- | --- |
| , | (8.50) |

где

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
| *T*f | температура среды | К |
| *R* | универсальная газовая постоянная | *R* = 8,3145 Дж/моль/К |
| *M*i | молярная масса i-го газа | кг/моль |
| *x*i | молярная концентрация i-го газа | - |

Для поправочного коэффициента *f*St используется формула:

|  |  |
| --- | --- |
| . | (8.51) |

Значения *f*St в промежутке между 0,01 и 29500 вычисляются через двойную логарифмическую интерполяцию.

Число Рейнольса для аэрозоля вычисляется по формуле:

|  |  |
| --- | --- |
| , | (8.52) |

где

γ — поправочный коэффициент на форму частицы, учитываемый при коагуляции, в нашем случае, для шара, γ = 1.

##### Осаждение аэрозолей за счет термофореза

Для вычисления скорости осаждения аэрозолей за счет термодиффузии, VTH (м/с), используется формула Тэлбота.

|  |  |
| --- | --- |
| , для , | (8.53) |

где:

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
|  | градиент температуры потока около поверхности | К/м |
|  | коэффициент кинематической вязкости несущей парогазовой среды | м2/с |
| *kf* | теплопроводность несущей парогазовой среды | Вт/м/К |
| *kp* | теплопроводность частицы | Вт/м/К |
| Cn | параметр Каннингема | - |
| Kn | число Кнудсена | - |
| Cm | Cm = 1,14 | - |
| CS | CS = 1,17 | - |
| Ct | Ct = 2,18 | - |

Основной трудностью при моделировании осаждения аэрозолей за счет термофореза в ЗО является вычисление градиент температуры потока около поверхности. Поскольку размеры ячеек, на которые разбивается ЗО, достаточно велики. Поэтому для вычисления градиента температуры потока около поверхности используется формула:

|  |  |
| --- | --- |
| , | (8.54) |

где

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
| TW | температура поверхности | К |
| Tf | температура несущей парогазовой среды | К |
| K | коэффициент теплоотдачи на поверхности | Вт/м2/К |
| λ | коэффициент теплопроводности несущей парогазовой среды | Вт/м/К |

##### Осаждение аэрозолей за счет броуновской диффузии

Для моделирования осаждения аэрозолей за счет броуновской диффузии будем использовать формулу:

|  |  |
| --- | --- |
| , | (8.55) |

где:

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
| α | поправочный коэффициент на плотность аэрозолей | α = 1 |
| rp | радиус частиц | м |
| а | постоянный коэффициент Каннингема | a = 1,37 |
| λ | средняя длина свободного пробега в объеме | м |
| kB | константа Больцмана | *kB* = 1,3805∙10–23 Дж/К |
| T | температура газа | К |
| *Δe* | толщина пограничного слоя для броуновской диффузии | *Δe* = 10–4 м |
| μ | коэффициент динамической вязкости газа | кг/(м∙с) |
| *χ* | аэродинамический коэффициент формы аэрозолей | χ = 1 |

### Пример построения уравнений для системы локализации аварии, состоящей из двух помещений и барботера

Рассмотрим систему локализации аварии, состоящую из помещения, в которое происходит истечение теплоносителя, бассейна-барботера и помещения ловушек, куда передавливается через барботер паро-воздушная среда в процессе аварии. Работает спринклерная система, забор воды для которой производится из бассейна-барботера. Задача состоит в определении содержания радиоактивных продуктов (в этой задаче рассмотрим соединения радиоактивных изотопов йода) в помещениях системы локализации аварии в различных формах, в воде бассейна-барботера и утечку их в окружающую среду.

Для выполнения поставленной задачи необходимо решить систему из 13 дифференциальных уравнений. Она включает в себя по четыре уравнения для каждого помещения, два уравнения для утечки разных форм радиоактивного йода, являющихся представителями трех групп соединений по нашей классификации. Исходя из построения общей системы уравнений для одного помещения (см. раздел 8.1) и учитывая методики расчета функционалов и коэффициентов, входящих в функционалы, приведенных в разделах 8.1, 8.2 и в Приложениях А, Б, В, Г, получим следующую систему дифференциальных уравнений:









где i = 1,2











где:

, ,  —количество радиоактивного йода в каждой из трех форм в *i*-ом помещении системы локализации аварии, Бк.

,  — количество радиоактивного йода в виде **I2** и **CH3I** соответственно в объеме воды, Бк;

, ,  — количество йода в каждой из форм, вышедшего в атмосферу вне АЭС к моменту времени **t**, Бк;

 — постоянная распада, 1/с;

,  — коэффициент осаждения йода для элементарной и аэрозольной форм в *i*-ом помещении, 1/с;

, , , — начальные коэффициенты удаления разных форм радиоактивного йода водоразбрызгивающими системами, 1/с;

 — коэффициент утечки паро-воздушной среды из *i*-го помещения системы локализации аварии через неплотности в окружающую среду, 1/с;

 — расход паро-воздушной среды из *i*-го помещения через вентиляционную трубку, м3/с;

 —объем *i*-го помещения системы локализации аварии, м3;

 — коэффициенты перетечек паро-воздушной среды из *i*-го в *j*-ое помещение системы локализации аварии, 1/с;

,  — коэффициенты перехода I2 и СН3I из воды в паро-воздушную среду *i*-го помещения системы локализации аварии при работе водоразбрызгивающих систем, 1/с;

,  — количество активности в объеме воды из которого она подается в *i*-ое помещение, Бк;

,  — коэффициенты десорбции радиоактивного йода в формах **I2** и **СН3I** соответственно, 1/с;

 — расход течки теплоносителя в *i*-ое помещение, м3/с;

 — удельная активность теплоносителя, Бк/м3;

, , , ,  — коэффициенты выхода разных форм радиоактивного йода в атмосферу  *i*-го помещения и в воду  объема, безразмерные,

++++ = 1;

 — коэффициент дробления капель (перехода их в разряд аэрозолей), безразмерный;

 = 1, если вода поступает в виде капель в *i*-ое помещение;

 = 0 , в других случаях;

 — объем воды, м3;

 — расход паро-воздушной среды через барботер из *m*-го помещения в объем воды, м3/с

,  — равновесные коэффициенты распределения элементарного йода и йодистого метила соответственно между водой и воздухом, безразмерные;

 = 1, если вода после барботажа поступает в *i*-ое помещение;

 = 0, в других случаях;

 — коэффициент очистки воды на ионообменных фильтрах, 1/с;

 — коэффициент проскока аэрозолей при барботаже.

### Описание модуля CONTFP

Модуль CONTFP состоит из подпрограммы считывания входных данных необходимых для расчета RAC\_INIT и управляющей подпрограммы RAC\_08, которая: инициализирует данные, необходимые для расчета на текущем глобальном шаге комплекса, организует интерфейс с РК СОКРАТ/В3 для получения из него необходимых входных данных; организует необходимые массивы и управляющие параметры, используемые в расчетах и вызывает необходимые подпрограммы. Далее модуль организует главный временной цикл расчета. В этом цикле на каждом временном шаге решается система балансных обыкновенных дифференциальных уравнений, размерность которой равна KV⋅9, где KV — число объемов в схеме расчета при моделировании переноса ПД в системе локализации аварии (СЛА), записываются данные расчета в выходные файлы. По окончании главного временного цикла СОКРАТ/В3 рассчитываются максимальные дозы облучения населения при наихудших с точки зрения радиационной безопасности.

#### Блок-схема подпрограммы RAC\_08

На рисунке 8.1 представлена блок-схема подпрограммы RAC\_08. Подпрограмма RAC\_08 инициализирует данные, необходимые для расчета. Если нет данных по перетечкам среды между помещениями, она насчитывает необходимые массивы с использованием подпрограмм COPR и Q. Далее она готовит данные по свойствам технологических сред и рассматриваемых форм йода в контейнменте. Затем организуются два цикла расчета по изотопам данной группы продуктов деления (внутренний) и собственно по группам продуктов деления, рассматриваемым в расчете. Каждый раз считываются источники, наработанные РК СОКРАТ/В3, и рассчитываются коэффициенты для решения системы транспортных уравнений для каждого изотопа из каждой группе продуктов деления, рассматриваемого в расчете с использованием подпрограммCOEFF и RIGHTY. После этого решается система транспортных уравнений 4-го порядка методом Рунге–Кутта для каждого изотопа. Заканчивается каждый цикл формированием массивов результатов расчета по количествам ПД в анализируемых формах в каждом помещении, в каждой водном объеме, на поверхностях стен и оборудования и утечки каждой составляющей в окружающую среду и выдачей необходимых данных в выходные файлы. Расчет по модулю CONTFP прекращается прекращается при достижении времени окончания расчета по РК СОКРАТ/B3. В этот момент рассчитываются дозы внешнего облучения от облака, от поверхности земли и ингаляционная доза на щитовидную железу ребенка в точках их максимальных значений с определением расстояний от аварийного блока до этих точек. Для расчета доз используются подпрограммы-функции P0F, OINT и FU.

**RAC\_08**

**RAC\_INIT**

**CORP**

**Q**

**COEFF**

**RIGHTY**

**CORP**

**Q**

**T>Tрасчета**

**ДА**

**POF**

**OINT**

**FU**

**СОКРАТ**

Рисунок . – Блок-схема подпрограммы RAC\_08

#### Подпрограммы и функции

В этом разделе описываются подпрограммы кода RAC\_08 в порядке их вызова основной программой.

##### Подпрограмма COPR(L,J,VG,CAPPA,XK,R)

Вызывается основной программой.

Производит расчет показателя адиабаты паровоздушной среды, газовой постоянной паровоздушной среды и коэффициента утечки для расчета перетечек между помещениями и утечки в окружающую среду.

Список формальных параметров подпрограммы:

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
| L | номер помещения в схеме расчета, | безразм. |
| J | номер временного шага, | безразм. |
| VG | объем помещения, | cм3 |
| CAPPA | показатель адиабаты паровоздушной среды, | безразм. |
| XK | коэффициент утечки, | безразм. |
| R | газовая постоянная паровоздушной среды. | Дж/кг К |

##### Функция Q(PEE,CAPPA)

Подпрограмма-функция рассчитывает газодинамическую функцию для безразмерной плотности тока.

Список формальных параметров подпрограммы:

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
| PEE | отношение давлений в помещениях, между которыми происходит перетечка, | безразм. |
| CAPPA | показатель адиабаты паровоздушной среды. | безразм. |

##### Подпрограмма COEFF(TIME)

Производит расчет коэффициентов для решения системы уравнений (8.1) из методики [67]. Основной входной параметр — время. Остальные входные и выходные переменные передаются через COMMON блоки.

Вызывается основной программой.

Входные переменные:

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
| KV | число моделируемых помещений СЛА, | безразм. |
| VG | массив объемов помещений СЛА, | cм3 |
| VL | массив объемов воды в помещениях СЛА, | cм3 |
| S | массив площадей внутренних поверхностей помещений СЛА, | cм2 |
| OL | массив расходов воды на спринклерную систему в помещениях СЛА, | cм3/c |
| GOCH | массив расходов воды на очистку от летучих соединений из приямков помещениях СЛА, | cм3/c |
| H | массив высот падения капель спринклерной системы в помещениях СЛА, | см |
| VEL0 | массив скоростей падения капель спринклерной системы в помещениях СЛА, | см/с |
| D | массив диаметров капель спринклерной системы в помещениях СЛА, | см |
| OKDE | массив коэффициентов десорбции йода с поверхностей помещений СЛА в форме элементарного йода, | с–1 |
| OKDM | массив коэффициентов десорбции йода с поверхностей помещений СЛА в форме метилйодида, | с–1 |
| PD(j,k) | массив давлений в помещениях СЛА на j-м временном шаге, | ата |
| TT(j,k) | массив температур в помещениях СЛА на j-м временном шаге, | К |
| TSP(j,k) | массив температур спринклерной воды в помещениях СЛА на j-м временном шаге, | К |
| RHO | массив плотностей среды в помещениях СЛА, | г/см3 |
| RHOA | массив плотностей воздушной составляющей среды в помещениях СЛА, | г/см3 |
| RHOW | массив плотностей паровой составляющей среды в помещениях СЛА, | г/см3 |
| RHOV | массив плотностей мелкодисперсной влаги в помещениях СЛА, | г/см3 |
| GVEN | массив расходов среды из помещений СЛА на систему вентиляции, | г/с |
| GYT(j,k) | массив расходов среды на утечку из помещений СЛА в окружающую среду на j-м временном шаге, | с–1 |
| XY | массив коэффициентов дробления капель спринклерной системы в помещениях СЛА (массовая доля разбрызгиваемой воды, переходящая в разряд аэрозолей), | безразм. |
| G(k,l) | массив расходов среды из помещения k в помещение l СЛА, | с–1 |
| GAB(j,k,l) | массив расходов воздуха из помещения k в помещение l СЛА через барботер на j-м временном шаге, | г/с |
| GB(j,k,l) | массив расходов среды из помещения k в помещение l СЛА через барботер на j-м временном шаге, | г/с |
| OLW(k,l) | массив расходов воды между помещениями СЛА k и l, | г/с |
| KB(k,l) | массив признаков перетечек между помещениями k и l через барботер, (1 — есть барботер, 0 — нет), | безразм. |
| KS(k,l) | массив признаков поступления спринклерной воды из приямка k-го помещения в объем l-го помещения, (1 — есть поступление, 0 — нет), | безразм. |
| LB(k,l) | массив признаков поступления летучих соединений через барботер из приямка k-го помещения в объем l-го помещения в объем (l — есть поступление, 0 — нет), | безразм. |
| LS(k,l) | массив признаков поступления летучих соединений из спринклерной воды из приямка k-го помещения в объем l-го помещения, (1 — есть поступление, 0 — нет), | безразм. |
| EVENE | эффективность очистки среды от элементарного йода на фильтрах системы вентиляции, | безразм. |
| EVENM | эффективность очистки среды от метилйодида на фильтрах системы вентиляции, | безразм. |
| EVENA | эффективность очистки среды от аэрозолей на фильтрах системы вентиляции, | безразм. |
| DA | средний диаметр аэрозолей, | см |
| EOCHE | эффективность очистки воды от элементарного йода на ионообменных фильтрах системы очистки воды, | безразм. |
| EOCHM | эффективность очистки воды от метилйодида на ионообменных фильтрах системы очистки воды, | безразм. |
| TIMSPR | время начала работы спринклерной системы, | с |
| TIMSPE | время окончания работы спринклерной системы, | с |
| DTBP | текущий шаг по времени, | с |
| IFORM | признак наличия летучих форм у анализируемого радионуклида, | безразм. |
| ALAM | массив постоянных распада радионуклидов, участвующих в расчете. | с–1 |

Выходные переменные:

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
| YHODE(3\*KV) | суммарная постоянная выведения элементарного йода с носителей каждого помещения СЛА (атмосфера, вода, поверхности) за счет всех процессов на текущем временном шаге, | с–1 |
| YHODM(2\*KV) | суммарная постоянная выведения метил йодида с носителей каждого помещения СЛА (атмосфера, вода) за счет всех процессов на текущем временном шаге, | с–1 |
| YHODA(3\*KV) | суммарная постоянная выведения аэрозолей из атмосферы каждого помещения СЛА (атмосфера, вода, поверхности) за счет всех процессов на текущем временном шаге, | с–1 |
| RASPRE(KV) | коэффициент выхода элементарного йода из воды в «чистую» атмосферу помещений из капель спринклерной воды в соответствии с коэффициентом распределения по закону Генри, | с–1 |
| RASPRM(KV) | коэффициент выхода метил йодида из воды в «чистую» атмосферу помещений из капель спринклерной воды в соответствии с коэффициентом распределения по закону Генри, | с–1 |
| AMSA(KV) | коэффициент выведения аэрозолей из атмосферы помещений спринклерной системой, | с–1 |
| AMSE(KV) | коэффициент выведения элементарного йода из атмосферы помещений спринклерной системой «чистой» водой (начальный коэффициент выведения), | с–1 |
| AMSM(KV) | коэффициент выведения метил йодида из атмосферы помещений спринклерной системой «чистой» водой (начальный коэффициент выведения), | с–1 |
| AMOA(KV) | коэффициент осаждения аэрозолей на поверхности помещений, | с–1 |
| AMOE(KV) | коэффициент осаждения элементарного йода на поверхности помещений, | с–1 |
| AMOEA(KV) | коэффициент осаждения элементарного йода на аэрозолях, | с–1 |
| HE(KV) | коэффициент распределения элементарного йода между водой и атмосферой помещения в соответствии с законом Генри, | безразм. |
| HM(KV) | коэффициент распределения метил йодида между водой и атмосферой помещения в соответствии с законом Генри, | безразм. |
| KL(KV) | массив номеров помещений из которых происходит поступление летучих соединений через барботер в объем данного помещения, | безразм. |
| KL(KV) | массив номеров помещений из воды которых происходит поступление летучих соединений через спринклерную воду в объем данного помещения. | безразм. |

##### Подпрограмма RIGHTY (EE, EM, VG, VL, HE, HM, P, T, H, VEL0, D, RHO, RHOW, RHOA,TSP,S,TIME)

Подпрограмма расчета улавливающих характеристик спринклерной системы по отношению к летучим соединениям йода. Вызывается подпрограммой COEFF.

Список формальных параметров подпрограммы:

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
| EE | эффективность улавливания элементарного йода каплями спринклерной системы, | безразм. |
| EM | эффективность улавливания метил йодида каплями спринклерной системы, | безразм. |
| VG | объем помещения, | см3 |
| VL | объем воды в помещении, | см3 |
| HE | коэффициент распределения элементарного йода между водой и атмосферой помещения в соответствии с законом Генри, | безразм. |
| HM | коэффициент распределения метил йодида между водой и атмосферой помещения в соответствии с законом Генри, | безразм. |
| P | давление в помещении, | ата |
| T | температура в помещении, | К |
| H | высота падения капель спринклерной системы в помещении, | см |
| VEL0 | скорость падения капель спринклерной системы в помещении, | см/с |
| D | диаметр капель спринклерной системы в помещении, | см |
| RHO | плотность среды в помещении, | г/см3 |
| RHOW | плотность пара в помещении, | г/см3 |
| RHOA | плотность воздуха в помещении, | г/см3 |
| TSP | температура спринклерной воды в помещении, | К |
| S | площадь поверхностей осаждения в помещении, | см2 |
| TIME | текущее время. |  |

##### Подпрограмма MERSON(X,XK,Y,N,EPS,H,HM,EXTERN)

Подпрограмма решения системы обыкновенных дифференциальных уравнений методом Рунге–Кутта 4 порядка.

Вызывается основной программой.

Список формальных параметров подпрограммы:

|  |  |
| --- | --- |
| X | начальная точка интервала интегрирования, |
| XK | начальная точка интервала интегрирования, |
| Y(N) | массив интегралов, |
| N | число уравнений в системе, |
| EPS | относительная точность решения системы уравнений, |
| H | начальный шаг интегрирования, |
| HM | минимальный шаг интегрирования, |
| EXTERN | подпрограмма расчета правых частей системы уравнений. |

##### Подпрограмма EXTERN (X,Y,F)

Подпрограмма расчета правых частей системы уравнений.

Вызывается подпрограммой MERSON.

Список формальных параметров подпрограммы:

|  |  |
| --- | --- |
| X | аргумент, по которому проводится интегрирование, |
| Y(N) | массив интегралов, |
| F(N) | массив правых частей системы уравнений. |

##### Функция P0F(X,WIND,I,B)

Подпрограмма-функция расчета коэффициента разбавления, необходимого для оценки переноса примесей в атмосфере окружающей среды при при вычислениях доз на местности.

Вызывается основной программой.

Список формальных параметров подпрограммы:

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
| X | расстояние от источника выброса примеси в атмосферу, | м |
| WIND | скорость ветра, | м/c |
| I | номер изотопа данного элемента, | безразм. |
| B | высота выброса. | м |

##### Функция OINT(X,X0,XE,H,I,B,WIND,EINT)

Подпрограмма-функция расчета интеграла разбавления, необходимого для расчета коэффициента разбавления.

Вызывается подпрограммой-функцией P0F.

Список формальных параметров подпрограммы:

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
| X | расстояние от источника выброса примеси в атмосферу, | м |
| X0 | начальное расстояние от источника выброса примеси в атмосферу при расчете интеграла разбавления, | м |
| XE | конечное расстояние от источника выброса примеси в атмосферу при расчете интеграла разбавления, | м |
| H | шаг интегрирования, | м |
| I | номер изотопа данного элемента, | безразм. |
| B | высота выброса, | м |
| WIND | скорость ветра, | м/с |
| EINT | интегрируемая функция. | м |

##### Функция FU(IZ0,X)

Подпрограмма-функция расчета функции истощения источника.

Вызывается подпрограммой-функцией OINT.

Список формальных параметров подпрограммы:

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
| IZ0 | количество летучих форм у данного элемента, | безразм. |
| X | расстояние от источника выброса примеси в атмосферу. | м |

#### Интерфейс между модулем CONTFP и РК СОКРАТ/В3

Для моделирования теплогидравлических процессов внутри ЗО в РК СОКРАТ/В3 используются модули КУПОЛ (аттестационный № 199 от 23.06.2005 г) и АНГАР [150] (аттестационный № 296 от 29.09.2011 г). Для моделирования поведения летучих форм йода и других радиоактивных ПД в помещениях и водных растворах в ЗО при авариях на реакторном блоке и оценки радиационных последствий аварий на местности в РК СОКРАТ/В3 служит модуль CONTFP. В данном разделе представлен интерфейс между модулями CONTFP и АНГАР в РК СОКРАТ/В3.

В массиве CONT\_FP\_RATE, передаваемом из модуля ПРОФИТ находятся данные по источникам нуклидов. В модуле CONTFP они преобразуются в удобный для обработки массив CONT\_FP\_RAT в соответствии с анализируемыми изотопами.

Соответствие имен массивов в модулях CONTFP и АНГАР дано в таблице 8.2.

Таблица . – Соответствие имен массивов в модулях CONTFP и АНГАР

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
| Идентификатор в CONTFP | Идентификатор в АНГАР | Описание |
| VG | VOLZ | Объемы помещений |
| S | sum\_surf | Площади поверхностей внутри помещений |
| FP | SURCON | Площади поперечных сечений отверстий, соединяющих помещенияю |
| AMW | FMIZ | Масса пара в CONTFP, доля пара в АНГАР. |
| AMA | CMZZ | Масса неконденсируемых газов в CONTFP, масса паровоздушной среды в помещениях АНГАР. |
| PD | PGZN | Давление внутри помещений. |
| TT | TMZN | Температура внутри помещений |
| PH | PPDZ | Давление насыщенного пара внутри помещений. |
| GYT | sum\_vol\_flow | Коэффициент утечки среды из помещения в окружающую среду в CONTFP, объемы среды, вышедшие из помещений в окружающую среду за глобальный временной шаг СОКРАТ/В3 в АНГАР (последнее помещение в АНГАР — окружающая среда). |
| GLPR | sum\_vol\_flow | Коэффициенты перетечки среды между помещениями в CONTFP, объемы среды, вышедшие из одного помещения в другое за глобальный временной шаг СОКРАТ/В3 (последнее помещение в АНГАР — окружающая среда). |

1. Методика расчета распространения радиоактивных продуктов на АЭС при авариях (применительно к количественному анализу безопасности). Казаков В.А., Скачков В.С., Ткаченко А.В., Федулов В.Ф., отчет ВТИ, арх. N 11171, 1978.
2. Reactor Safety Study WASH-1400, NUREG 75/014, October, 1975 Appendix VII.
3. Антропов В.Н., Федулов В.Ф., В.Д. Степнов, А.В. Ткаченко и др. Отчет о НИР. Расчетное обоснование выполнения критериев радиационной безопасности окружающей среды при проектных и запроектных авариях с обрывом главного циркуляционного трубопровода Ду-850 для АЭС с ВВЭР-1000 (проект АЭС-91 для третьих стран). Договор N 25/Д-92/94-361 с ЛИАЭП. Инв. N 400-07-21. НТЦ ЯРБ, Москва, 1991.
4. L.F. Parsly. "Pilot Plant Studies of Nethyl Iodide Clieanup by Sprays", Nucl. Appl. Technol., 1970, 8, p. 13. (1)
5. R. Borkowski. Untersuchungen zum chemischen Verhalten des Methyljodides bei schweren Sterfallen in Druckwasserreaktoren Kernforschungszentrum. Karlsruhe KfK 3968 (1985).
6. G. Charnay, J.P. Schon Transferts de chaleur par convection J. F. Sacadura Initiation aux Transferts Thermiques Technique et Documentation (1978).
7. C.F. Weber, E.C. Beahm, T.S. Kress. Models of Iodine Behaviour in Reactor Containments Report ORNLJTM-12202 (1992).
8. S. Hellmann, F. Funke, G.-U. Greger, A. Bleier, W. Morell. The Reaction between Iodine and Organic Coatings under Severe PWR Accident Conditions — An Experimental Parameter Study Proceedings of the Fourth CSNI Workshop on the Chemistry of Iodine in Reactor Safety, June 10–12, WCjrelingen, Switzerland (1996), P. 367–384
9. F. Funke, G.-U. Greger, S. Hellmann, A. Bleier, W. Morell. Iodine-steel Reactions under Severe Accident Conditions in Light-water Reactors. Nuclear Engineering and Design **166,** P. 357–365 (1996).
10. D. Jacquemain, Ch. Poletiko. Point sur les Modeles Physico-chimiques Utilises dans le Code IODE Validation et Developpements Futurs Note Technique IPSN/DRS/SEMAR 96/67 (1996).
11. G. Benezech, J. Cerf, M. Lucas, R. Ventre, J. Dufresne. Piegeage de l'iode par les Surfaces (Peintures, Beton, Acier). Note Technique SASC 89/736 (1989).
12. J.M. Coulson, J.F. Richardson Chemical Engineering, vol. 1 Fluid Flow, Heat Transfer and Mass Transfer. Pergamon Press, 2nd Edition/
13. M.F. Albert, J.S. Watson, R.P. Wichner. Nuclear Technology, 77 (1987), P. 161–174
14. В.И. Павленко. "Оценка радиационных последствий крупных аварий на АЭС с ВВЭР." Отчет ИАЭ инв. N 10/826, Москва 1973.(2)
15. H. Bunz, M. Schock. "NAUA Mod4: A Code for Calculating Aerozol Behaviour in LWR Core Melt Accidents.", KFK-3554, August, 1983.(3)
16. Экспериментальное исследование выхода радиоактивного йода в технологические помещения атомной электростанции при истечении теплоносителя I-го контура. Тезисы докладов Всесоюзной конференции "Радиационная безопасность населения и защита окружающей среды в связи с эксплуатацией атомных электростанций". Казаков В.А., Ткаченко А.В., Федулов В.Ф. и др. Димитровград, 26 – 29 мая, 1981.(4)
17. Otto E., Fissan H., Park S.H., Lee K.W. 1999. The log-normal size distribution theory of Brownian aerosol coagulation for the entire particle size range: Part 1. Analytical solution using Dahneke’s coagulation kernel. J. Aerosol Sci., 1999, V. 30, № 1, P. 17−34.
18. РБ 020-01, "Методика оценки выбросов соединений йода в окружающую среду при авариях на АЭС с реакторами ВВЭР-1000", Госатомнадзоp России, 19.12.2001.
19. Reynolds A.B. et al., "Role of surface vaporization in low-volatile fission product release experiments", Nucl. Technol. 74 (1986) 76.
20. Lewis B.J., et al. "Low volatile fission product release and fuel volatilization during severe accident conditions". J. Nucl. Mater. 252 (1998) 235.
21. Bird R.B., et al., "Transport phenomena", John Wiley & Sons, NY (1960).
22. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Гидродинамика. М., Наука, 1986.
23. BPO.B.120.1&&&&&&.HG.0006. АЭС с энергоблоками ВВЭР-1500. Базовый проект. Отчет о научно-исследовательской работе. Верификация и подготовка к аттестации ПС АНГАР. Часть 1, Инв. №336/нир, ФГУП "Атомэнергопроект", 2005.

ПРИЛОЖЕНИЕ А  
(справочное)  
Расчет эффективности абсорбции различных летучих соединений и аэрозолей водоразбрызгивающими и барботажной системами

## А1 Спринклерная система

Процесс поглощения растворимого газообразного соединения каплями спринклерного раствора в общем виде может быть представлен как процесс массопередачи из свободного объема через газовую пленку капли, растворение на поверхности (жидкой пленки) и процесс массопередачи в объем капли.

Эффективность абсорбции (Е) соединений первой и второй группы каплей определяется путем решения уравнения диффузии этого соединения в капле. Диффузионный поток у поверхности капли со стороны газовой и жидкой среды должны быть одинаковы:

D1⋅dC/dn=kg/H⋅(Cg+Cg,i), (А1)

где

dC/dn — градиент концентрации в жидкости у поверхности капли;

kg — коэффициент массопередачи через газовую пленку, м/с;

H — равновесный коэффициент распределения соединения между водой и воздухом (см. приложение Б);

Cg — концентрация соединения в основной массе газа;

Cg,i — концентрация соединения в газе у поверхности капли.

Уравнение диффузии в общем виде для описания поведения соединения, растворенного в капле с учетом химических реакций, имеет вид:

D1⋅(d2C/dr2+2/r⋅dC/dr) – kC=dC/dt (А2)

где:

r — текущий радиус в объеме капли;

k — константа реакции первого или псевдопервого порядка;

t — время.

Решение этого уравнения для начальных и граничных условий

С(r,0)=C0, C(R,0)=C\*,

dC(r,t)/dr|r=R=kg/(H⋅D1)⋅(C\*–C),

дает следующее выражение для эффект захвата соединений йода каплей:

E(t)=(C–C0)/(C\*–C0)=1–(6 Sh2)/μ2n/(μ2n–Sh (Sh–1))(k+D1(μn/R)2)⋅

exp(–(k+D1 (μn/R)2) t)/(k+D1 (μn/R)2),

где:

C\* — равновесная концентрация соединения в капле у поверхности капли;

C0 — начальная концентрация соединения в капле;

Sh=kg⋅d/Dg — число Шервуда;

μn — корни уравнения tg(μn) = μn/(1–Sh);

R — радиус капли.

Коэффициент массопередачи через газовую пленку kg определяется следующей формулой [А1]:

kg=Dg⋅(2+0,6⋅Re1/2⋅Sc1/3)/d, (А3)

где Re=d⋅v⋅ρ/μ — число Рейнольдса; (А4)

Sc =μ/(ρ Dg) — число Шмидта; (А5)

ρ — плотность паро-воздушной среды, кг/м3 ;

μ — вязкость среды, кг/(м c);

Dg — коэффициент диффузии в паро-воздушной среде, м2 /с;

v — скорость падения капли, м/с;

d — диаметр капли, м.

μ=10–6⋅[0,85+ε(0,6⋅ε⋅ε−0,62⋅ε+0,884)+0,00385⋅(T–273,15)]

Dg=1/(1/Dga⋅Pa/P+1/Dgv⋅Pv/P)

D1=7,4⋅10–8⋅(X⋅Mv)1/2⋅Tw / (μ1⋅V), (см. [А2, А3])

где

Dga,gv=B⋅T1,6⋅(1/M+1/Ma,v)0,5/(P⋅σs,(a,v)⋅ωD) — коэффициент диффузии соединения в воздухе (а) или в паре (v);

ε=Pa/P — отношение парциального давления воздуха к полному давлению;

В = 0,00214–0,000492∙(1/М+1/Ма,v )0,5;

Pa,v — парциальные давления воздуха и пара;

Р — полное давление в атмосфере;

Т — температура паро-воздушной среды:

Tw — температура воды;

Х — степень диссоциации жидкости t (для воды — 2,6);

М — молекулярный вес соединения;

Mw,а,v — молекулярный вес воды, воздуха или пара;

μ1=241,4·10(247,8/(T–140)) — вязкость воды;

V — молекулярный объем соединения (для I2 — V = 71,5, для СHзI — V = 62,9);

σs,(a,v)= (1/2) (σs + σa,v) — диаметр соударения молекул соединения с молекулами воздуха или пара;

ωD=(ωs.ωa,v)1/2 — интеграл столкновений.

Значения основных параметров для расчета коэффициентов диффузии в паро-воздушной среде приведены в таблице А1. [А4, А5].

Таблица А1

|  |  |  |  |
| --- | --- | --- | --- |
| Компоненты | σ | ωD/k | M |
| Воздух | 3,711 | 78,6 | 28,97 |
| Пар | 2,641 | 809,1 | 18,09 |
| I2 | 5,160 | 474,2 | 253,82 |
| СНзI | 4,230 | 519,0 | 141,94 |

Здесь k — постоянная Больцмана.

Описанный выше расчет эффективности абсорбции Е можно использовать для первых двух групп соединений, приведенных в таблице 1 основного раздела.

Для аэрозолей эффективность прямого захвата каплями дается выражением [А6]:

E=(1+da/d)2–1/(1+da/d)

где da — средний аэродинамический диаметр аэрозольных частиц.

При осуществлении экспертизы проектных расчетов должно быть уделено внимание наличию экспериментально установленных свойств используемых типов форсунок спринклерных систем (расход и распределение капель по размерам) или наличию доказательств, что предлагаемые характеристики выбраны с консервативным запасом.

## А2 Эжекционный охладитель

Методика определения эффективности абсорбции Е для эжекционных установок аналогична методике, описанной для спринклерных систем. Однако, приведенные формулы нельзя использовать ввиду того, что в них не учитывается внутренняя циркуляция в каплях и изменение дисперсности в процессе дробления капель. В эжекционном охладителе это будет иметь существенное значение из-за сильной турбулизации водо-воздушного потока в камере смешения. Поэтому, указанные значения можно получить экспериментально. Например, эксперименты [А7] показали, что эти эффекты могут увеличивать значения эффективности абсорбции Е на порядок по сравнению со значениями эффективности абсорбции, рассчитанными по методике для спринклерной системы. В соответствии с полученными экспериментальными данными значения эффективности абсорбции Е для СН3I (первая группа) составляет 0,49, для I2 (вторая группа) Е = 6 10–3. Эффективность улавливания аэрозолей со средним диаметром 2,3 мкм в камере смешения оказалась равной 0,2. При осуществлении экспертизы проектных расчетов должно быть уделено внимание экспериментальному подтверждению значений эффективности абсорбции Е для используемых в проекте типов эжекционных охладителей.

## А3 Барботер

Эффективность абсорбции соединений при барботаже может быть рассчитана при известном начальном диаметре пузырька парогазовой смеси. Однако, на практике это выполнить довольно трудно, поскольку образующиеся при барботаже пузырьки имеют распределение по размерам, которое часто неизвестно. В силу этого используются экспериментальные значения. Например, по данным работы [А8] эффективность абсорбции при барботаже для аэрозолей составляет примерно 0,98 (Е = 0,98). При осуществлении экспертизы проектных расчетов должно быть уделено внимание экспериментальному подтверждение значений эффективности абсорбции различных групп радионуклидов при барботаже для используемых в проекте типов барботажных устройств.

## А4 Выбор формы аэрозольных частиц

Наиболее важным результатом экспериментальных исследований было подтверждение процесса сферификации. Частицы, подвергающиеся процессам конденсации-испарения, сжимаются до почти сферической формы. Необъясненное отклонение от идеальной сферы мало и нет необходимости учитывать его в модели. Процесс также сжимает скоагулированые совокупности ранее сжатых частиц. Эффект, экспериментально установленный для негигроскопических частиц, будет, конечно, сильнее для растворимых гидроскопичных частиц. Тогда очевидно предположить, что процесс сферификации имеет место при аварии в водяном реакторе для очень коротких периодов времени или в очень маленьких пространствах здания. Поэтому можно положить, что сферическая форма будет сохраняться в процессе расчета.

## Литература

1. S. Sideman. Direct Contact Heat Transfer Beetween Innescible Liguids. Adv. Chem. Eng., 6, 207 – 296, (1966).
2. Методика и зависимости для теоретического расчета теплообмена и гидравлического сопротивления теплообменного оборудования АЭС. РТМ 24.031.05-72. М., 1972.
3. Казаков В.А., Скачков В.С., Ткаченко А.В., Федулов В.Ф. Методика расчета распространения радиоактивных продуктов на АЭС при авариях (применительно к количественному анализу безопасности). Отчет ВТИ, арх. N 11171, 1978.
4. J.G. Knudsen. Properties of air-steam mixtures containing small emounts of iodine. BNWL - 1326, 1970.
5. R.A. Svehla. Viscosities and Thermoconductivities of Gases at High Temperatures Suitable for Heat Transfer Calculations. NASA-TB-R-132. National Aeronautics and Space Administration, 1962.
6. L.F. Parsly. Removal of Radioactive Particles by Sprays. ORNL-4671, 1971.
7. Казаков В.А., Ткаченко А.В., Федулов В.Ф., и др. Экспериментальное исследование очистки воздуха от соединений радиоактивного йода на модели водоструйного эжектора. Отчет ВТИ, арх. N 12951, 1985.
8. Reactor Safety Study WASH-1400, NUREG 75/014, October, 1975, Appendix VII.

ПРИЛОЖЕНИЕ Б  
(справочное)  
Распределение соединений йода между водной и газовой фазами

## Б1 Органические соединения йода (первая группа)

Среди наиболее распространенных органических соединений йода, оказывающих при проектных авариях заметное влияние на радиационную безопасность, йодистый металл (СH3I) является наименее химически активным, т.е. способным вступать в физико-химические реакции. Поэтому, как правило, для описания поведения соединений йода, относящихся к первой группе, в качестве представителя этой группы выбирается CH3I.

Среди известных работ по исследованию коэффициента распределения (H) для CH3I наиболее консервативные (наименьшие) значения H даны в работе [Б1]. Эти значения были экспериментально обоснованы в диапазоне температур от 5 до 70ºС. (Наиболее широкий исследуемый диапазон температур, известных авторам). Наблюдаемые значения хорошо описываются эмпирической функцией, зависящей от температуры, которую предполагается использовать для расчета H:

 (Б1)

где T — температура, К;

H — [моль/л раств./моль/л газа].

## Б2 Неорганические соединения йода (вторая группа)

Как правило, при проектных авариях в качестве представителя неорганических соединений йода рассматривают элементарный йод (I2), который является наименее химически активным соединением этой группы.

Распределение элементарного йода между водной и газовой средой будет определяться его физическим состоянием и образующимися химическими соединениями или гидролизом в воде. Полный или видимый коэффициент распределения (Р) элементарного йода между водной и газовой средами определяется отношением концентрации йода в воде к концентрации элементарного йода в газовой среде:



Элементарный йод, попадая в водный раствор претерпевает гидролиз с образованием других соединений йода. Таким образом, количество йода, которое растворяется в водном растворе, становится значительно большим, чем это следует из закона Генри для I2. Степень гидролиза I2 зависит от температуры и рН раствора. Реакции гидролиза обратимы. Эгглетон [Б2] предложил следующий набор реакций для описания процесса:

K1

I2 (газовая среда) ⇔ I2 (водная среда)

K1 = [I*2*] в водн. среде */*[I*2*] в газовой среде  (Б2)

Здесь:

[I2 ] в водн. среде обозначает концентрацию молекулярного йода в водной среде,

[I2]в газовой среде обозначает концентрацию молекулярного йода в газовой среде (например, грамм-моль на литр).

**в водной среде**

K2

I2 + I‾ ⇔ I‾3,

K2=[I‾3] в водн. среде / ([ I2 ] в водн среде [I‾], (Б3)

**в водной среде**

K3

I2+Н2O ⇔ Н++I‾ + HIO,

K3 = ([I‾] [Н+] [HIO])*/* [I2] в водн среде, (Б4)

**в водной среде**

K4

I2+Н2O ⇔ Н++Н2OI++ I‾,

K4=([H2OI+] [I‾])*/* [I*2*] в водн среде,(Б5)

**в водной среде**

K5

3I*2*+3Н2O ⇔ IO3+5 I‾+6Н+

K5=([IO3] [I‾]5[H+]6)*/* [I*2*] в водн среде (Б6)

**в водной среде**

K6

HIO⇔Н++IO‾,

K6 = ([H+] [IO‾])*/* [HIO],(Б7)

**в водной среде**

K7

IO‾ + I‾ + Н2О ⇔ I2ОН + OH,

K7=([I2ОН‾] [OH‾])*/* ([OI‾]+[I‾]),(Б8)

**в водной среде**

K8

IO‾ + I‾ ⇔ I2О‾‾

K8 = [I2О‾‾]*/*([OI‾]+ [I‾]).(Б9)

При оценке концентрации йода в воздушной среде считается, что любое соединение йода, присутствующее в растворе, имеет ненулевое значение летучести. Исследование различных реакций йода в воде позволило выделить первых 4 быстрых реакции, которые определяют равновесие между элементарным йодом и его продуктами гидролиза. Предполагая, что только четыре первые реакции имеют место и только I2 является летучим соединением, коэффициент распределения Р будет выражаться следующим уравнением [Б2]:

[I2]в водн. среде+1/2 ([ HIO ]+[H2OI+]+3 [I3‾]+[ I‾])

Р= −⎯⎯⎯⎯⎯⎯⎯⎯⎯⎯⎯⎯⎯⎯⎯⎯⎯⎯−⎯⎯. (Б10)

[I2]в газовой среде

Так как в реакциях гидролиза равновесия (Б3) (Б4) и (Б5) устанавливаются в свежеполученных растворах йода и в случае отсутствия йодид-иона, обуславливаемого примесями, то концентрация образующегося йодид-иона должна быть эквивалентна сумме концентраций гипойодной кислоты и катиона H2OI+:

[ I‾]+ [I3‾] ⇔[H2OI+]+[HIO]. (Б11)

Подставляя в уравнение (Б11) значения [I3‾], [HIO ] и [H2OI+], получаемые из уравнений реакций (Б3), (Б4) и (Б5) соответственно, и решая относительно [ I‾], может быть показано, что

[I2]в водн. ср.+(1+2K2[I2]в водн. ср.] [K3/ [H+]+K4)1/2 (1/ [I2 ]в водн. ср.+K2])–1/2

Р=**−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−−,** (Б12)

([ I2 ] в водн. среде / K1)

из которого видно, что коэффициент распределения Р может быть рассчитан для различных значений [I2 ]в водн. среде, [H+ ] и констант равновесия K1, K2, K3 , K4.

Коэффициент распределения I2 между водой и воздухом (K1 ) можно определить, используя закон Генри для идеальных газов и данные по растворимости [Б3] и парциальному давлению [Б4] I2 в воде и воздухе. С учетом зависимости парциального давления и растворимости от температуры (Т, К) было получено уравнение зависимости K1 от Т в диапазоне температур от 283 до 423 К, которое имеет следующий вид:

lg K1 = – 92,6 + 5760,0/T + 30,37 lgT (Б13)

Отклонение значений K1, рассчитанных по формуле, от значений, рассчитанных же по значениям растворимости и парциального давления, не превышает ± 5%. В работе [Б5] были приведены результаты измерения величины K1 при температуре 20 С. Среднее из 6 экспериментов значение K1 равно 117, а расчетное по формуле (Б10) составляет 95,1. Сравнение расчетных значений K1, выполненных по формуле (Б10), со значениями, полученными из соотношений, приведенных в работе [Б7], дают хорошее совпадение.

Для расчета значений K2 предлагается использовать формулу, приведенную в работе [Б7], поскольку она дает наименьшие значения коэффициента в зависимости от температуры из известных соотношений:

lgK2=550,0/T+7,355–2,5751 lgT (Б14)

Значение K3 предлагается рассчитывать также по формуле, приведенной в работе [Б7] по той же причине. Эта формула имеет вид:

lgK3= –13929/T – 44,764+0,070692 T (Б15)

Хуже обстоит дело с расчетом константы K4 (уравнение Б5). В работе [Б6] было получено значение равное K4 = 1,2 10–11 при температуре 25°C. В работе [Б2] на основе подхода, изложенного в работе [Б6], было получено значение K4 = 3,9 10–11 для температуры 100°C. С помощью этих двух значений можно получить коэффициенты для уравнения Аррениуса:

K4 = 4,266·10–9·e3474/RT (Б16)

## Литература

1. E.C. Beahm, W.E. Shockley, C.F. Weber. Chemistry and Transport of Iodine in Containment Proc. Symp. Source Term Evaluation for Accident Conditions, Columbus U.S.A. IAEA-SM-281/41, P. 479–500 (1986).
2. A.E.J. Eggleton. A Theoretical Examination of Iodine-Water Partition Coefficients. AERE-R4887.
3. Справочник по растворимости. М.-Л., Академия наук СССР, 1961, C. 93, табл. 47.
4. А.Н. Несмеянов. Давление паров химических экспериментов. М., Из-тво Академия наук СССР, 1961, C. 31–318.
5. R.F. Taylor. Absorption of iodine vapour by aqueous solutions. Chemical Engineering science, Vol. 10, P. 68–79, 1959.
6. Bell R.P. and Gelles E. The Helogen cation in Aqueons Solution. J. Chem. Soc., P. 2734–2740, oct. 1951.
7. D.A. Palmer, R.W. Ramette and R.E. Mesmer. The Hydrolysis of Iodine: Equilibria at High Temperature. Journal of Nuclear Materials, V. 130 (1985), P. 280–286;

ПРИЛОЖЕНИЕ В  
(справочное)  
Взаимодействие соединений йода с химическими примесями

## В1 Введение

Органические (1-ая группа) и неорганические (2-ая группа) соединения йода в водном растворе могут вступать в химические реакции с образованием соединений, относящихся к другии группам. Эти реакции могут быть достаточно медленными и не оказывать влияние на эффективность улавливания соединений в процессе работы активных и пассивных систем (спринклерной системы, водоэжекционных охладителей, барботажных устройств). Однако даже медленные изменения в химических группах может привести, в конечном счете, к значительным влияниям на радиационные последствия аварии. Особый интерес представляют необратимые химические реакции органических соединений йода с образованием неорганических. В приложении приводятся примеры таких реакций и возможные значения констант скоростей этих реакций.

## В2 Органические соединения йода (1-ая группа).

Как отмечалось выше, представителем органических соединений йода является йодистый метил (CH3I). Поэтому, в дальнейшем будут рассмотрены примеры реакций CH3I.

### В2.1 Гидролиз CH3I в водном растворе.

Реакция гидролиза CH3I в водном растворе описывается следующим уравнением [В1]:

K1

CH3I + H2O → CH3OH + H+ + I‾. (В1)

В нескольких работах [В2–В5] были обобщены данные по экспериментальным значениям K1 и приведены некоторые собственные значения. В работе [В3] было дано эмпирическое соотношение, описывающее изменение K1 в зависимости от температуры, следующего вида:

lgK1 = 111,859 – 10534/T – 33,821\*lgT, (В2)

где Т в градусах К. Расчетные, выполненные по формуле (В2) хорошо совпадают с экспериментальными данными.

### В2.2 Реакция CH3I с ионом OH‾.

Реакция CH3I с ионом гидроксила OH‾ имеет следующий вид:

K2

CH3I + OH‾ → CH3OH + I‾-. (В3)

В работах [В6–В9] приведены экспериментальные данные по константе скорости второго порядка бимолекулярной реакции CH3I с OH‾ в диапазоне температур от 288,16 до 347,96 К. Эти экспериментальные данные достаточно хорошо описываются уравнением Аррениуса:

К2 = А\*exp (–E/RT), (В4)

где А = 425, литр/моль/с; Е — энергия активации = 23050, кал/моль; R — газовая постоянная = 1,987 кал/моль/град К; Т — температура, К.

Концентрация йонов OH‾ при неизвестном pH в зависимости от температуры может быть получена из работы [В11]. В диапазоне температур от 0 до 140ºC значение концентрации может быть определено по соотношению:

lg[OH‾] = –(6,266\*10–5T2 – 1,965\*10–2T +7,399), (В5)

где [OH-] — концентрация OH‾, г-ион/л; Т — температура, ºС. При известном pH концентрация йонов OH‾ может быть определена из очевидного соотношения

lg[OH‾] = pH – 14.

### В2.3 Реакция CH3I с гидразином.

Реакция между CH3I и гидразином (N2H4) протекает по следующей схеме:

K3

N2H5OH + CH3I + OH‾ → (CH3)NHNH3OH + H2O + I‾. (В6)

Образующийся в результате реакции монометил гидразин также может вступать в реакцию с CH3I. Однако было показано, что скорости этой и последующих реакций значительно меньшие, чем скорость реакции (В6). В работе [В12] были экспериментально получены значения константы скорости второго порядка для указанной реакции для температур: 24,6ºC; 34,7ºC; 49,3ºC; 64,7ºC. Методом наименьших квадратов были получены следующие значения параметров для уравнения Аррениуса для константы K3:

K3 = 7,26\*1011exp(–20200/RT), (В7)

где R и T определены выше, а K3, литр/моль/с.

### В2.4 Реакция CH3I с тиосульфатом натрия

Реакция йодистого метила с тиосульфатом натрия (реакция Слайтора) протекает по следующей схеме:

K4

CH3I + S2O3‾‾ → CH3S2O3‾ + I‾. (В8)

Было выполнено ряд экспериментальных работ по определению K4 [В7, В10, В13]. В результате обработки, полученных экспериментальных данных методом наименьших квадратов с учетом их весов было получено следующее выражение для определения K4 в зависимости от температуры:

K4 = 1,35\*1013)exp(–20000/RT), (В9)

где R и T определены выше, а K4, литр/моль/с.

## Литература

1. "The Kinetics of Certain Reaction between Methyl Halids and Anions in Water" by Moelwyn-Hughes. Proceeding of Royal Society A-196, p. 540 (1949 y.).
2. Richard A., Ogg Jr. The Hydrolysis of Methyl Iodide. Journal of Am.Chem.Soc., V. 6, P. 2000–2001.
3. E.A. Moelwyn-Hughes. The Hydrolysis of the Methyl Halids. Proceeding of Royal Society A-164, P. 295–306, 1938 y.
4. E.A. Moelwyn-Hughes. The Kinetics of Hydrolysis. Proceeding of Royal Society A-220, P. 386–396 (1953y.).
5. R.L. Heppoletty and R.E. Robertson. The Neutral Hydrolysis of the Methyl Halides. Proceeding of Royal Society A-252, P. 273–285, 1955 y.
6. J.O. Edwards. Correlation of Relative Rates and Equlibrio with a Double Basicity Scale. J. Amer. Chem. Soc., N 76, P. 1540, 1954 y.
7. "The Kinetics of Certain Reaction between Methyl Halids and Anions in Water" by Moelwyn-Hughes. Proceeding of Royal Society A-196, P. 540–553, 1949 y.
8. S. Seltzar and A.A. Zavitsas. Correlation of Isotope Effects in Substitution Reactions with Nucleophilicitites - secondary Alpha-Deuterium Isotope Effect in the Iodide-131 Exchange of Methyl - d3 iodide. Can. J. Chem., 45, P. 2023–2031, 1967 y.
9. E. Gand. Ionic Disociation of Alkyl Halides in Aqueous Solution. Am. Far. Sci., Narseille, 2, P. 134–239, 1939 y.
10. R.A. Hasty and S.L. Sutter. Kinetics of the Reaction of Methyl iodide with Sulfite and Thiosulfite Ions in Aqueous Solution. Can. J. Chem., 47, P. 4537–4571, 1960 y.
11. И.Т. Гороновский и др. Краткий справичник по химии. Киев, Наукова Думка, 1974 г., C. 768.
12. R.A. Hasty. The Rate of the Reaction of Methyl iodide and Hydrazine in Aqueous Solution. The Journal of Physical Chemistry, V. 73, N 2, P. 317–321,1969 y.
13. A.Y. Willi and C.M. Won. Kinetic deuterium isotopic effect in the reaction of methyl iodide with thiosulfate ion in aqueous solution. Canadian Journal of Chemictry, 48, P. 1452–1455, 1970 y.

ПРИЛОЖЕНИЕ Г  
(справочное)  
Выбор коэффициента десорбции КД радиоактивного йода

Имеющиеся в литературе экспериментальные данные [Г1–Г3] указывают на широкий диапазон коэффициента десорбции КД, зависимость этого коэффициента от типа поверхности, температуры и относительной влажности, а также от концентрации радиоактивного йода на поверхности. Кроме того, в процессе экспериментов обнаруживается снижение коэффициента десорбции во времени с выходом на постоянное значение через 10–15 часов после начала опытов [Г3]. При этом значения КД на плато отличаются от начальных в 8–10 раз.

На основании анализа экспериментальных данных в работе [Г2] предлагается аналитическое выражение зависимости коэффициента десорбции Kд от поверхностной концентрации и температуры:

, (Г1)

где:

a — поверхностная концентрация, Ки/см2,

T — температура поверхности, К.

В таблице Г4 представлены экспериментальные значения коэффициента десорбции КД по данным работ [Г1, Г3] и расчетные значения, вычисленные по формуле (Г1).

Таблица Г4 – Значения Kд для различных температур и поверхностной концентрации

|  |  |  |  |  |  |  |
| --- | --- | --- | --- | --- | --- | --- |
|  | Данные работы [Г1] | | | Данные работы [Г2] | | |
| Т, K | А,  Ки/см2 | КД  эксп. | КД  расч. | А,  Ки/см2 | КД  эксп. | КД  расч. |
| 323 | 10–7 | 5 10–7 | 5,3 10–7 | 10–5 | 6,0 10–8 | 1,5 10–7 |
| 373 | 10–7 | 8 10–7 | 4,8 10–7 | 10–5 | 10–7 | 1,4 10–6 |
| 473 | 10–7 | 8 10–7 | 10–4 | 10–5 | 10–7 | 2,9 10–5 |

Сопоставление расчетных и экспериментальных значений коэффициента десорбции Kд обнаруживает удовлетворительное согласие для температуры 50 С в диапазоне поверхностной концентрации от 10–5 до 10–7 Ки/см2. Для более высоких температур 100–200ºС расчетные значения Kд превышают экспериментальные на один-два порядка. Причины такого расхождения можно объяснить методическими особенностями экспериментальных исследований, в результате которых авторы работы [Г2] предложили упомянутую формулу. В отличие от работ [Г1, Г3], в работе [Г2] при определении коэффициента десорбции Kд применялся интегральный метод, причем продолжительность экспериментов для температур 100–200ºС не превышала нескольких десятков минут. По данным работ [Г1, Г3], именно в конце этого периода происходит резкое снижение коэффициента десорбции, а установившееся значение Kд наблюдается лишь через несколько часов. Использование формулы (Г1) может привести к неоправданному завышению расчетной величины утечки радиоактивного йода в окружающую среду в послеаварийный период.

Оценочное значение концентрации радиоактивного йода на поверхности в послеаварийный период находится в пределах 10–6–10–2 Ки/см2. Для таких концентраций скорость десорбции, если использовать зависимость Kд=1/a0,27,должна быть в 5–10 раз ниже экспериментальных данных работы [Г2].

Из-за отсутствия экспериментального подтверждения значений коэффициента десорбции Kд при высоких концентрациях (10–3–10–2) в расчетах рекомендуется использовать постоянное значение Kд равное 10–7 1/с. Эксперименты показывают, что с консервативным запасом можно считать, что 50% йода будет находиться в органической (первая группа), а 50% — молекулярной форме (вторая группа).

## Литература

1. Изучение десорбции различных форм йода с разных конструктивных материалов. Отчет по контракту ЭГУ–ВТИ N 70451/200072. Научно-исследовательский институт энергетики, Прага, ЧССР, Ясловске Богунице, сентябрь 1980.
2. Изучение десорбции радиоактивного йода в зависимости от температуры и поверхностной концентрации. Отчет ИАЭ, инв. N 32/107479, 1979.
3. Исследование десорбции радиоактивного йода с различных конструктивных материалов после испарения теплоносителя ВВЭР. Отчет ВТИ, арх. N 11635, Москва, 1980.

ПРИЛОЖЕНИЕ Д  
(справочное)  
Коэффициенты газовой диффузии и вязкости

**Вязкость.** Динамическая вязкость смеси газов вычисляется с помощью метода Wilke [Д1, Д2], согласно которому:

, (Д1)

где *ηi* и *xi* — соответственно вязкости и мольные доли компонентов смеси, функции φij определяются соотношениями

 (Д2)

и удовлетворяют следующим условиям симметрии:

. (Д3)

В модели MFPR\_MELT предполагается, вязкость газовой смеси определяется основными компонентами *O*2, *H*2, *H*2*O* и *N*2, вкладом же примесей можно пренебречь. Для вязкостей указанных четырех газов использованы табличные данные, приведенные в [Д3], аппроксимированные уравнением

 Па с. (Д4)

Параметры и приведены в таблице Д1.

Таблица Д1 – Параметры вязкости газов

|  |  |  |  |  |
| --- | --- | --- | --- | --- |
|  | *H*2*O* | *H*2 | *O*2 | *N*2 |
| η0 | 0,012 | 0,166 | 0,442 | 0,349 |
| α | 1,173 | 0,698 | 0,677 | 0,691 |

**Коэффициенты бинарной диффузии.** В модели MFPR\_MELT используется два варианта корреляционных формул для коэффициентов газовой диффузии.

Первый вариант — это эмпирическая формула, полученная Fuller, et al. [Д4, Д5, Д6] на основе модифицированного уравнения Чэпмена–Энскога,

, (Д5)

где *T* — температура газа (в K), *P* — полное давление (в 105 Па), *MAB* — приведенная молекулярная масса (в г/моль) компонентов, заданная уравнением

, (Д6)

*VA* и *VB* — диффузионные молярные объемы (в Å3), которые вычисляются путем суммирования атомарных объемов,

, (Д7)

где *Vi* — диффузионный объем атома, *bi,A* — стехиометрический коэффициент, определяющий число атомов типа «*i*» в молекуле *A*. Диффузионные молекулярные и атомные объемы, найденные в результате анализа экспериментальных данных по газовой диффузии [Д4, Д5, Д6], приведены в таблице Д2.

Таблица Д2 – Атомные и молекулярные диффузионные объемы в Å3 [Д2]

|  |  |  |  |
| --- | --- | --- | --- |
| Диффузионные объемы атомов | | | |
| *H* | 2,31 | *I* | 29,8 |
| *O* | 6,11 | *Kr* | 24,5 |
| *N* | 4,54 | *Xe* | 32,7 |
| *He* | 2,67 | *Ar* | 16,2 |
| Диффузионные объемы простых молекул | | | |
| *H2* | 6,12 | *Air* | 19,7 |
| *N2* | 18,5 | *H2O* | 13,1 |
| *O2* | 16,3 |  |  |

Второй вариант корреляционных формул это — уравнение Чэпмена–Энскога для коэффициента бинарной диффузии для смеси газов *А* и *В*, полученная в рамках модели твердых шаров,

, (Д8)

где *T* — температура газа (в K), *P* — полное давление (в 105 Па), *MAB* — приведенная молекулярная масса (в г/моль) компонентов, заданная уравнением (Д6), *σAB* — характерная длина (в Å), *ΩD* — диффузионный интеграл столкновений (безразмерный). Как показано в [Д2], в рамках точности ~10% можно положить *ΩD* = 1. Параметр σ*AB* для смеси аддитивным образом выражается через соответствующие параметры компонентов,

, (Д9)

данные для которых приведены в [Д7]. В случае, когда такие данные отсутствуют, используется простая корреляция c молярными массами [Д7]:

. (Д10)

Отметим, что корреляция (Д8)–(Д10) используется в тех случаях, когда данные по диффузионных объемов молекул, необходимые для более точной формулы (Д5), недоступны.

## Литература

1. Fairbanks, D. F., and C. R. Wilke. Ind. Eng. Chem., 42: 471 (1950).
2. Poling B.E., Prausnitz John M., O’Connell John P. «The Properties of Gases and Liquids», 2004, McGraw-Hill.
3. Физические величины: Справочник. Под ред. И.С. Григорьева, Е.З. Мейлихова. М., Энергоатомиздат, 1991, 1232 с.
4. Fuller, E. N., and J. C. Giddings. J. Gas Chromatogr., 3: 222 (1965).
5. Fuller, E. N., P. D. Schettler, and J. C. Giddings. Ind. Eng. Chem., 58(5): 18 (1966).
6. Fuller, E. N., K. Ensley, and J. C. Giddings. J. Phys. Chem., 73: 3679 (1969).
7. Heames T.J. et al. VICTORIA: A Mechanistic Model of Radionuclide Behavior in the Reactor Coolant System Under Severe Accident Conditions, NUREG/CR-5545 SAND90-0756 Rev 1 R3, R4, 1992.