

*Азаров С.І., д-р техн. наук, ст. наук. співр., ІЯД НАНУ,
Сидоренко В.Л., ст. викл., ІДУЦЗ НУЦЗУ*

АНАЛІЗ ФІЗИКО-ХІМІЧНИХ ПРОЦЕСІВ ПРИ ГОРІННІ ГРАФІТОВОЇ КЛАДКИ ЗРУЙНОВАНОГО РЕАКТОРУ ПІД ЧАС ЧОРНОБИЛЬСЬКОЇ АВАРІЇ

(представлено д-ром хім. наук Калугінім В.Д.)

Представлено результати аналізу фізико-хімічних процесів, що відбувалися при горінні графітової кладки реактору типу РВПК-1000 на 4-му блоці ЧАЕС під час аварії. Визначено динаміку змін температури в графітовій кладці в першу добу Чорнобильської аварії та викид радіовуглецю в навколишнє природне середовище, а також пов'язані з цим радіоекологічні проблеми.

Ключові слова: фізико-хімічні процеси, графітова кладка, аварія на ЧАЕС

Постановка проблеми. Однією з характерних особливостей аварії, що сталася 26 квітня 1986 року на 4-му блоці ЧАЕС, є процес горіння графітової кладки реактору типу РВПК-1000 та викид радіовуглецю (^{14}C) в атмосферне повітря. Практичний інтерес обумовлено передусім до фізико-хімічних процесів, окисленню графітової кладки всередині зруйнованого реактора і викиду ^{14}C в складі CO_2 та пилоподібного графіту, тобто газоподібна і пилоаерозольна компонента радіовуглецю. Аналогічна радіаційна аварія спостерігалась тільки в 50-ті роки у Великобританії (Windscale), але до цього часу залишається відкритим питання про основні фізико-хімічні процеси, що обумовили горіння графітової кладки зруйнованого реактору, і викид радіаційно небезпечного ^{14}C під час аварії на ЧАЕС.

Чорнобильська аварія привела до необхідності всебічного аналізу фізико-хімічних процесів, що відбуваються в активній зоні реактору на початковій стадії. Знаючи теплофізичні і пожежотехнічні характеристики реакторного графіту та процес напруцювання ^{14}C в складі графітової кладки при роботі реактору в штатному режимі, можемо визначити динаміку зміни температури графітової кладки при пожежі та викид ^{14}C в атмосферне повітря.

Аналіз останніх досліджень і публікацій. Незважаючи на те, що розвитку та протіканню аварійних процесів на 4-му блоці ЧАЕС присвячено досить багато робіт, наприклад, [1–3], питанням окислення графітових блоків в умовах пожежі і викиду радіовуглецю в повітря приділялося недостатньо уваги. Мета даної роботи – проаналізувати фізико-хімічні процеси в графітовій кладці в умовах аварії на 4-му блоці ЧАЕС.

Постановка завдання та його вирішення. Графітова кладка реактору типу РВПК-1000 масою 1700 тон складається з 2488 колон, набраних з графітових блоків квадратного перерізу $0,25 \times 0,25$ метрів, висотою 0,6 метрів з циліндричним отвором діаметром 0,114 метрів по осі [4]. Загальний об'єм графітової кладки приймається рівним $966,8 \text{ м}^3$ при загальній масі $1,615 \cdot 10^6 \text{ кг}$. Питома теплопровідність реакторного графіту типу ГРП-2-125 складає $33,81 \text{ Вт/(м}\cdot\text{К)}$, теплоємність $1,69 \cdot 10^{-4} \text{ ккал/(г}\cdot\text{К)}$. В графітових блоках при роботі реактора на номінальній потужності тепловиділення складає 157 МВт, середня температура в графіті не перевищує 873 К, а максимальна – 1023 К [5].

Особливо важливим ефектом опромінення реакторного графіту є накопичення теплової енергії чи енергії деформації в кристалічній решітці за рахунок радіаційних дефектів. Накопичена енергія в графіті часто проявляє себе чи через виділення тепла (ефект Вігнера), що призводить до підвищення температури, чи через зниження теплоємності [6]. Акумуляована енергія може призвести до катастрофічних наслідків, так як в критичний момент нестабільний матеріал (графітова кладка), що накопичив енергію, може раптово перейти в стабільну форму. Такий перехід буде супроводжуватися виділенням великої кількості теплової енергії в графіті і різким підвищенням температури в активній зоні реактору.

На основі експериментальних досліджень було виявлено [7], що накопичена прихована енергія в графітових блоках збільшується з підвищенням флюенсу нейтронів та добре описується формулою

$$W = W_0 \left(1 - e^{K(T)\Phi}\right), \quad (1)$$

де W_0 – питома прихована енергія при насиченні; Φ – флюенс нейтронів; $K(T)$ – константа; T – температура графіту.

На рис. 1 показано побудовану за допомогою (1), залежність зміни повної накопиченої енергії при середній та максимальній температурі флюенсу нейтронів перед початком аварії на 4-му блоці ЧАЕС.

З рис. 1 видно, що накопичена енергія опроміненого графіту безперервно зростає з ростом флюенсу нейтронів до деякої критичної точки, в якій відбувається виділення великої кількості теплової енергії, що супроводжується різким раптовим підвищенням температури. Було встановлено, що інтенсивне виділення прихованої енергії починається при нагріванні графіту до більш високих температур ніж температура опромінювання. Так при виділенні енергії 1,75 МДж/кг реакторний графіт може нагрітися до температури вище 1300 К.

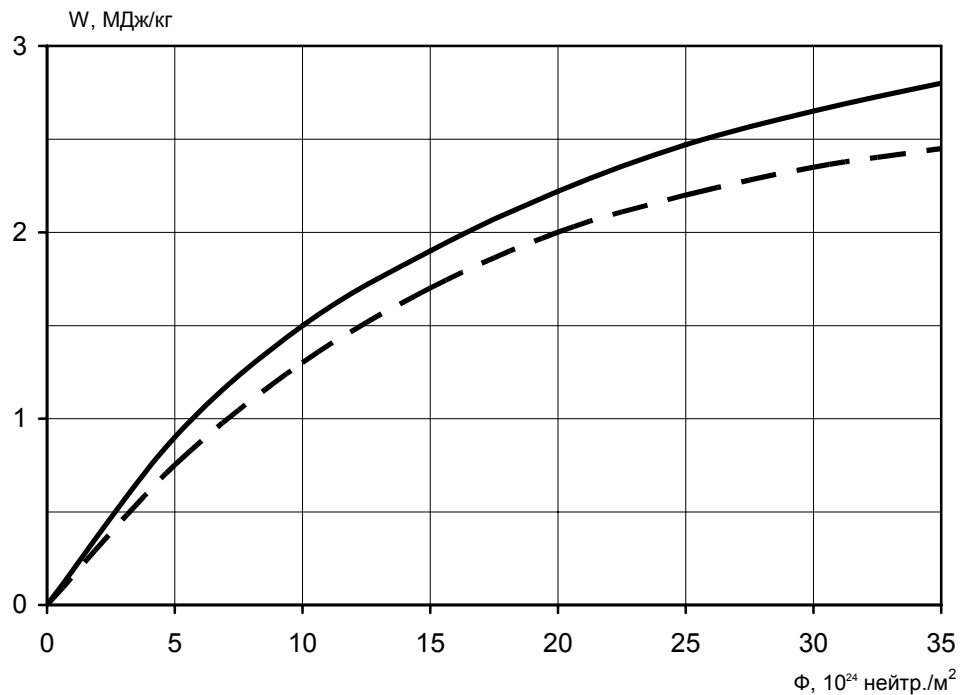


Рис. 1 – Залежність зміни повної накопиченої енергії від флюенсу теплових нейтронів

Одним з компонентів викиду радіоактивності в результаті аварії на 4-му блоці ЧАЕС, був радіовуглець, який є одним з найбільш довгоживучих радіонуклідів ($t_{1/2}=5730$ років) і радіаційно небезпечним для людини. Питома активність ^{14}C , напрацьована в графітовій кладці на момент аварії на ЧАЕС досягла 25 МБк/кг вуглецю [8]. Радіовуглець ^{14}C утворюється в активній зоні реакто-

Аналіз фізико-хімічних процесів при горінні графітової кладки зруйнованого реактору під час Чорнобильської аварії

ру в результаті ядерних реакцій на кисні, азоті і вуглецю, а також при потрійному діленні: наприклад, $^{14}\text{N}(n,n)^{14}\text{C}$, $^{12}\text{C}(2n)^{14}\text{C}$ тощо.

В процесі розвитку Чорнобильської аварії відбувся викид частини активної зони за межі реакторної установки в результаті різкого підвищення тиску теплоносія в реакторі та за рахунок майже одночасного розриву великої кількості паливних каналів в нижній частині. Максимальна температура графітової кладки в момент розгерметизації становила 2873 К за рахунок ефекту Вігнера, а потім поступово зменшилась до температури 1373 К (рис. 2) [9].

Якщо прийняти, що початкова температура графітової кладки була 873 К, то процес диспергування (руйнування) графітової кладки почався при температурі більш 2673 К, що відповідає підвищенню теплоємності графіту приблизно на 1,6 МДж/кг. Відомо [10], що реакторний графіт не плавиться при нормальному тиску (температура плавлення реакторного графіту складає 3973 К), а міцність зростає з підвищенням температури. Однак при температурі більше 2800 К графіт стає нестійким (крихким) і може розсіпатись при зовнішньому впливі (наприклад, при довготривалих впливах зміни тиску).

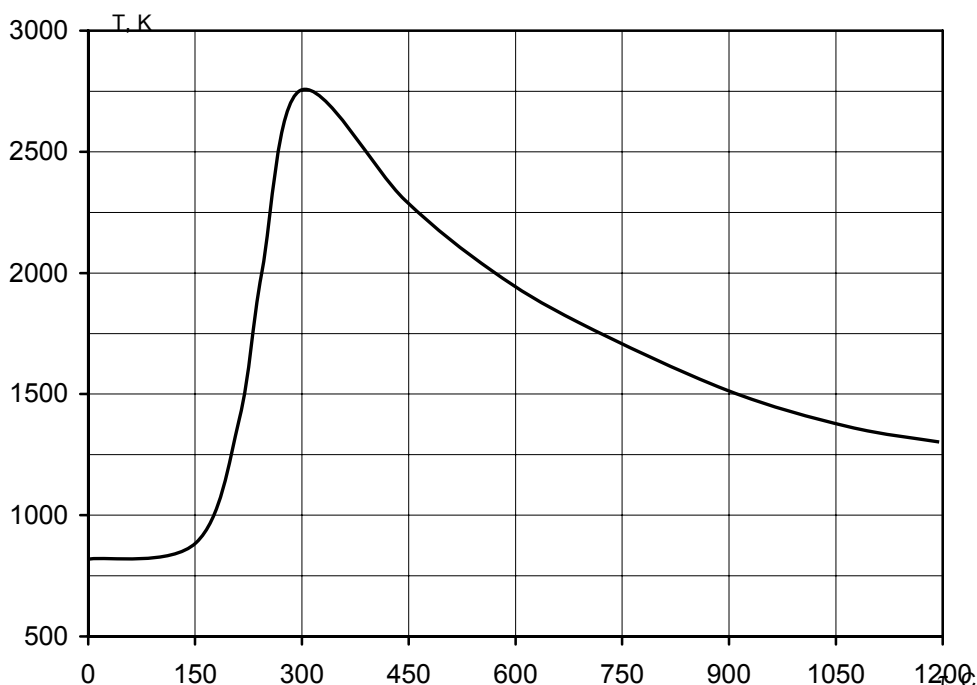
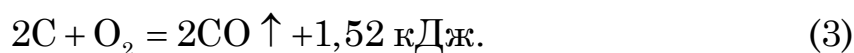


Рис. 2 – Залежність температури графітової кладки під час аварії на ЧАЕС

В процесі розвитку аварії при розгерметизації активної зони реактора всередину графітової кладки почало поступати повітря, що забезпечило можливість конвекції повітряного потоку знизу-вверх. Структура графітової кладки реактору РВПК-1000 з багатьма вертикальними отворами сприяла інтенсифікації циркуляції повітря [4]. В присутності кисню повітря графітові кільця при температурі 1200 К ініціювали «окислення», а потім спалах графітового уповільнювача на 3000-ій секунді розвитку аварії. При надлишку кисню графіт утворює двоокис вуглецю з виділенням великої кількості тепла [11]



а при його нестачі окис вуглецю



Обидві ці реакції є сильно екзотермічними.

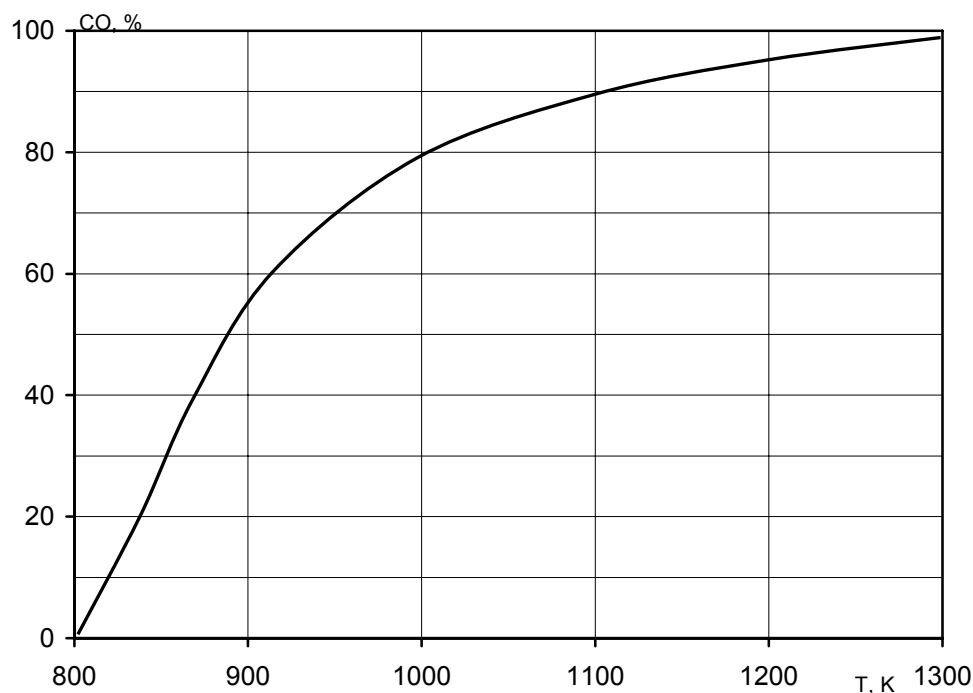
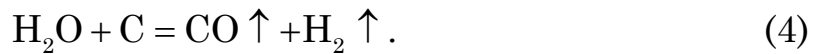
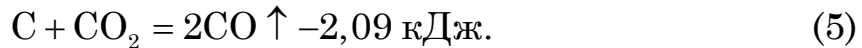


Рис. 3 – Залежність рівноважної концентрації СО від температури в реакторі з графітовим уповільнювачем

При нагріванні з водяним паром графіт витісняє з води водень



При нагріванні графіту в атмосфері двоокису вуглецю утворюється окис вуглецю (чадний газ) з поглинанням тепла



Реакція CO_2 з графітовим уповільнювачем була добре вивчена [11].

Типова залежність рівноважної концентрації CO від температури при сталому атмосферному тиску приведено на рис. 3.

В повітрі графіт може загорітися при температурі вище 1000 К. Швидкість горіння графіту пропорційна величині його поверхні. Враховуючи, що поверхня 1 м^3 графіту [12]

$$S = 6(M/\rho)^{2/3}, \quad (6)$$

де M – маса зразка графіту; ρ – питома вага графіту, швидкість його горіння можна записати так

$$\partial M(\tau)/\partial \tau = -4,21 K M(\tau)^{2/3}, \quad (7)$$

де $M(t)$ – маса речовини на 1 м^2 поверхні горіння в момент часу t ; K – стала горіння графіту.

Розв'язок диференційного рівняння (7) з початковими умовами

$$M(\tau)|_{\tau=0} = M(0), \quad (8)$$

де $M(0)$ – початкова (при $t = 0$) кількість графітової кладки на 1 м^2 поверхні горіння.

Кількість (маса) графіту на 1 м^2 поверхні горіння в момент часу t складе

$$M(\tau) = \left[M(0)^{1/3} - 1,4 K \tau \right]^3. \quad (9)$$

Кількість графіту, що згоріла до моменту часу t (горіння почалося в момент часу $\tau = 3000$ с), складе

$$M_{згор.} = M(0) - M(\tau), \quad (10)$$

У випадку, коли весь графіт згорить

$$M(\tau) = 0. \quad (11)$$

Отримаємо час повного згорання графітової кладки

$$\tau = 0,713 K^{-1} M^{1/3}. \quad (12)$$

Розрахунки за формулами (2-12) показали, що час повного згорання однієї графітової колони (усього в активній зоні реактора їх 12 штук) при температурі вище 1200 К складе біля 10 діб.

Припустимо, що маса M_c графітового матеріалу, яка згорає з виділенням радіонукліду ^{14}C , знаходиться в межах $(1 \div 1,5)$ кг/м². У такому випадку в аерозольний (димовий) стан з одного квадратного метра графітової кладки буде переходити εM_c речовин.

Тоді маса однієї аерозольної частини ^{14}C буде

$$m_c = 4/3\pi r^3 \rho, \quad (13)$$

де ρ – питома вага аерозольної частини ^{14}C ; r – радіус аерозольної частини ^{14}C .

При повному згоранні буде утворено

$$N = \frac{\varepsilon M_c}{m_c} \quad (14)$$

аерозольних часток ^{14}C в повітрі.

Так як при повному згоранні в зоні пожежі утворюються димові аерозолі CO_2 з концентрацією γ_{CO_2} , то об'єм, що буде займати цей аерозоль, складе

$$V_{CO_2} = N/\gamma_{CO_2}. \quad (14)$$

Нехай густина забруднення графіту радіонуклідом ^{14}C дорівнює A_c . Тоді, якщо позначити частку ^{14}C через p , яка вивільняється під час пожежі, то в атмосферне повітря разом з N аерозольними частками потрапить

$$n_c = A_c p. \quad (15)$$

Тоді концентрація ^{14}C в повітрі складе

$$K_{^{14}C} = \frac{n_c}{V_{CO_2}} = \frac{4\pi r^3 \rho \gamma_{CO_2} p A_c}{\varepsilon M_c}. \quad (16)$$

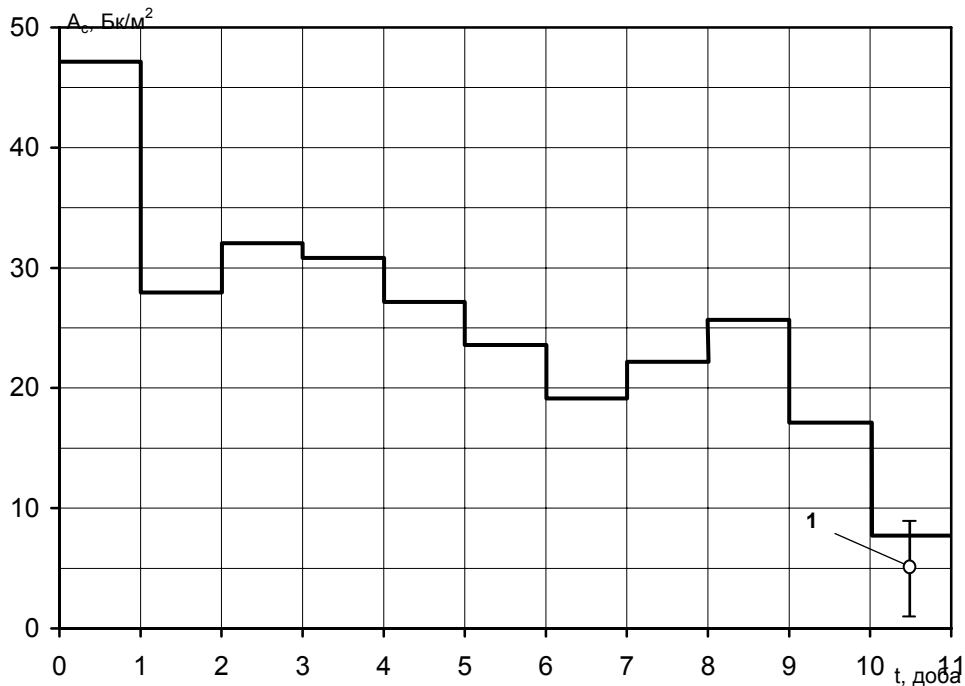


Рис. 4 – Динаміка змін активності ^{14}C в атмосферному повітрі в початковий період Чорнобильської аварії з експериментально обміреними значеннями (1) питомої активності ^{14}C в атмосферному повітрі Фінляндії [13]

У випадку при пожежі на 4-му блоці ЧАЕС з параметрами $M_c=1,5$ кг/м², $p=0,3$, $\varepsilon=0,03$, $r=0,1$ мкм, густини забруднення графітової кладки $A_c=10^{17}$ Бк/м² розрахункова концентрація ^{14}C у повітрі буде досягати 40 Бк/м³. Якщо вважати, що r дорівнює 0,2 мкм,

то при інших рівних умовах концентрація ^{14}C в повітрі підвищиться у вісім разів.

За консервативним розрахунковим оцінкам було встановлено, що за 10 діб аварії вигоріло 40 % реакторного графіту (тобто, надійшло в атмосферне повітря в складі газоподібного CO_2), а величина викиду ^{14}C склала 56 ТБк.

Для ретроспективного визначення аварійного викиду продуктів згорання (CO_2) і відповідних рівнів опромінення населення за рахунок ^{14}C було побудовано залежність зміни питомої активності радіовуглецю в атмосферному повітрі в процесі початкової стадії аварії на ЧАЕС (рис. 4).

З рис. 4 видно, що середнє значення питомої активності ^{14}C в повітрі в момент аварії становило 25 Бк/м^3 , яке в 5 разів перевищило допустимий рівень концентрації DK_e^{inhal} для населення (категорія В) [14]. Верхня оцінка колективної дози, що формується за рахунок цього викиду продуктів згорання графіту (радіовуглецю), тільки для населення складала 135 чол.·Зв.

Висновки. Фізико-хімічна природа розвитку аварії на 4-му блоці ЧАЕС потребує більш досконалого вивчення і дослідження. З огляду на обмеженість набору експериментальних даних для виявлення ходу розвитку важкої радіаційної аварії зараз використовують різні засоби моделювання.

Розроблені методичні основи моделювання фізико-хімічних процесів в графітовій кладці реактора типу РВПК-1000 з визначенням просторово-часових параметрів з межею виявлення викиду радіаційно-небезпечного радіовуглецю (^{14}C) в атмосферне повітря, який являє собою серйозний радіаційний ризик для майбутнього покоління.

Показано, що Чорнобильська аварія привела до згорання 40% реакторного графіту і викиду в атмосферу 56 ТБк радіовуглецю, а максимальні значення питомої активності ^{14}C в повітрі в 100 разів перевищили рівень природного радіовуглецю.

ЛІТЕРАТУРА

1. Тарапон А.Г. Причины аварии на Чернобыльской АЭС. Моделирование процессов разрушения реактора и теплопроводности в объекте «Укрытие» / А.Г. Тарапон – ИПМЭ им. Г.Е. Пухова НАН Украины. – К., 2006. – 183 с.

2. Киселев А.Н. Модель процесса разрушения реактора 4-го энергоблока Чернобыльской АЭС / А.Н. Киселев, К.П. Чечеров // Атомная энергия. – 2001. – Т. 91. – Вып. 5. – С. 424–434.
3. Платонов П.А. О процессе разрушения активной зоны реактора 4-го блока ЧАЭС / П.А. Платонов – Препринт ЧАЭС. – 6486/11. – 2007. – 26 с.
4. Чернобыльская АЭС (техническое описание установок, оборудования и систем станции) – К.: Минэнерго и электрофикации УССР, 1975. – Ч. 1. – 77 с.
5. Крамеров А.Я. Инженерные расчеты ядерных реакторов / А.Я. Крамеров, Я.В. Шевелев – М.: Энергоатомиздат, 1984. – 736 с.
6. Wey K., Wigner E. Radiation from Fission Products / Phys. Rev. 1946. – v.70. – № 1–2. – P. 115–130.
7. Azarov S.I. The features of the influence of neutron irradiation on graphite at different temperatures / S.I. Azarov, V.A. Pshenichnyi, O.V. Korhevnyu // Матер. конф. ІЯД НАН України. – К., січень 1998 р. – С. 169–171.
8. Гайко В.Б. Выбросы ^{14}C атомных электростанций с реакторами типа РБМК-1000 / В.Б. Гайко, Н.А. Кораблев, Е.Н. Соловьев и др. // Атомная энергия. – 1985. – Т. 59, Вып. 1. – С. 144–151.
9. Абагян А.А. Причины аварии на Чернобыльской АЭС. Обзор исследований за 10 лет / А.А. Абагян, Е.О. Адамов, Н.Н. Понамарев-Степной и др. // 3-я межд. конф. МАГАТЭ Чернобыльская авария – 10 лет спустя. Аспекты ядерной безопасности. – Вена, Австрия, 1–3 апреля 1996 г. – С. 46–83.
10. Гончаров В.В. Действие облучения на графит ядерных реакторов / В.В. Гончаров, Н.С. Бурдаков, Ю.С. Вергильев и др. – М.: Атомиздат, 1978. – 272 с.
11. Nagasaki R. Radiation Damage of Graphite in Japans / R. Nagasaki, T. Honda, T. Iwata // Proc. 4-th U.N. Conf., 1971. – Geneva. – V. 10. – P. 367–382.
12. Бабич Е.В. Возможные варианты утилизации отработанного реакторного графита при выводе энергоблоков ЧАЭС из эксплуатации / Е.В. Бабич, С.И. Азаров // Наукові та технічні аспекти міжнародного співробітництва в Чорнобилі. Зб. наук. статей. – К.: Вища школа, 2001. – Вип. 3. – С. 219–231.

13. Salonen L. Carbon – 14 and Tritium in Air Finland after the Chernobyl Accident / Radiochemical Acted. – 1987. – № 41. – P. 145–148.
14. Норми радіаційної безпеки України (НРБУ-97). Затверджені наказом МОЗ України від 14.07.1997 р. № 208. Введені в дію Постановою головного державного санітарного лікаря України від 01.12.1997 р. № 62. – К., 1997. – 135 с.

Азаров С.И., Сидоренко В.Л.

Анализ физико-химических процессов при горении графитовой кладки разрушенного реактора во время Чернобыльской аварии

Представлены результаты анализа физико-химических процессов, которые происходили при горении графитовой кладки реактора типа РВПК-1000 на 4-му блоке ЧАЭС во время аварии. Определена динамика изменений температуры в графитовой кладке в первые сутки Чернобыльской аварии и выброс радиоуглерода в окружающую природную среду, а также связанные с этим радиоэкологические проблемы.

Ключевые слова: физико-химические процессы, графитовая кладка, авария на ЧАЭС

Azarov S.I., Sidorenko V.L.

Analysis of physical-chemist proceedings under fire graphite block the accident at the Chernobyl NPP

The analysis of physical-chemist proceedings in the time fire graphite block the accident at the Chernobyl NPP is considered. Dynamics of relative release ^{14}C in the cryophyte at their high temperature was measured.

Key words: physical-chemist proceeding, graphite block, accident at Chernobyl