

ВАЛИДАЦИЯ ТЯЖЕЛОАВАРИЙНОГО БЛОКА ИНТЕГРАЛЬНОГО КОДА ЕВКЛИД/V2 В ЧАСТИ ВЫХОДА И ПЕРЕНОСА ПРОДУКТОВ ДЕЛЕНИЯ И ДИССОЦИИИ НИТРИДНОГО ТОПЛИВА

Жданов В.С., Климонов И.А., Кудашов И.Г., Мосунова Н.А., Стрижов В.Ф.,
Сычева Т.В., Усов Э.В., Чухно В.И. (ИБРАЭ РАН),
Киреев Г.А., Кривов М.П. (АО «ВНИИНМ», Москва, Россия)

Введение

Для расчета тяжелых аварий в РУ на быстрых нейтронах с жидкометаллическим теплоносителем в проекте «Коды нового поколения» проектного направления «Прорыв» разрабатывается вторая версия интегрального кода ЕВКЛИД – ЕВКЛИД/V2 [1]. Вторая версия отличается от первой наличием модулей, позволяющих рассчитывать процессы, которые сопровождают разрушение твэлов, ТВС и всей активной зоны реактора: тяжелоаварийный модуль SAFR/V1 [2], теплогидравлический модуль HYDRA-IBRAE/LM [3] с многокомпонентной моделью, трехмерный нейтронно-физический модуль, модуль переноса продуктов деления (ПД) по контуру AEROSOL/LM, модуль, описывающий процессы распространения продуктов деления в окружающей среде – РОМ. Код ЕВКЛИД/V2 находится в высокой степени готовности, в настоящее время проводится его верификация и валидация на базе аналитических тестов и экспериментальных данных.

В представленной работе приведены результаты верификации и валидации тяжелоаварийного блока интегрального кода ЕВКЛИД/V2 в части, касающейся разрушения активной зоны, выхода продуктов деления из расплава, а также диссоциации нитридного топлива.

1. Валидация модуля выхода ПД из расплава

1.1. Состав матрицы верификации и валидации

Для верификации и валидации модуля разрушения активной зоны в части выхода продуктов деления из расплава была разработана соответствующая матрица, которая содержит пять определяющих явлений, четыре аналитических теста и данные, полученные на двух экспериментальных установках.

Аналитические тесты позволяют верифицировать внедренные в код модели, то есть проверить правильность их программной реализации. Разработанные аналитические тесты охватывают следующий список процессов, сопровождающих выход ПД из расплава: движение газовых пузырей в расплаве; рост и коалесценция газовых пузырей в бассейне расплава; перенос ПД к зеркалу расплава; выход ПД из расплава в газовую атмосферу; распределение и перераспределение ПД по фазам.

В отличие от аналитических тестов расчет экспериментов позволяет количественно оценить погрешности расчета определенных параметров по коду. К сожалению, представленных в открытой литературе данных по выходу ПД из расплава очень мало, кроме того, исследования выполнены только для диоксида урана. На основе анализа литературы были выбраны эксперименты, проведенные в Окриджской национальной лаборатории (США) [1, 2], условия которых наиболее соответствуют условиям в быстрых реакторах с жидкометаллическим охлаждением типа БН.

1.2. Эксперименты по выходу ПД из расплава UO_2

В экспериментах [4, 5] топливо с включенными в него продуктами деления удерживалось в расплавленном состоянии в течение заданного времени. Плавление таблеток общей массой 29 грамм осуществлялось за счет пропускания электрического

тока через вольфрамовый стержень, который был вставлен в осевое отверстие таблеток. Таблетки топлива обдувались гелием, который уносил вышедшие ПД из печи через трубу в фильтры и ловушки (рис. 1). В серии экспериментов были изучены различные времена выхода ПД: 60, 90, 120 и 150 секунд. В качестве результатов были получены доли вышедших ПД. Интерес представляет сравнение результатов расчета по коду ЕВКЛИД/V2 с результатами эксперимента.

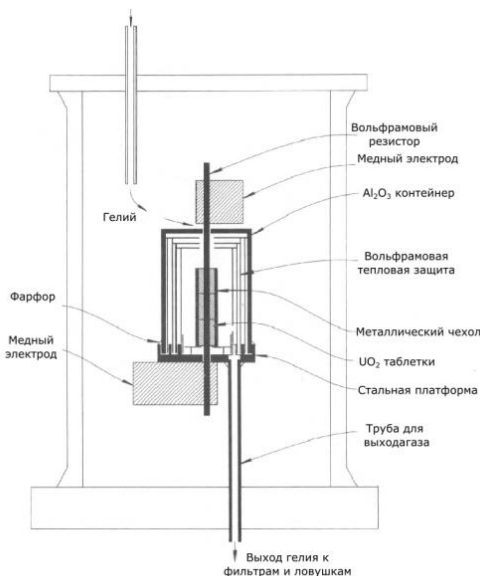


Рис. 1. Печь для плавления UO_2

В расчете принималось, что топливо находится в расплавленном состоянии с постоянной температурой, равной температуре плавления. В нодализационной схеме задавался объект атмосфера с гелием и объект бассейн с продуктами деления. Результаты расчета в сравнении с экспериментальными данными для летучих и нелетучих ПД представлены на рис. 2 и 3.

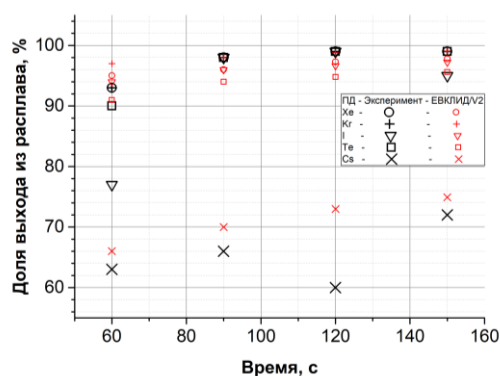


Рис. 2. Доля выхода летучих ПД

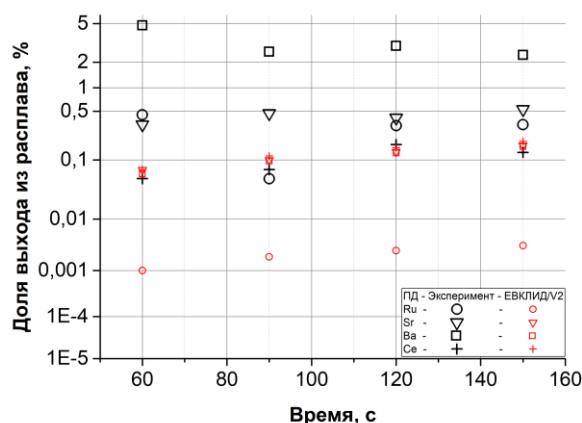


Рис. 3. Доля выхода нелетучих ПД

Представленные результаты показывают удовлетворительное качество моделирования по коду ЕВКЛИД/V2 задач по выходу ПД из расплава топлива UO_2 . Максимальная абсолютная погрешность определения доли выхода для летучих ПД составляет 17 %, а для нелетучих 4,7 %. Отличия расчетных и экспериментальных данных для летучих ПД, как показал анализ, связаны с неопределенностью начальной активности и температуры расплава. Для нелетучих ПД связаны с неопределенностью температуры, коэффициента массоотдачи и площади поверхности расплава.

По результатам проведенных предварительных валидационных расчетов выполнена доработка и усовершенствование физических моделей и, как следствие, программного кода. В частности, на основе валидационных расчетов были выбраны соотношения для расчета безразмерных коэффициентов массоотдачи (числа Шервуда), а также модифицирована численная схема для ускорения расчетов. Все представленные выше результаты валидационных расчетов выполнены с учетом представленных доработок.

2. Верификация и валидация интегрального кода ЕВКЛИД/V2 в части моделей диссоциации нитридного топлива

2.1 Состав матрицы верификации и валидации

В отличие от оксидного топлива нитридное топливо плавится конгруэнтно только при высоком давлении азота над поверхностью нитрида $2,5 \cdot 10^5$ Па [6]. Скорость потери массы при диссоциации нитридного топлива определяется скоростью выделения газообразного азота и образованием и дальнейшим стеканием расплава урана и плутония. Скорость диссоциации нитрида связана с парциальным давлением азота над поверхностью топлива. Парциальное давление азота над поверхностью определяется балансом скорости уноса азота от поверхности и притока за счет диссоциации.

Скорость потери массы нитридом определяется не только испарением азота с поверхности топлива, но и скоростью стекания образующегося расплава урана и плутония по поверхности твэла. Скорость стекания определяются балансом действующих сил: вязких, гравитационных и сил поверхностного натяжения. Образующийся в результате диссоциации металлический уран может вступать в эвтектическое взаимодействие с нержавеющей сталью [7].

Верификация разработанных моделей была выполнена на базе аналитических тестов, которые включали тесты по проверке скорости диссоциации нитрида урана, определению температуры границы нитрида при заданном энерговыделении и скорости стекания расплава урана.

Для валидации модели диссоциации нитрида урана и СНУП топлива была проведена систематизация экспериментальных данных, полученных в трех

исследовательских центрах: НИЯУ МИФИ [8–11], АО «ВНИИНМ» и во ФГУП «РФЯЦ-ВНИИТФ им. академ. Е.И. Забабахина». Ниже приведено краткое описание экспериментов и результаты валидационных расчетов по коду ЕВКЛИД/V2.

2.2. Эксперимент по диссоциации нитрида урана в НИЯУ МИФИ

Первые эксперименты по диссоциации нитрида урана были проведены в НИЯУ МИФИ. В экспериментах исследовалась диссоциация UN при различных температурах в условии обдува образца инертным газом (гелий) [8, 9]. Для определения скорости диссоциации нитрида урана использовался аппарат Netzsch STA 449 F1 с квадрупольным масс спектрометром QMS 403 C. Измерения проводились в гелии высокой чистоты, который продувался со скоростью 100 мл/мин. Тигли для образцов из нитрида урана были изготовлены из вольфрама (рис. 4).

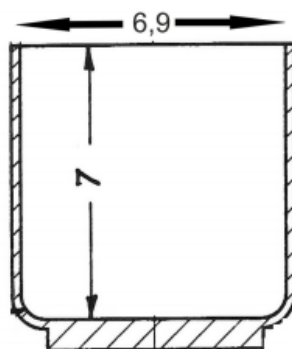


Рис.4. Вольфрамовый тигель типа ТГ объемом 0,3 мл

Во время эксперимента аппарат фиксировал следующие параметры: изменение массы образца, скорость изменения массы образца, разницу температур между опорным тиглем и тиглем с образцом и изменение температуры образца со временем.

Для проведения экспериментов использовался образец массой $1,38 \cdot 10^{-3}$ кг. Образец помещали в тигль из вольфрама, нагревали его до определенной температуры, которую выдерживали для 1900 °C (2173 K) и 2100 °C (2373 K) в течение двух часов, а для 2300 °C (2573 K) в течение получаса.

Для проведения расчетов была подготовлена нодализационная схема. Образец, находящийся в атмосфере из гелия, моделировался цилиндрической теплопроводящей структурой, которая разбивалась на три аксиальные и две радиальные ячейки. На границах теплопроводящей структуры было задано граничное условие первого рода по температуре, измеренной в эксперименте. На рисунках 5–6 приведены результаты расчета с анализом неопределенностей в сравнении с результатами эксперимента.

Диапазоны варьирования входных параметров

Температура образца, К	±1,5 %
Давление насыщения азота, Па	±50 %
Давление насыщения урана, Па	±50 %
Диаметр образца, м	±10 %

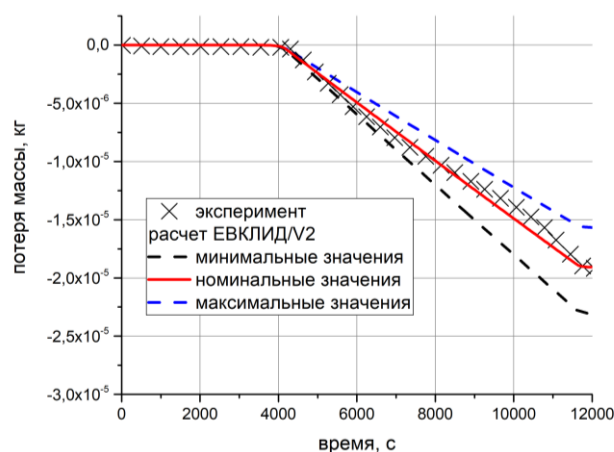


Рис. 5. Зависимость потери массы образца от времени для температуры 2373 К

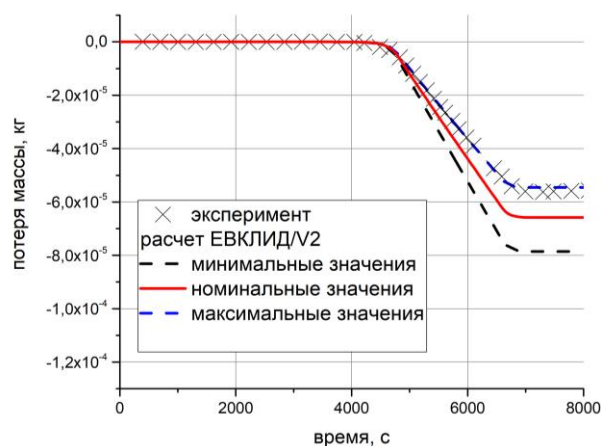


Рис. 6. Зависимость потери массы образца от времени для температуры 2573 К

Из представленных данных видно, что результаты расчета потери массы нитридом урана по коду ЕВКЛИД/V2 хорошо согласуются с экспериментальными данными. Максимальная погрешность для температур 2373 К и 2573 К составила 20 %.

2.2. Эксперименты по диссоциации СНУП топлива во ФГУП «РФЯЦ-ВНИИТФ им. академ. Е.И. Забабахина»

Термохимические исследования нитридных таблеток во ФГУП «РФЯЦ-ВНИИТФ им. академ. Е.И. Забабахина» проводили на стенде, схема которого представлена на рис. 7. В состав стенда входила вакуумно-компрессионная печь с рабочей температурой до 2300 °С. В печи размещалась ячейка из вольфрама, в которую помещался исследуемый образец.

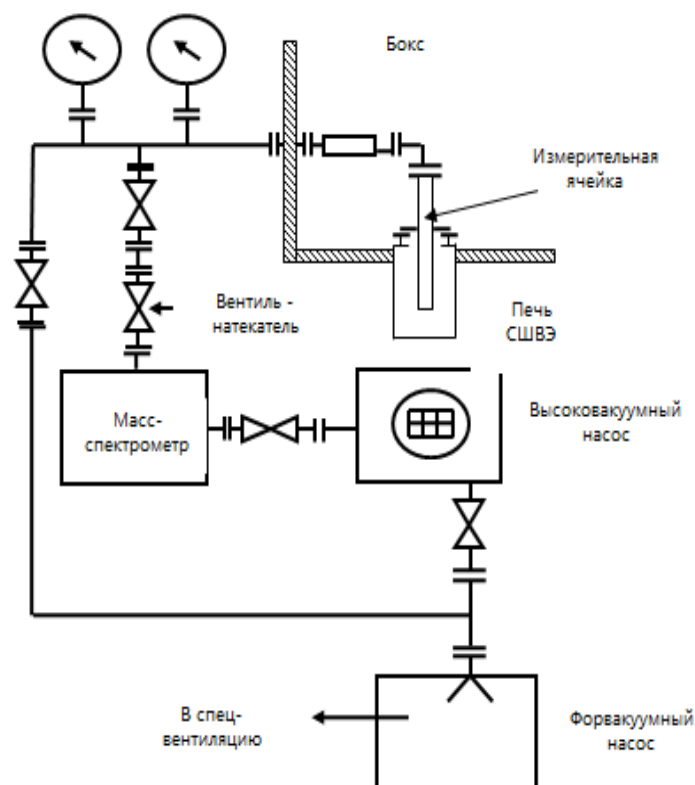


Рис. 7. Стенд для термохимических исследований

Исследования проводили на таблетках диаметром и высотой 7 мм состава $(U_{0,834}Pu_{0,136})N$ с разной плотностью, изготовленных во ФГУП «РФЯЦ-ВНИИТФ им. академ. Е.И. Забабахина» из нитридов, полученных методом прямого синтеза из металлов.

Таблетки подвергали нагреву до температур 1800, 1900, 2000 °С и изотермической выдержке при этих температурах в вакууме при остаточном давлении 10^{-3} мм рт. ст. и в среде аргона.

Нодализация схема для проведения расчетов состояла из цилиндрической теплопроводящей структуры из смешанного нитридного уран-плутониевого топлива $((U_{0,834}Pu_{0,136})N)$ высотой 7 мм и диаметром 7 мм, которая разбивалась на 14 ячеек по высоте и 4 ячейки по радиусу. На внешней и внутренней границах теплопроводящей структуры было задано тепловое граничное условие первого рода по температуре топлива, соответствовавшей экспериментально измеренной. Пример изменения температуры приведен на рис. 8.

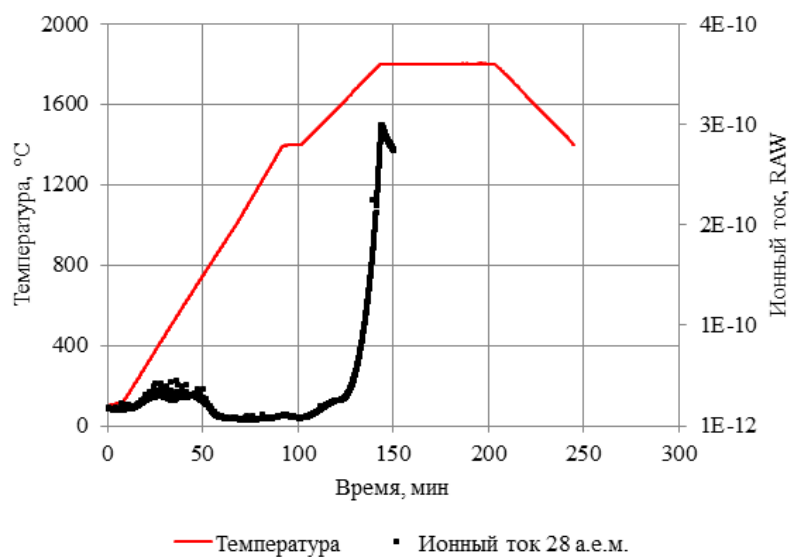


Рис. 8. График нагрева-охлаждения и изменения ионного тока при испытаниях таблетки $((U_{0,834}, Pu_{0,136})N, \rho=77\% \text{ т.п.})$

Результаты расчетов с варьированием входных параметров для экспериментов с плотностью 77 и 81 % от теоретической плотности представлены на рис. 9–10 соответственно. Диапазоны варьирования приведены ниже. Для анализа неопределенности было проведено 93 расчета с варьированием параметров.

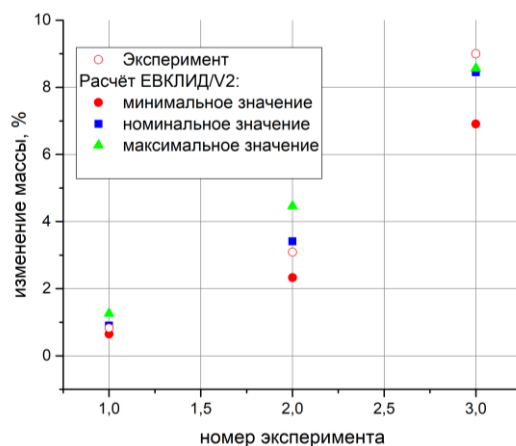


Рис. 9. Изменение массы образца в серии экспериментов, $\rho=77\% \text{ т.п.}$

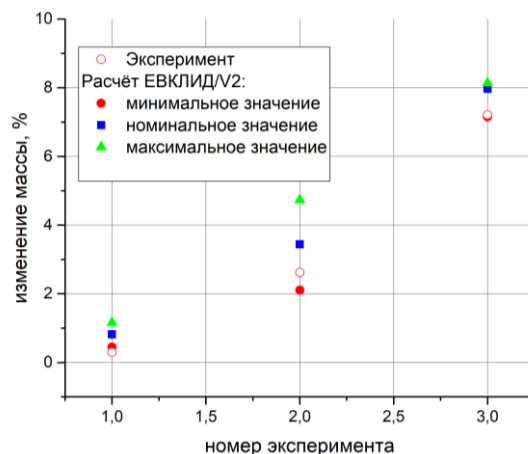


Рис. 10. Изменение массы образца в серии экспериментов, $\rho=81\% \text{ т.п.}$

Диапазоны варьирования входных параметров

Длина	$\pm 0,035$ мм
Диаметр	$\pm 0,005$ мм
Температура	± 8 °С
Давление насыщения азота	± 50 %
Давление насыщения урана	± 50 %
Давление насыщения плутония	± 50 %

По результатам анализа чувствительности было выяснено, что наибольшее влияние на результаты расчетов оказали такие параметры как давление насыщения азота и начальная температура таблетки. По результатам расчета была определена максимальная среднеарифметическая погрешность расчета, которая составила 30 %.

2.3. Эксперименты по диссоциации СНУП топлива в АО «ВНИИНМ»

В АО «ВНИИНМ» были проведены эксперименты на нитриде урана и смешанном нитридном уран-плутониевом топливе. Термогравиметрические исследования проводились в динамической атмосфере высокочистого гелия при скорости нагрева образца 30 °С/мин, с 30-минутной выдержкой. В процессе эксперимента фиксировали следующие параметры: изменение массы образца, скорость изменения массы образца, ионный ток регистрируемый масс-спектрометром, соответствующий массовому числу 28 (молекула азота N_2) и зависимость температуры образца от времени. Образцы нитрида урана помещали в вольфрамовый тигель и устанавливали на специальном держателе.

Рассматривалось топливо состава $(U_{0,5}Pu_{0,5})N$. Исследования проводились при температурах: 1800, 1900 и 2000 °С. Для расчетов по коду ЕВКЛИД/V2 была разработана нодализационная схема, состоящая из цилиндрической теплопроводящей структуры из СНУП топлива с заданной относительной плотностью 0,8 и содержанием плутония 0,5. Так как в эксперименте использовались осколки топливных таблеток, то высота моделируемых образцов подбиралась так, чтобы масса образцов соответствовала экспериментальным данным.

Использовалось разбиение теплопроводящей структуры на две радиальные и три аксиальные расчетные ячейки. На боковой поверхности цилиндра было задано граничное условие первого рода по температуре. Результаты расчета с анализом неопределенности в сравнении с результатами эксперимента приведены на рис. 11–13.

Диапазоны варьирования входных параметров

Давление насыщения азота	± 50 %
Давление насыщения урана	± 50 %
Давление насыщения плутония	± 50 %
Масса образца	± 1 %
Коэффициент массоотдачи	± 15 %

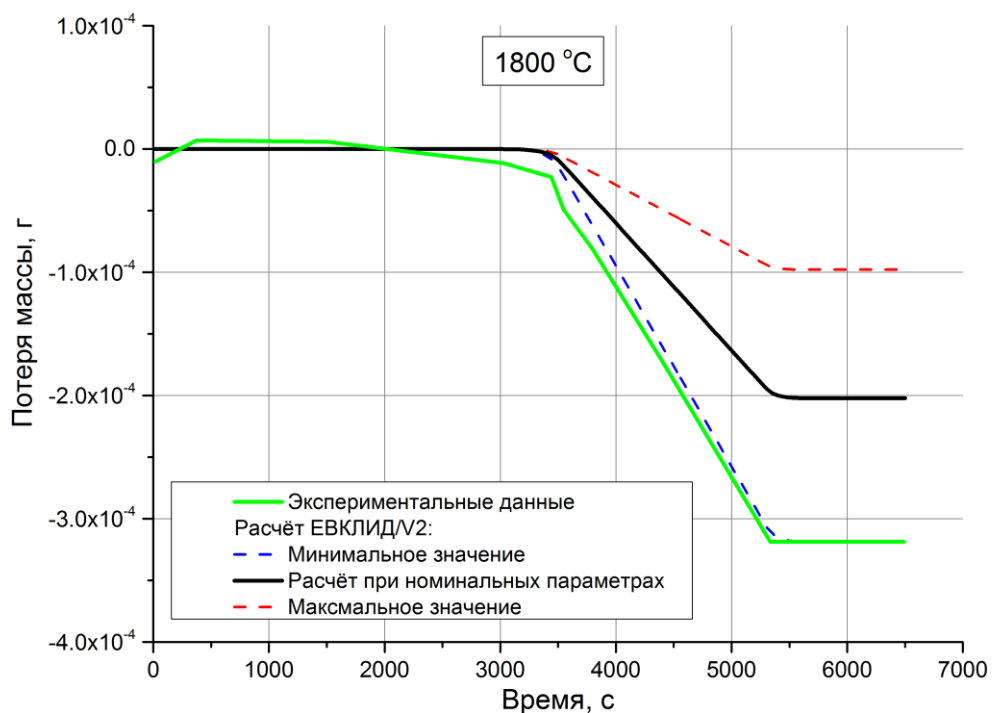


Рис. 11. Сравнение результатов расчета по коду ЕВКЛИД/V2 и эксперимента по изменению массы образца

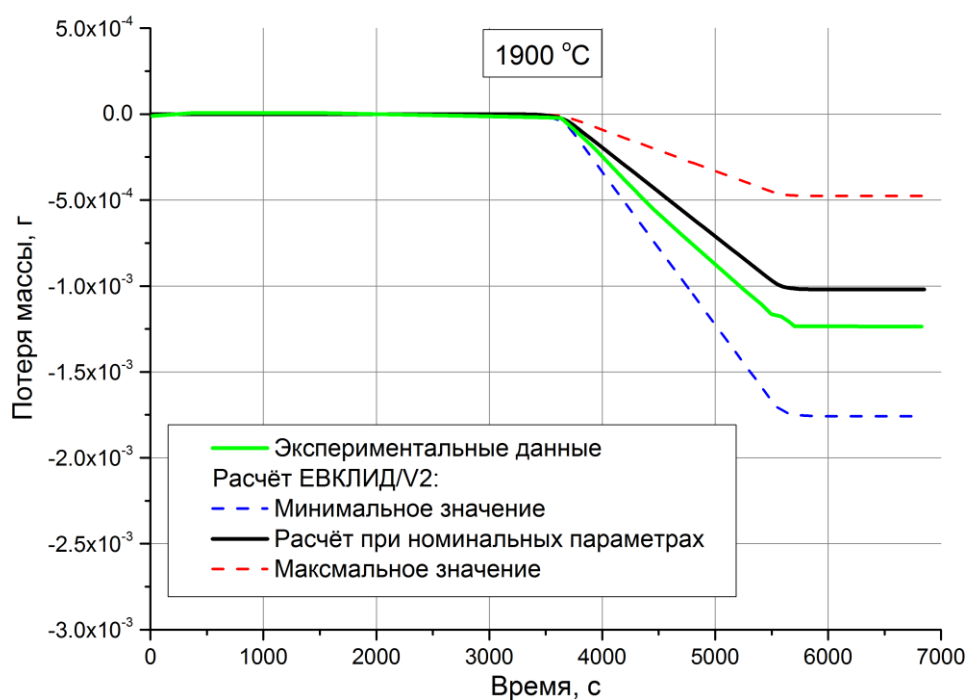


Рис. 12. Сравнение результатов расчета по коду ЕВКЛИД/V2 и эксперимента по изменению массы образца

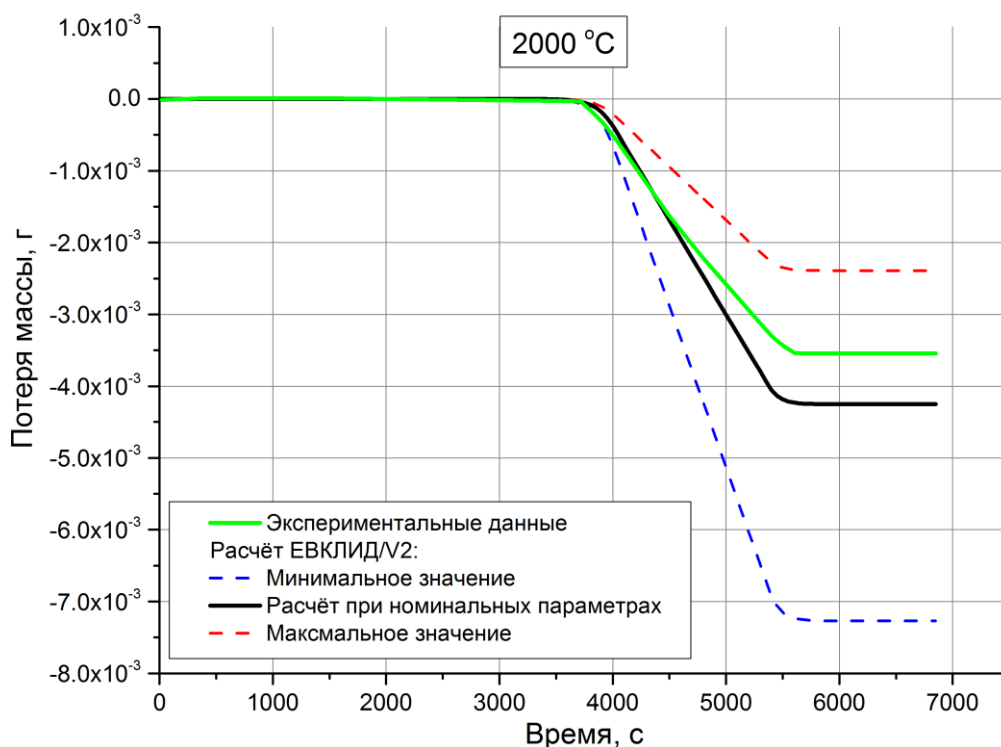


Рис. 13. Сравнение результатов расчета по коду ЕВКЛИД/V2 и эксперимента по изменению массы образца

Среднеарифметическая погрешность расчета для температуры 2073 К составила 20 %, для 2173 К – 25 % и для 2273 К – 30 %. По результатам проведения 93 расчетов с варьированием параметров было выяснено, что на результаты расчета наибольшее влияние оказали температура образцов и давление насыщения азота над поверхностью топлива.

Заключение

В докладе приведены результаты верификации и валидации моделей выхода продуктов деления из расплава UO_2 топлива и диссоциации нитридного топлива кода ЕВКЛИД/V2.

Матрица верификации и валидации для расчета выхода ПД из расплава UO_2 топлива содержит пять определяющих явлений, четыре аналитических теста и данные, полученные на двух экспериментальных установках. Разработанные аналитические тесты позволяют проверить работу реализованных моделей выхода летучих и нелетучих ПД из расплава, а также распределения и перераспределения ПД между фазами (оксидной и металлической) в атмосфере над расплавом. По результатам расчета аналитических тестов и данных, полученных на экспериментальной установке в Ок-Ридже, проведена доработка численных моделей выхода ПД из расплава. В частности, была доработана модель выхода летучих ПД, которая позволила учесть выход летучих ПД как за счет переноса ПД вместе с пузырями, так и за счет испарения с зеркала расплава. Также учтено, что в пузырях может существовать не один, а множество летучих ПД. Кроме того, был ускорен алгоритм работы программы за счет использования нового итерационного метода.

С использованием доработанных методик проведен расчет эксперимента по выходу летучих и нелетучих ПД из выгоревших таблеток диоксида урана при их плавлении. В результате сравнения расчетных и экспериментальных данных получена оценка

абсолютной погрешности расчета доли выхода для летучих и нелетучих ПД из расплава. Для летучих ПД она составила 17,1 %, а для нелетучих – 4,7 %.

Для расширения функциональности интегрального кода ЕВКЛИД/V2 в тяжелоаварийный модуль SAFR/V1 были интегрированы модели, учитывающие диссоциацию нитридного топлива при высоких температурах.

Для оценки возможности кода моделировать процессы, важные с точки зрения безопасности РУ с а.з. с нитридным топливом, разработана матрица верификации и валидации. Подготовлены аналитические тесты и проведена систематизация результатов экспериментальных исследований по диссоциации нитридного топлива, выполненных в различных организациях России.

Аналитические тесты включают тесты по проверке корректности решения тепловой задачи в нитридном топливе при отсутствии диссоциации и при ее наличии, по определению скорости образования расплава урана и скорости потери массы, а также по вычислению скорости движения расплава урана.

Для валидации интегрального кода ЕВКЛИД/V2 проведено обобщение экспериментальных данных по диссоциации нитридного топлива и создан актуализированный перечень экспериментов. В частности обобщены данные, полученные в трех исследовательских центрах: НИЯУ МИФИ, АО «ВНИИНМ» и во ФГУП «РФЯЦ-ВНИИТФ им. академ. Е.И. Забабахина». По результатам моделирования экспериментов по диссоциации нитрида урана, проведенных в НИЯУ МИФИ, получена погрешность расчета величины потери массы нитридом урана, равная 20 %. По результатам моделирования экспериментов по диссоциации нитридного топлива, проведенных в АО «ВНИИНМ» и во ФГУП «РФЯЦ-ВНИИТФ им. академ. Е.И. Забабахина», для СНУП топлива получена погрешность расчета потери массы, равная 30 %. Таким образом, показано, что используемые модели позволяют с удовлетворительной точностью описывать процессы, сопровождающие диссоциацию нитрида урана и СНУП топлива различного состава.

Список литературы

1. Бутов А.А., Жданов В.С., Климонов И.А. и др. Физические модели для расчета разрушений твэла и активной зоны реактора с жидкометаллическим теплоносителем, реализованные в коде ЕВКЛИД/V2 // Теплоэнергетика. 2019. № 5. с.5–15
2. Усов Э.В., Бутов А.А., Чухно В.И. и др. Моделирование плавления твэла быстрого реактора и затвердевания образующегося расплава с помощью модуля SAFR/V1 интегрального кода ЕВКЛИД/V2// Атомная энергия. 2018. т.124. №3. с. 123–126.
3. Алипченков В.М., Анфимов А.М., Афремов Д.А. и др. Базовые положения, текущее состояние разработки и перспективы дальнейшего развития теплогидравлического расчетного кода нового поколения HYDRA-IBRAE/LM для моделирования реакторных установок на быстрых нейтронах. Теплоэнергетика, 2016, № 2, с. 54–64
4. Browning W.E., Miller C.E., Shields R.P., Roberts B.F. Release of fission products during in-pile melting of UO₂ // Nucl. Sci. Eng. 1964. v 18. pp. 151–162.
5. Parker G.W., Creek G.E., Barton C.J., Martin W.J., Lorenz R.A. Out-of-pile studies of fission-product release from overheated reactor fuels at ORNL, 1955 – 1965. ORNL-3981. 1967. 129 p.
6. Olson W.M., Mulford R.N.R. The Decomposition Pressure and Melting Point of Uranium Mononitride // The Journal of Physical Chemistry. 1963. V. 67. No. 4. P. 952–954.
7. Walter, C.M., Kelman, L.R. The interaction of iron with molten uranium // J. Nucl. Mater. 1966. v. 20. i. 3. 314–322.
8. Lunev A.V., Mikhalechik V.V., Tenishev A.V. and Baranov V.G. Kinetic and microstructural

- studies of thermal decomposition in uranium mononitride compacts subjected to heating in high-purity helium // J. Nucl. Mat. 2016. V. 475. P. 266.
9. Baranov V.G., Lunev A.V., Mikhalechik V.V., et. all. High temperature behavior of simulated mixed nitrides // IOP Conf Series: Materials Science and Engineering. 2016. V 130. P. 012022.
 10. Baranov V.G., Tenishev A.V., Kuzmin R.S., et. all. Thermal stability investigation technique for uranium nitride // Ann. Nucl. Energy. 2014. V. 87(2). P. 784.
 11. Mikhalechik V.V., Tenishev A.V., Baranov V.G. and Kuzmin R.S. High temperature uranium nitride decomposition // Advanced Material Research. 2014. V. 1040. P. 47.
 12. Кириллов П.Л., Терентьева М.И., Денискина Н.Б. Теплофизические свойства материалов ядерной техники. М: ИздАТ. 2007. 200 с.