

КУЛЬТУРА БЕЗОПАСНОСТИ И
СОЦИАЛЬНО-ПРАВОВЫЕ АСПЕКТЫ РАЗВИТИЯ
ТЕРРИТОРИЙ РАЗМЕЩЕНИЯ ОБЪЕКТОВ
АТОМНОЙ ОТРАСЛИ

УДК 539.17.01

ОБ ИЗОТОПНОМ СОСТАВЕ ВОДОРОДА И ЕГО
ТРАНСФОРМАЦИИ В ПОЛЯХ ТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ В
АКТИВНЫХ ЗОНАХ РЕАКТОРОВ ТИПА ВВЭР

© 2018 П.А. Пономаренко, М.А. Фролова, И.Г. Тананаев, Ю.С. Чичерина

Севастопольский государственный университет, Севастополь, Россия

Статья посвящена рассмотрению качественного и количественного состава образующихся радионуклидов при облучении ядер водорода, входящего в состав воды первого контура водо-водяного энергетического реактора тепловыми нейтронами.

Ключевые слова: атомная энергетика, ядерный реактор, анализ активации, теплоноситель, активная зона, первый контур, тритий, число ядер, тепловые нейтроны, ВВЭР.

Поступила в редакцию: 29.08.2018

Введение

Вода, как самый мощный источник водорода на Земле, широко и в больших количествах распространена в природе [5, 7, 8]:

- 71% поверхности Земли покрыто водой;
- биосфера Земли содержит 1130 км³ воды;
- в атмосфере Земли постоянно находятся 12700 км³ воды;
- в теле стандартного человека (масса 70 кг, рост 170 см) вода составляет 65-70 % его массы.

Кроме этого чистый газ водород находится в атмосфере Земли в количестве $3,5 \cdot 10^{-6}$ % от массы атмосферы, что составляет $1,75 \cdot 10^8$ т.

Водород имеет высокое эффективное сечение рассеивания для нейтронов реакторного спектра, равное $\sigma_S^H = 38$ барн ($\sigma_S^C = 4,8$ барн, $\sigma_S^{\text{тяж.воды}} = 10,5$ барн). Поэтому это сечение является основополагающим и для $\sigma_S^{H_2O}$. Сечение рассеяния для таких нейтронов у обычной воды составляет $\sigma_S^{H_2O} = 46$ барн.

Вот почему обычная вода, как среда, содержащая большое количество водорода, широко распространённая в природе, легкодоступна, и хорошо изучена, является хорошим замедлителем нейтронов и широко используется в реакторах ВВЭР-440, ВВЭР-1000 и ВВЭР-1200.

Замедляющая способность, как основной параметр, характеризующий замедлитель, оценивается выражением:

$$\sigma_S^{\text{тяж.воды}} \cdot N_{\text{тяж.воды}} \cdot \xi_{\text{тяж.воды}}$$

где N – число ядер (молекул) в 1 см³;

ξ – средний логарифмический декремент потери энергии нейтрона при одном столкновении с атомным ядром среды (справочная величина):

$$\xi = \ln \frac{E_{\text{нейтр.}}^{\text{до столкн.}}}{E_{\text{нейтр.}}^{\text{после столкн.}}} [H],$$

где E – энергия.

Замедляющая способность воды самая высокая среди всех применяемых замедлителей и составляет $1,46 \text{ см}^{-1}$. Для сравнения замедляющая способность углерода составляет $0,061 \text{ см}^{-1}$, а тяжелой воды – $0,2 \text{ см}^{-1}$.

Обычная вода является и хорошим теплоносителем. Её теплоёмкость при обычных условиях (давлении 760 мм рт.ст. и температуре 20°C) составляет $C_p^{\text{H}_2\text{O}} = 4,19 \frac{\text{кДж}}{\text{кг}\cdot\text{градус}}$ [10]. Для сравнения: $C_p^{\text{H/стали}} = 0,5 \frac{\text{кДж}}{\text{кг}\cdot\text{градус}}$; $C_p^{\text{Al}} = 4,19 \frac{\text{кДж}}{\text{кг}\cdot\text{градус}}$; $C_p^{\text{Zr}} = 0,29 \frac{\text{кДж}}{\text{кг}\cdot\text{градус}}$; $C_p^{\text{Hg}} = 0,14 \frac{\text{кДж}}{\text{кг}\cdot\text{градус}}$; $C_p^{\text{Pb}} = 0,125 \frac{\text{кДж}}{\text{кг}\cdot\text{градус}}$.

Именно поэтому обычная вода используется и в качестве теплоносителя в первом контуре [2], и является постоянной составляющей активной зоны исследовательских водо-водяных и энергетических реакторов типа ВВЭР.

Следовательно, вода постоянно подвергается воздействию нейтронов тепловой энергии ($0,001 - 0,5 \text{ эВ}$ [6]) высокой интенсивности (большой плотности потока нейтронов ($10^{13} - 10^{14}$) $\frac{\text{H}}{\text{см}^2\cdot\text{с}}$), в результате которого могут генерироваться радионуклиды – загрязнители атмосферы, гидросферы, а также радионуклиды природных химических элементов, важных составляющих представителей объектов биосферы и, в частности, человека.

Данная статья и посвящена рассмотрению качественного и количественного состава образующихся радионуклидов при облучении ядер водорода, входящего в состав воды, тепловыми нейтронами и оценке скорости образования радионуклида водорода трития, в принципе, опасного для объектов биосферы.

Постановка задачи

Природный водород, входящий в состав воды, состоит из двух стабильных изотопов водорода: 99,985% ^1_1H , ядро которого состоит из одного протона, и 0,015% дейтерия (^2_1H или D), ядро которого состоит из одного протона и одного нейтрона [4]. Очень редко в природе встречается третий изотоп водорода тритий (^3_1H или T), ядро которого состоит из одного протона и двух нейтронов. Тритий радиоактивен с периодом полураспада $T_{0,5}=12,262$ года [6], является чистым бета излучателем, максимальная энергия бета частиц составляет 0,018 МэВ, средняя – 0,006 МэВ.

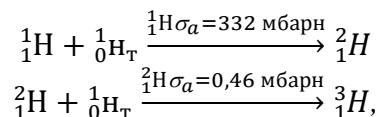
Водород, а, следовательно, его изотоп тритий в составе природной пропорции входит в состав всех биотканей. При нахождении трития в составе биоткани его бета частицы, как продукт распада, облучают соседние нормально функционирующие биомолекулы и путем ионизации разрушает их нормальные связи. В результате в клетке, состоящей из биомолекул, наступает поломка, и клетка перестает нормально функционировать. Создаются условия для зарождения и развития болезнетворных клеток.

Эффективная энергия бета частиц трития согласно Международным Рекомендациям по предельно допустимым дозам внутреннего облучения (1960г.) составляет 0,01 МэВ на распад, которая представляет собой величину полной энергии, ушедшей на разрушение связей в нормальных молекулах биоткани [5].

В условиях Земли на 10^{18} ядер водорода до испытания ядерного и термоядерного оружия приходилось примерно одно ядро трития (это была природная пропорция), а

масса всего трития в условиях Земли составляла примерно 3 кг, его активность была около 30 МКи. 93% этого трития находились в гидросфере, 7% – в воздухе [1]. Но проводившиеся в 1954-1958 гг. и в 1961-1962гг. испытания ядерного и термоядерного оружия (это были пики испытаний) увеличили содержание трития более чем в 100 раз, так взрыв одного ядерного боеприпаса мощностью в 1Мт тротила увеличивал земную природную активность трития на 7,03 кКи, а взрыв одного термоядерного боеприпаса в 1 Мт – на 20МКи [3].

Физические модели, дающие качественную картину трансформации ядер водорода, взаимодействия протия, дейтерия и трития с тепловыми нейтронами, имеют вид:



где σ_a – эффективное микроскопическое поперечное сечение поглощения тепловых нейтронов соответствующим ядром, барн;

${}^1_0\text{H}_T$ – обозначение теплового нейтрона.

Математические модели, дающие количественную картину трансформации ядер, составленные по приведенным физическим моделям, имеют вид:

$$\begin{cases} \frac{dN_{H-1}}{dt} = -\sigma_a^{H-1} \cdot N_{H-1} \cdot \varphi_{\text{н.т}} & (1) \\ \frac{dN_{H-2}}{dt} = -\sigma_a^{H-1} \cdot N_{H-1} \cdot \varphi_{\text{н.т}} - \sigma_a^{H-2} \cdot N_{H-2} \cdot \varphi_{\text{н.т}} & (2) \\ \frac{dN_{H-3}}{dt} = -\sigma_a^{H-2} \cdot N_{H-2} \cdot \varphi_{\text{н.т}} - \sigma_a^{H-3} \cdot N_{H-3} \cdot \varphi_{\text{н.т}} - N_{H-3} \cdot \lambda_{H-3} & (3) \end{cases}$$

где N_{H-1} , N_{H-2} , N_{H-3} – соответственно, содержание (концентрация) ядер протия, дейтерия и трития в 1 см^3 рассматриваемого вещества (чистый водород, вода, метан, биоткань и др.);

σ_a^{H-1} , σ_a^{H-2} , σ_a^{H-3} – соответственно, эффективные микроскопические сечения поглощения тепловых нейтронов ядрами протия, дейтерия и трития, см^2 ;

$\varphi_{\text{н.т}}$ – плотность потока тепловых нейтронов, $\frac{\text{н}}{\text{см}^2 \cdot \text{с}}$;

$\frac{dN_{H-1}}{dt}$, $\frac{dN_{H-2}}{dt}$, $\frac{dN_{H-3}}{dt}$ – соответственно, скорости изменения концентрации ядер протия, дейтерия и трития в нейтронном поле, $\frac{\text{ядер}}{\text{см}^3 \cdot \text{с}}$;

λ_{H-3} – постоянная распада трития, равная $1,79 \cdot 10^{-9} \text{ с}^{-1}$.

Анализ моделей

Различие в микроскопических сечениях поглощения протия и дейтерия составляет около трех порядков, сечение поглощения ядром трития теплового нейтрона в доступных авторам справочниках отсутствует.

Скорость убыли концентрации протия пропорционально произведению:

$$N_{H-1} \cdot \varphi_{\text{н.т}}$$

$\varphi_{\text{н.т}}$ изменяется, как правило, в пределах $10^{13} - 10^{14} \frac{\text{н}}{\text{см}^2 \cdot \text{с}}$. N_{H-1} для воды составляет (используем формулу Авогадро):

$$N_{H-1}^{H_2O} = X \frac{N_a}{M} \cdot \rho^{H_2O} = 2 \cdot 0,9985 \cdot \frac{N_a}{18} \cdot 1 = 6,7 \cdot 10^{22} \frac{\text{ядер}}{\text{см}^3}$$

где N_a – постоянная Авогадро;
 M – молярная масса;
 ρ^{H_2O} – плотность воды.

В принципе число ядер протия в объеме воды $N_{H-1}^{H_2O}$ зависит от плотности воды, которая в энергетических реакторах ВВЭР изменяется от $1 \frac{\text{г}}{\text{см}^3}$ (для холодного реактора) до $0,7 \frac{\text{г}}{\text{см}^3}$ (для работающего на мощности реактора) [10]. После подстановки всех величин в формулу (1) скорость изменения концентрации ядер протия в I контуре ВВЭР будет иметь порядок $10^{12} \frac{\text{ядер}}{\text{см}^3 \cdot \text{с}}$, а это согласно (2) скорость генерации дейтерия. Изменение же концентраций ядер протия в воде во времени в нейтронном поле тепловых нейтронов при плотности потока $\varphi_{\text{н.т}}$ будет иметь вид:

$$N_{H-1}^{H_2O}(t) = N_{H-1_0}^{H_2O} \cdot e^{-\sigma_a^{H-1} \cdot \varphi_{\text{н.т}} \cdot t_{\text{обл}}}$$

Анализ формулы (2) показывает, что, $\sigma_a^{H-1} > \sigma_a^{H-2}$ примерно на три порядка, а начальные концентрации ядер ^1_1H и ^2_1H отличаются на четыре порядка, можно считать, что скорость генерации дейтерия больше скорости его убыли примерно на семь порядков. Действительно скорость генерации Д составляет $1,11 \cdot 10^{12} \frac{\text{ядер}}{\text{см}^3 \cdot \text{с}}$, скорость убыли – $1,8 \cdot 10^5 \frac{\text{ядер}}{\text{см}^3 \cdot \text{с}}$.

Следовательно, концентрация дейтерия в теплоносителе-замедлителе реактора типа ВВЭР только растет со скоростью примерно $1,11 \cdot 10^{12} \frac{\text{ядерД}}{\text{см}^3 \cdot \text{с}}$. Скорость образования трития в I контуре ВВЭР растет со скоростью $2,5 \cdot 10^5 \frac{\text{ядерТ}}{\text{см}^3 \cdot \text{с}}$. Скорость убыли трития, даже если допустить, что $\sigma_a^T = 100$ барн, что невероятно, составит примерно $5 \cdot 10^{-4} \frac{\text{ядер}}{\text{см}^3 \cdot \text{с}}$. Значит, количество трития в I контуре ВВЭР всё-таки тоже будет расти со скоростью порядка $3 \cdot 10^5 \frac{\text{ядер}}{\text{см}^3 \cdot \text{с}}$.

Таким образом, все работающие ВВЭР России, в год могут генерировать вполне определенное количество ядер трития. Оценка этого количества должна производиться с учетом особенностей генерации трития в I контуре ВВЭР, которые заключаются в следующем: нейтронное поле есть только в активной зоне, во всех остальных элементах первого контура нейтронные поля по сравнению с нейтронными полями в активной зоне ($\varphi_{\text{АЗ}} = 10^{13} - 10^{14} \frac{\text{н}}{\text{см}^2 \cdot \text{с}}$) практически отсутствуют, и генерацией трития в ней можно пренебречь. Следовательно, тритий согласно (3) генерируется только когда теплоноситель (H_2O) находится в активной зоне.

Обозначим время пребывания теплоносителя в активной зоне через $t_{\text{АЗ}}$, а время одного цикла прохождения теплоносителя по контуру – $t_{\text{к}}$.

Тогда образовавшееся количество трития в результате первого цикла прохождения теплоносителя через активную зону в течение всей последующей работы реактора, будет только распадаться. Пополнение трития в теплоносителе будет производиться только за каждый очередной цикл активации дейтерия в активной зоне. С учетом рассмотренных особенностей накопления трития в I контуре ВВЭР за всё время работы с одной загрузкой ядерного топлива, выражение для активности этого трития приведено в [11] и имеет вид:

$$A_T = \frac{dN_{H-3}}{dt} \cdot (1 - e^{-\lambda_{H-3} t_{\text{к}}}) \cdot e^{-\lambda_{H-3} t_{\text{к}}} \cdot \left[\frac{1 - e^{-(n-1)\lambda_{H-3} t_{\text{к}}}}{1 - e^{-\lambda_{H-3} t_{\text{к}}}} \right] \frac{\text{БК}}{\text{см}^3} \quad (4)$$

где A_T – активность образовавшегося трития в 1 см³ теплоносителя реактора типа ВВЭР за 10 месяцев работы на полной мощности, $\frac{\text{Бк}}{\text{см}^3}$;

$\frac{dN_{H-3}}{dt}$ – первое слагаемое уравнения (3) для соответствующей реакторной установки, $\frac{\text{яд}}{\text{см}^3 \text{с}}$;

$n = \frac{10 \text{ месяцев}}{t_k}$ – безразмерное время работы соответствующей реакторной установки на полной мощности.

Для оценки t_{A3} и t_k воспользуемся основными физико-техническими характеристиками реакторов ВВЭР-440 и ВВЭР-1000 [12].

Тогда упомянутые времена будут иметь следующие значения:

- время прохождения теплоносителя через активную зону реактора типа ВВЭР-440 $t_{A3}^{\text{ВВЭР-440}} = 0,6 \text{ с}$; $t_k^{\text{ВВЭР-440}} = 18 \text{ с}$;
- время прохождения теплоносителя через активную зону реактора типа ВВЭР-1000 $t_{A3}^{\text{ВВЭР-1000}} = 0,7 \text{ с}$; $t_k^{\text{ВВЭР-1000}} = 14 \text{ с}$.

Подставив соответствующие величины в (4) для ВВЭР-440 и ВВЭР-1000, получим удельную активность ($\frac{\text{Бк}}{\text{см}^3}$) теплоносителя, создаваемую тритием, для соответствующей реакторной установки за 10 месяцев её работы на полной мощности.

$$A_{\text{уд}}^{\text{ВВЭР-440}} = 467 \frac{\text{Бк}}{\text{см}^3}; A_{\text{уд}}^{\text{ВВЭР-1000}} = 1116 \frac{\text{Бк}}{\text{см}^3}$$

Общая активность воды I контура соответствующей реакторной установки, создаваемой тритием, составит:

$$A_{\text{уд}}^{\text{ВВЭР-440}} = 9,34 \cdot 10^{10} \text{ Бк.}$$

$$A_{\text{уд}}^{\text{ВВЭР-1000}} = 3,34 \cdot 10^{11} \text{ Бк.}$$

В выполненных оценках снижение активности трития за 10 месяцев работы реакторной установки не учитывалось, т.к. период полураспада трития составляет 12,3 года.

Таким образом, при соблюдении всех мер безопасности на АЭС при обращении с радиоактивной водой первого контура, создаваемой тритием, получаемым путем трансформации природного водорода в первом контуре в нейтронном поле реакторных установок типа ВВЭР, величина такой активности не представляет серьезной опасности для окружающей среды.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Филипов, Е.М. Радиационная экология [Текст] / Е.М. Филипов. – Севастополь, 2003. – 241 с.
2. Тевлин, С.А. АЭС с реакторами ВВЭР-1000 [Текст] / С.А. Тевлин. – Москва : Издательский дом МЭИ, 2008. – 358 с.
3. Козлов, В.Ф. Справочник по радиационной безопасности [Текст] / В.Ф. Козлов. – Москва : Энергоатомиздат, 1991. – 352 с.
4. Гордеев, И.В. Справочник по ядерно-физическим константам для расчета реакторов [Текст] / И.В. Гордеев, Д.А. Кардашов, А.В. Малышев. – Москва : Атомиздат, 1960. – 280 с.
5. Закутинский, Д.И. Справочник по токсикологии радиоактивных изотопов [Текст] / Д.И. Закутинский, Ю.Д. Парфенов, Л.Н. Селиванова. – Москва : Медгиз, 1962. – 116 с.
6. Справочник по ядерной физике [Текст] / Под редакцией Л.А. Арцимовича. – Москва : Гос. изд-

- во физ.-мат. лит-ры, 1963. – 632 с.
7. *Дерпгольц, В.Ф.* Мир воды [Текст] / В.Ф. Дерпгольц. – Ленинград : Недра, 1979. – 254 с.
 8. *Тельдешин, Ю.* Диагностика окружающей среды радиоаналитическими методами [Текст] / Ю. Тельдешин, Ю.В. Яковлев, Г.Н. Билимович. – Москва : Энергоатомиздат, 1985. – 193 с.
 9. *Овчинников, Ф.Я.* Эксплуатационные режимы водо-водяных энергетических реакторов [Текст] / Ф.Я. Овчинников, В.В. Семенов. – Москва : Атомиздат, 1977. – 359 с.
 10. *Чиркин, В.С.* Теплофизические и ядерные свойства материалов, применяемых в реакторостроении [Текст] / В.С. Чиркин. – Москва : Атомиздат, 1968. – 485 с.
 11. *Барабанов, С.А.* Основы радиационной безопасности [Текст] / С.А. Барабанов, П.И. Залевский, П.А. Пономаренко. – Севастополь : СВВМИУ, 1973. – 176 с.
 12. *Семенов, В.В.* Основные физико-технические характеристики реакторных установок ВВЭР [Текст] / В.В. Семенов. – Москва : ИАЭ им. И. В. Курчатова, 1979. – 43 с.
 13. *Климов, А.Н.* Ядерная физика и ядерные реакторы [Текст] / А.Н. Климов – Москва : Атомиздат, 1971. – 464 с.

REFERENCES

- [1] Filipov E.M. Radiacionnaya ekologiya [Radiation Ecology]. Sevastopol., 2003. 241 p. (in Russian).
- [2] Tevlin S.A. AES s reaktorami VVER-1000 [NPP with WWER-1000 Reactors]. Izdatelsky' dom MEI [MEI Publishing House]. Moscow. MEI Publishing House 2008. 358 p. (in Russian).
- [3] Kozlov V.F. Spravochnik po radiacionnoy' bezopasnosti [Handbook of Radiation Safety]. Moscow. Energoatomizdat. 1991. 352 p. (in Russian).
- [4] Gordeev I.V. Spravochnik po yaderno-fizicheskim konstantam dlya rascheta reaktorov [Handbook of Nuclear and Physical Constants for Reactor Calculation]. Moscow. Atomizdat. 1960. 280 p. (in Russian).
- [5] Zakutinsky' D.I. Spravochnik po toksikologii radioaktivnih izotopov [Handbook of Toxicology of Radioactive Isotopes]. Moscow. State Publishing House of Medical Equipment. 1962. 116 p. (in Russian).
- [6] Arcimovich L.A. Spravochnik po yadernoy' fizike [Handbook of Nuclear Physics]. Gosudarstvennoe izdatelstvo fiziko-matematicheskoy' literature. [Moscow. State Publishing House of Physical and Mathematical Literature]. 1963. 632 p. (in Russian).
- [7] Dergopolc V.F. Mir vody' [Water World]. Leningrad. Nedra. 1979. 254 p. (in Russian).
- [8] Teldeshi Yu Diagnostika okrudjaushey' sredy' radioanaliticheskimi metodami [Diagnosis of Environment, Radioanalytical Methods]. Moscow. Energoatomizdat. 1985. 193 p. (in Russian).
- [9] Ovchinnikov F.Ya Ecspluatacionnie rejimy' vodo-vodyanih energiticheskikh reaktorov [Operating Modes of WWER]. Moscow. Atomizdat. 1977. 359 p. (in Russian).
- [10] Chirkin V.S. Teplofizicheskie i yadernie svoystva materialov, primenyaemih v reaktorostroenii [Thermophysical and Nuclear Properties of Materials Used in Reactor Construction]. Moscow. Atomizdat. 1968. 485 p. (in Russian).
- [11] Barabanov S.A. Osnovy' radiacionnoy' bezopasnosti [Basics of Radiation Safety]. Sevastopol'skoe visshее voenno-morskoe uchilische [Sevastopol Higher Naval Engineering School]. Sevastopol. SVVMIU. 1973. 176 p. (in Russian).
- [12] Semenov V.V. Osnovnie fiziko-tehnicheskie harakteristiki reactornih ustanovok VVER [Basic Physical and Technical Characteristics of WWER Reactor Plants]. Institut atomnoy energii im. I.V. Kurchatova [I. V. Kurchatov IAE]. Moscow. IAE im. I. V. Kurchatov. 1979. 43 p. (in Russian).
- [13] Klimov A.N. Yadernaya fizika i yadernie reaktory' [Nuclear Physics and Nuclear Reactors]. Moscow. Atomizdat. 1971. 464 p. (in Russian).

The Isotope Composition of Hydrogen and Its Transformation in the Fields of Thermal Neutrons in the WWER-type Reactor Active Zones

P.A. Ponomarenko¹, M.A. Frolova², I.G. Tananaev³, Y.S. Chicherina⁴

Sevastopol State University, Kurchatov, St., 7, Sevastopol, Russia, 299016

¹ ORCID iD: 0000-0003-2866-511

WoS Researcher ID: U-9018-2017

e-mail: ppa4493@gmail.com

² ORCID iD: 0000-0001-9178-0513

WoS Researcher ID: U-6093-2017

e-mail: frolova-85@mail.ru

³ *ORCID iD: 0000-0002-2159-8182*

WoS Researcher ID: S-1733-2017

e-mail: geokhi@mail.ru

⁴ *ORCID iD: 0000-0002-9169-4399*

WoS Researcher ID: M-5032-2018

e-mail: chicherinajulia@mail.ru

Abstract – The article considers qualitative and quantitative composition of formed radionuclides under irradiation of hydrogen nuclei, which is a part of the water of the first circuit of the water-water power reactor, thermal neutrons and evaluation of the rate of formation of hydrogen radionuclide tritium, dangerous to the objects of the biosphere.

Keywords: nuclear energy, nuclear reactor, activation analysis, coolant, the active zone, first circuit, tritium, the number of nuclei, thermal neutrons, WWER.