

Построение и верификация модели формирования загрязнения производственного помещения при аварийном выбросе газообразного гексафторида урана

77-30569/306859

02, февраль 2012

Бабенко С.П., Бадьин А.В.

УДК 53.072; 504.5

МГТУ им. Н.Э. Баумана;
МГУ им. М.В. Ломоносова
babenkosp@mtu-net.ru
badyin@phys.msu.ru

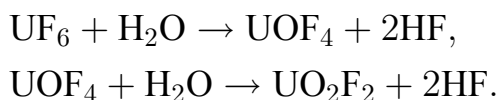
Гексафторид урана (ГФУ, UF_6) является основным рабочим веществом в технологиях обогащения природного урана изотопом U^{235} . С этими технологиями неразрывно связаны перспективы развития атомной энергетики, которой в настоящее время в России, как и во всех цивилизованных странах, уделяется очень большое внимание.

Про гексафторид урана хорошо известно, что, попадая в организм человека, он представляет большую токсическую и радиологическую опасность [1]. Так как экспериментальное определение любых характеристик, связанных с аварийным выбросом токсичных веществ, представляет большие трудности, то, для количественной оценки вредного воздействия упомянутых веществ на организм человека, необходимо иметь расчетные методы определения этих характеристик.

В настоящей работе рассматривается вопрос о создании модели формирования загрязнения производственного помещения при аварийном выбросе газообразного гексафторида урана и вопрос о верификации этой модели.

Рассматривается некоторая область Q в трехмерном координатном пространстве и некоторый промежуток (t_0, t_1) на временной оси. Вещество UF_6 (газ) поступает в каждую точку области Q , и сразу же начинается про-

цесс гидролиза, протекающий по схеме [2, 3]:



Вещества UO_2F_2 , HF переходят из газообразного состояния в состояние аэрозоля (за счет процесса нуклеации, [4]) и, за короткое время ($\Delta t \approx 50$ с, [5]), в области Q появляются следующие вещества: UF_6 (газ), UOF_4 (газ), UO_2F_2 (газ), HF (газ), UO_2F_2 (аэрозоль), HF (аэрозоль). Они выводятся из области Q за счет воздухообмена (предполагается, что частицы каждого вещества исчезают в каждой точке области), диффузионно оседают на границу области Q , дрейфуют в пространстве (под действием силы тяжести и силы сопротивления среды или вместе с потоком воздуха).

Систему уравнений непрерывности для интересующих нас веществ можно записать в виде [6]:

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial t} n_k &= D_k \Delta n_k - (\vec{v}_k, \text{grad}(n_k)) + \sum_{m=1}^N a_{k,m} n_m + F_k(\vec{x}, t), \\ k &= \overline{1, N}, \quad \vec{x} \in Q, \quad t \in (t_0, t_1).\end{aligned}$$

Здесь N — число интересующих нас веществ в составе газов и аэрозолей; $n_k(\vec{x}, t)$ — концентрация молекул вещества с номером k в точке $\vec{x}$ в момент времени t ; D_k — коэффициент диффузии частиц вещества с номером k (предполагается, что D_k не зависит от $\vec{x}, t$); $\vec{v}_k$ — скорость дрейфа частиц вещества с номером k (предполагается, что $\vec{v}_k$ не зависит от $\vec{x}, t$); $\{a_{k,m}\}_{k,m=\overline{1,N}}$ — постоянные, описывающие процессы гидролиза, нуклеации и воздухообмена; $F_k(\vec{x}, t)$ — плотность мощности внешних источников вещества с номером k в точке $\vec{x}$ в момент времени t .

Для однозначного определения концентраций заданы следующие дополнительные условия, соответствующие рассматриваемым физическим ситуациям:

$$\begin{aligned}n_k(\vec{x}, t_0) &= n_{k,0}(\vec{x}), \quad k = \overline{1, N}, \quad \vec{x} \in Q; \\ \alpha_k(\vec{x}, t) \frac{\partial}{\partial \vec{n}} n_k(\vec{x}, t) + \beta_k(\vec{x}, t) n_k(\vec{x}, t) &= R_k(\vec{x}, t), \\ k &= \overline{1, N}, \quad \vec{x} \in \partial Q, \quad t \in (t_0, t_1).\end{aligned}$$

Здесь $n_{k,0}(\vec{x})$ — концентрация молекул вещества с номером k в точке $\vec{x}$ в момент времени t_0 ; $\vec{n}$ — единичная нормаль к поверхности ∂Q , внешняя по отношению к области Q ; α_k, β_k, R_k — некоторые коэффициенты (см. ниже).

Первое из записанных равенств представляет собой начальное условие. Второе из записанных равенств представляет собой краевое условие третьего рода. Если $R_k = 0$, то это условие отражает тот факт, что на границе области Q частицы вещества с номером k частично поглощаются, а частично отражаются. Если $R_k \neq 0$, то это условие описывает поступление вещества с номером k внутрь области через ее границу. Коэффициенты α_k, β_k удовлетворяют условиям: $|\alpha_k| + |\beta_k| \neq 0, \alpha_k \beta_k \geq 0$ (эти условия связаны с теоремой о единственности решения). Если область Q не является ограниченной, то в список дополнительных условий нужно включить условие регулярности решения на бесконечности.

Далее будем отдельно записывать уравнения для интересующих нас веществ в составе газов и для интересующих нас веществ в составе аэрозолей, причем одновременно будем рассматривать N веществ в составе газов (величины, относящиеся к этим веществам будут иметь индекс k) и одно вещество в составе аэрозолей. Мы предполагаем, что все аэрозольные частицы, содержащие молекулы одного из интересующих нас веществ, имеют одинаковый радиус, т. е. образуют монодисперсную систему аэрозолей.

Рассмотрим оседание в плоском слое на временном промежутке $(0, +\infty)$. Без ограничения общности можем считать, что область Q задана условиями: $x, y \in \mathbb{R}, z \in (0, h)$ (здесь x, y, z — декартовы координаты точки трехмерного пространства, h — толщина плоского слоя).

Примем, что:

- есть диффузия газов;
- нет макроскопического движения газов;
- нет диффузии аэрозолей;
- есть оседание аэрозолей под действием силы тяжести и силы сопротивления среды;
- нет воздухообмена.

Кроме того, полагаем $F_k(x, y, z, t) = 0$, $n_{k,0}(x, y, z) = n_{k,0}(z)$, $n_0(x, y, z) = 0$, $\alpha_k(x, y, 0, t) = 0$, $\beta_k(x, y, 0, t) = 1$, $R_k(x, y, 0, t) = 0$, $\alpha_k(x, y, h, t) = 0$, $\beta_k(x, y, h, t) = 1$, $R_k(x, y, h, t) = 0$.

Согласно сделанным предположениям, систему уравнений непрерывности можно записать в виде:

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial t} n_k &= D_k \frac{\partial^2}{\partial z^2} n_k + \sum_{m=1}^N a_{k,m} n_m, \quad k = \overline{1, N}, \quad z \in (0, h), \quad t \in (0, +\infty); \\ n_k(z, 0) &= n_{k,0}(z), \quad k = \overline{1, N}, \quad z \in (0, h); \\ n_k(0, t) &= 0, \\ n_k(h, t) &= 0, \quad k = \overline{1, N}, \quad t \in (0, +\infty); \\ \frac{\partial}{\partial t} n &= v(r) \frac{\partial}{\partial z} n + \sum_{m=1}^N b_m n_m, \quad z \in (0, h), \quad t \in (0, +\infty); \\ n(z, 0) &= 0, \quad z \in (0, h); \\ n(h, t) &= 0, \quad t \in (0, +\infty).\end{aligned}$$

Здесь $v(r)$ — модуль скорости дрейфа аэрозольных частиц радиуса r ; b_m , $m = \overline{1, N}$, — постоянные, описывающие процессы нуклеации.

Скорость $v(r)$ определялась следующим образом. Пусть r_1 — радиус молекулы интересующего нас вещества; m_1 — масса молекулы интересующего нас вещества; $\overline{N}(r)$ — число молекул интересующего нас вещества в составе аэрозольной частицы радиуса r ; $m(r)$ — масса аэрозольной частицы радиуса r . Примем, что систему молекул, из которых состоит аэрозольная частица, можно рассматривать как решетчатую упаковку шаров, причем эта упаковка является наиболее плотной среди всех возможных решетчатых упаковок [8]. Тогда

$$\frac{\pi}{3\sqrt{2}} \frac{4}{3} \pi r^3 = \frac{4}{3} \pi r_1^3 \overline{N}(r), \quad \overline{N}(r) = \frac{\pi}{3\sqrt{2}} \left(\frac{r}{r_1} \right)^3; \quad m(r) = \overline{N}(r) m_1.$$

Здесь $\frac{\pi}{3\sqrt{2}}$ — плотность наиболее плотной решетчатой упаковки шаров [8]. Записывая уравнение движения аэрозольной частицы в поле сил тяжести в вязкой среде, получаем:

$$v(r) = \frac{m(r)g}{6\pi\eta r} = \frac{\pi}{3\sqrt{2}} \frac{m_1 g}{6\pi\eta r_1^3} r^2 = \gamma r^2.$$

Здесь g — ускорение свободного падения; η — коэффициент вязкого трения воздуха; $\gamma = \frac{\pi}{3\sqrt{2}} \frac{m_1 g}{6\pi\eta r_1^3}$.

Система уравнений для газов решалась методом Фурье (метод разделения переменных). Система уравнений для аэрозолей решалась методом характеристик [6].

При расчетах использовался набор значений радиусов аэрозольных частиц, лежащих в диапазоне от $r = 5.567 \cdot 10^{-8}$ м до $r = 1.391 \cdot 10^{-5}$ м. Выбор этого набора определялся данными эксперимента, моделирующего аварийную ситуацию на предприятии атомной промышленности. В упомянутом модельном эксперименте воздух помещения пропусклся через следующие приборы (включенные последовательно): импактор с пятью каскадами, фильтр I, диффузионную батарею, фильтр II [5, 7]. Измерялась активность урана, осевшего на каждом элементе измерительной системы. Знание параметров элементов измерительной системы позволило оценить диапазон радиусов аэрозольных частиц UO_2F_2 в воздухе помещения.

Кроме того, в модельном эксперименте, на различных высотах производственного помещения закачивался воздух и пропусклся через фильтр, на котором далее измерялась активность осевшего урана, что позволило определить концентрацию атомов урана в воздухе.

Правильность построенной модели проверялась:

- 1) путем сравнения динамики концентрации атомов урана в составе всех газов и аэрозолей (различных радиусов), найденной теоретическим путем, с динамикой этой величины, найденной экспериментально,
- 2) путем сравнения изменений характеристик облака продуктов гидролиза со временем, найденных теоретическим путем и изменений, наблюдавшихся в процессе модельного эксперимента.

Основные результаты исследования системы уравнений непрерывности сводятся к следующему.

1. В обозримое время газы распределены в пространстве практически равномерно.
2. Концентрация атомов урана в составе газов ($n_{\text{U},r}$) в производственном помещении уменьшается практически до нуля за короткое время: $\Delta t \approx 3$ мин для UF_6 , $\Delta t \approx 30$ мин для UOF_4 , $\Delta t \approx 1$ час для UO_2F_2 (рис. 1).

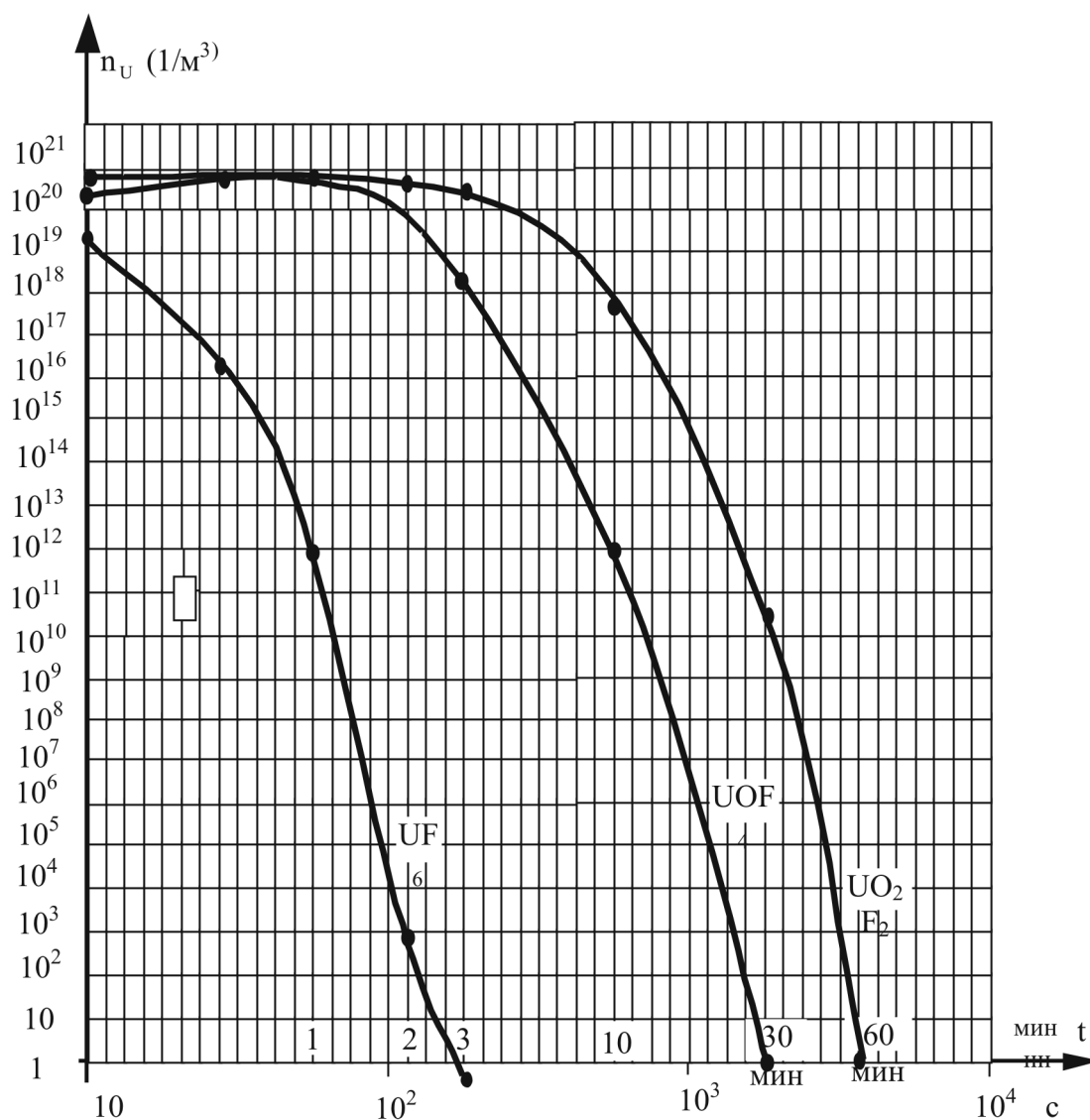


Рис. 1. Динамика концентрации атомов урана $n_{U,\Gamma}$ в составе газов

3. Концентрация атомов урана в составе аэрозольных частиц ($n_{U,a}$) зависит как от высоты z , так и от момента времени t .

4. Характер зависимости концентрации атомов урана в составе аэрозолей от времени очень сильно зависит от скорости аэрозольных частиц и, соответственно, от их размера.

5. В первые минуты концентрация атомов урана в составе аэрозолей растет со временем. С увеличением размера частиц время возрастания Δt_b уменьшается от $\Delta t_b \approx 10$ мин для самых мелких частиц ($r = 5.567 \cdot 10^{-8}$ м), до $\Delta t_b \approx 1$ мин для самых крупных ($r = 1.391 \cdot 10^{-5}$ м).

6. Далее концентрация атомов урана в составе аэрозолей ведет себя следующим образом. Какое-то время Δt_{π} величина $n_{U,a}$ остается постоянной.

Величина $\Delta t_{\text{п}}$ зависит от скорости оседания частиц и от высоты уровня, на котором фиксируется концентрация.

7. Значение момента времени, начиная с которого появляется убывание $n_{\text{U,a}}$, примерно совпадает со временем, необходимым для оседания аэрозольных частиц от потолка до рассматриваемого уровня. Для частиц от самых крупных ($r = 1.391 \cdot 10^{-5}$ м) до самых мелких ($r = 5.567 \cdot 10^{-8}$ м) этот момент лежит в пределах $t = 1 \text{ мин} \div 16.5 \text{ сут}$ (на высоте $z = 0.5$ м).

8. Длительность промежутка времени, на котором наблюдается убывание $n_{\text{U,a}}$ от значения $n = 1 \cdot 10^{21} \text{ м}^{-3}$ до значения $n \approx 0 \text{ м}^{-3}$, сильно возрастает с уменьшением размера частиц. Например, на высоте $z = 0.5$ м:

$\Delta t \approx 1 \text{ мин} \div 60 \text{ мин}$ для частиц с $r = 1.391 \cdot 10^{-5}$ м,

$\Delta t \approx 3 \text{ мин} \div 63 \text{ мин}$ для частиц с $r = 5.241 \cdot 10^{-6}$ м,

$\Delta t \approx 10 \text{ мин} \div 60 \text{ мин}$ для частиц с $r = 2.62 \cdot 10^{-6}$ м,

$\Delta t \approx 60 \text{ мин} \div 2 \text{ час}$ для частиц с $r = 1.048 \cdot 10^{-6}$ м,

$\Delta t \approx 3 \text{ час } 15 \text{ мин} \div 5 \text{ час}$ для частиц с $r = 6.213 \cdot 10^{-7}$ м,

$\Delta t \approx 18 \text{ час} \div 19 \text{ час } 40 \text{ мин}$ для частиц с $r = 2.62 \cdot 10^{-7}$ м,

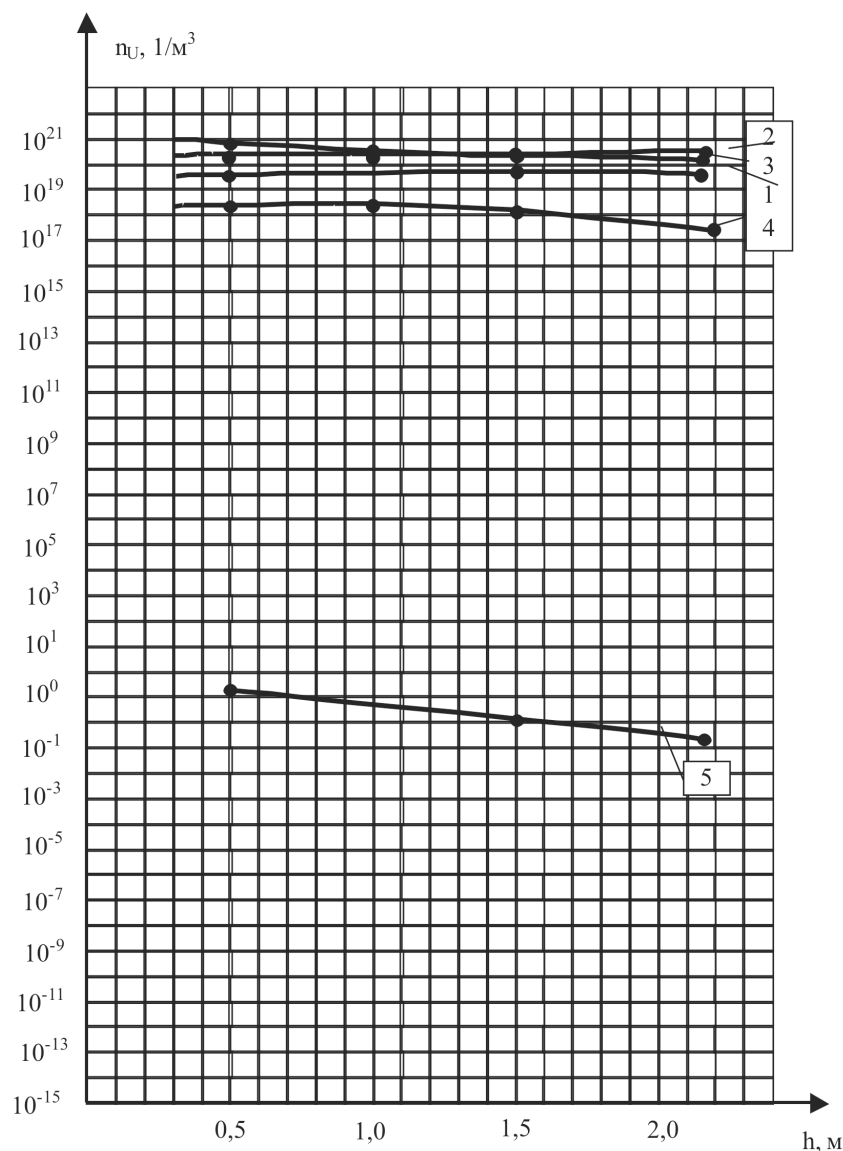
$\Delta t \approx 16 \text{ сут } 16 \text{ час} \div 17 \text{ сут } 9 \text{ час}$ для частиц с $r = 5.567 \cdot 10^{-8}$ м,

Зависимость $n_{\text{U,a}}$ от t раньше всего появляется под потолком и позже всего вблизи пола. Например, для частиц с $r = 6.213 \cdot 10^{-7}$ м на высоте $z = 2.25$ м временное убывание $n_{\text{U,a}}$ начинается в момент $t_1 = 10$ мин и заканчивается в момент $t_2 = 1.5$ час. На высоте $z = 1.5$ м временное убывание $n_{\text{U,a}}$ появляется в момент $t_1 = 30$ мин и исчезает в момент $t_2 = 2$ час. На высотах $z < 0.75$ м в течение первых двух часов $n_{\text{U,a}} = \text{const}$. Для частиц с $r = 5.241 \cdot 10^{-6}$ м на высоте $z = 2.25$ м временное убывание $n_{\text{U,a}}$ начинается в момент $t_1 = 3$ мин и заканчивается в момент $t_2 = 61$ мин. Для $z = 1.5$ м временное убывание $n_{\text{U,a}}$ появляется в момент $t_1 = 3$ мин и исчезает в момент $t_2 = 62$ мин. Для $z = 0.5$ м временное убывание $n_{\text{U,a}}$ начинается в момент $t_1 = 3.3$ мин и заканчивается в момент $t_2 = 63.3$ мин.

Сравнение расчетных и экспериментальных данных показало следующее.

1. Реальное распределение атомов урана в составе газов хорошо соответствует расчетному (рис. 1).

2. Хорошее соответствие между реальным и расчетным распределением атомов урана наблюдается и для аэрозолей. Это касается и самого факта существования распределения атомов и его характера и его динамики (рис. 2–4).



1 – $t_1=1$ мин, 2 – $t_2=2$ мин, 3 – $t_3=3$ мин, 4 – $t_4=4$ мин, 5 – $t_5=5$ мин.

Рис. 2. Динамика концентрации атомов урана $n_{U,a}$ в составе аэрозолей, $r = 5.241 \cdot 10^{-6}$ м

На рис. 5 для сравнения приведены теоретические и экспериментальные зависимости $n_{U,a}(t)$. Видно, что концентрация атомов урана, найденная экспериментально, растет в течение первых нескольких минут. Достигнув максимального значения, она начинает плавно убывать вплоть до фонового значения (т. е. до значения концентрации атомов урана в отсутствии выброса).

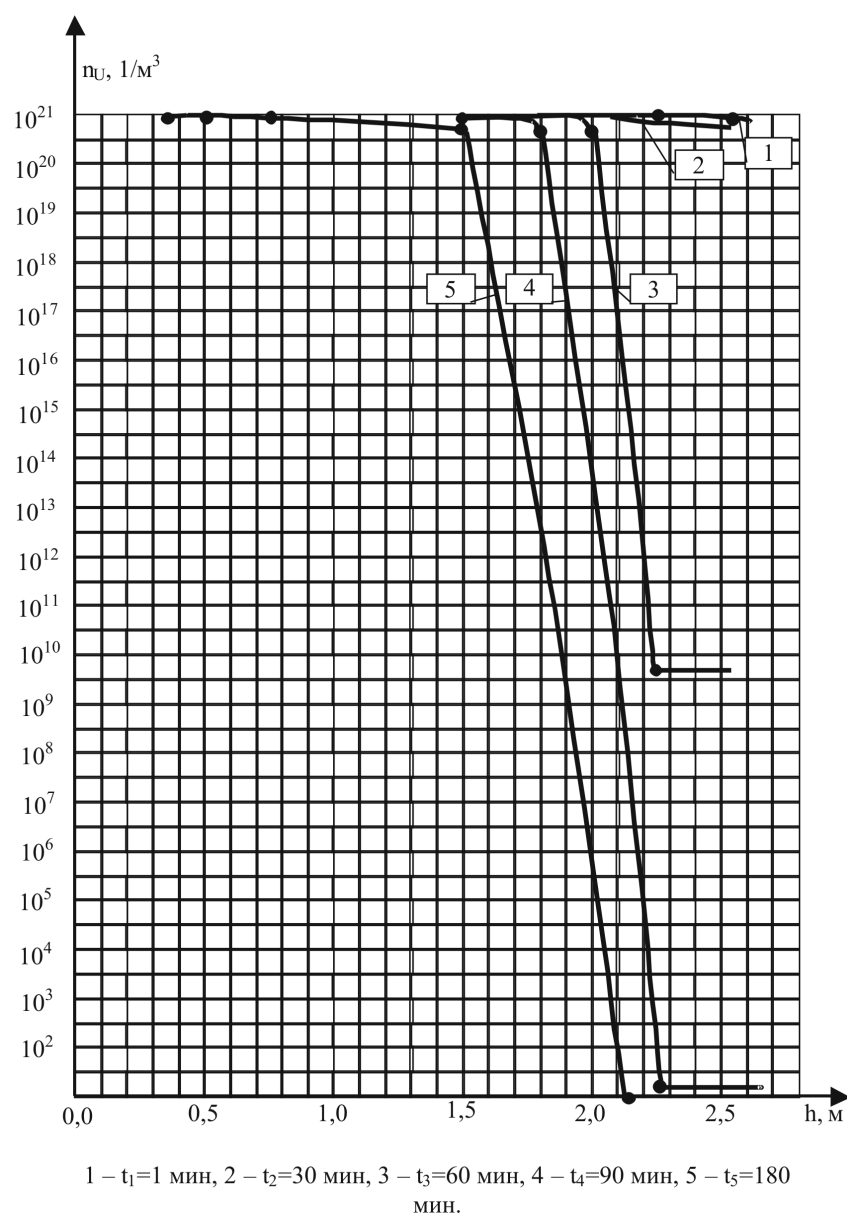


Рис. 3. Динамика концентрации атомов урана $n_{U,a}$ в составе аэрозолей, $r = 6.213 \cdot 10^{-7}$ м

Расчетная концентрация атомов урана в составе крупных частиц меняется со временем качественно так же, как экспериментальная. Однако, для концентрации атомов урана в составе мелких частиц в теоретической зависимости $n_{U,a}(t)$ имеет место горизонтальный участок, длина которого сильно зависит от радиуса аэрозольных частиц. После горизонтального участка наблюдается резкий спад $n_{U,a}$.

По виду зависимостей, приведенных на рис. 5, можно предположить, что сближения расчетных и экспериментальных результатов можно добиться, рассматривая полидисперсную систему аэрозолей.

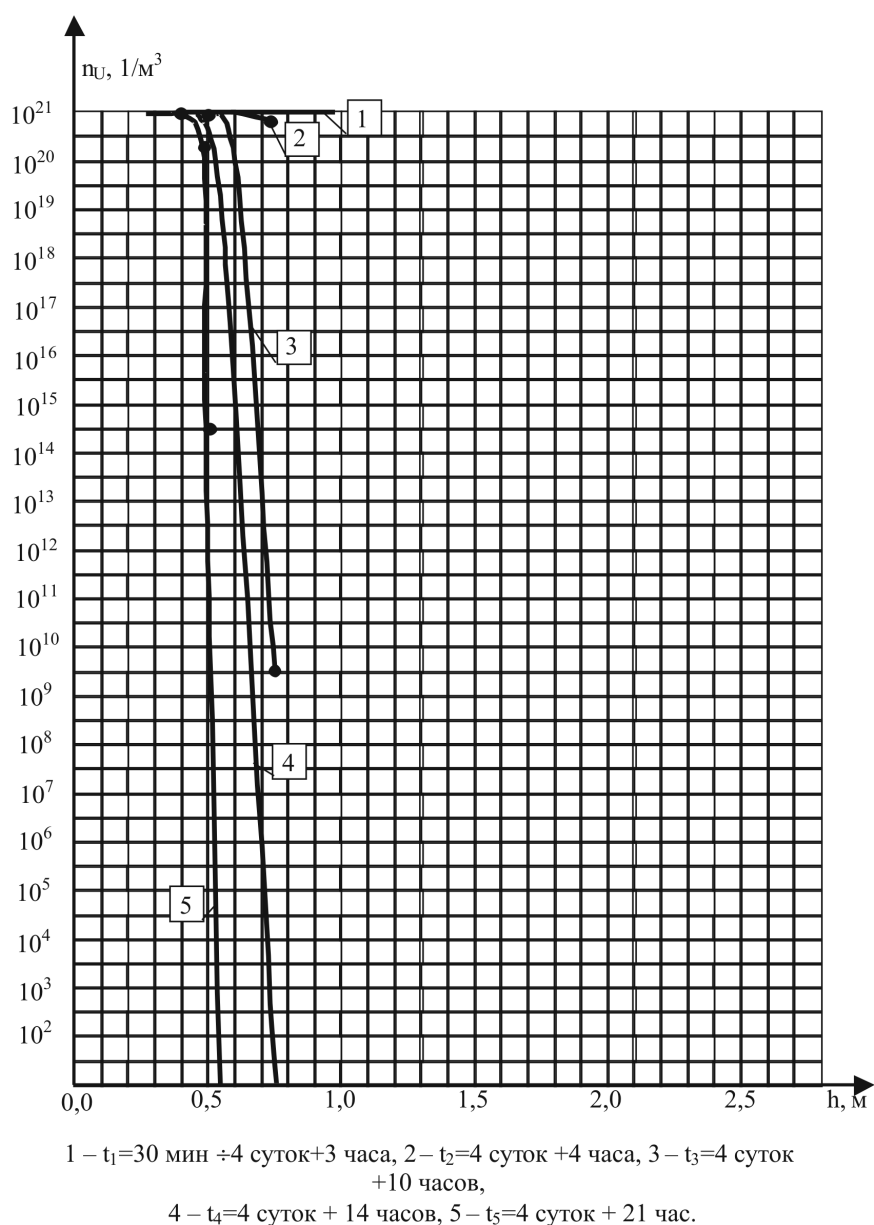


Рис. 4. Динамика концентрации атомов урана $n_{U,a}$ в составе аэрозолей, $r = 1.048 \cdot 10^{-7}$ м

Второе проявление соответствия расчетных и экспериментальных данных заключается в следующем. На рис. 2–4 видно, что оседание частиц под действием силы тяжести, обеспечивает неравномерное распределение атомов урана по вертикали. Для крупных частиц при этом не образуется резкой границы между областями с высокой и низкой концентрацией атомов, а для мелких частиц граница между такими областями резкая. Эта граница со временем опускается от потолка до пола. Скорость спуска тем меньше, чем мельче частицы. Например, для частиц с $r = 1.048 \cdot 10^{-7}$ м, граница опускается вниз всего лишь на $\Delta z = 0.35$ м за время $\Delta t = 11$ час. Все это означает, что,

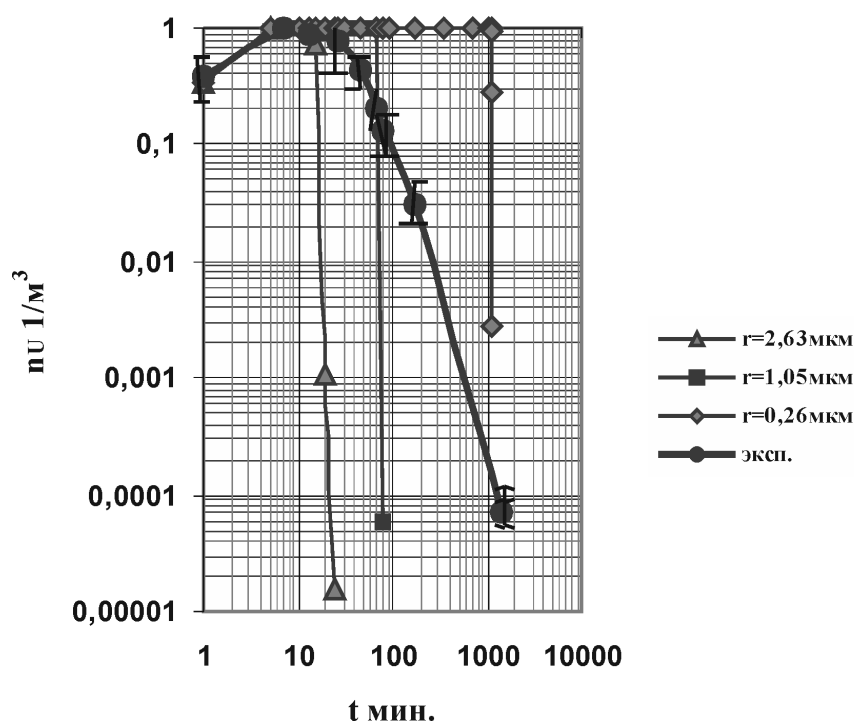


Рис. 5. Сравнение теоретических и экспериментальных зависимостей $n_{U,a}(t)$

через некоторое время после аварийного выброса гексафторида урана, вблизи потолка должна появиться полоска в которой не будет тумана. Эта полоска должна иметь резкую границу, которая со временем должна опускаться к полу рабочего помещения. При этом облако должно уплотняться по мере приближения к полу. Именно такую картину наблюдали исполнители модельного эксперимента в течение двух суток после выброса гексафторида урана.

Из материала, изложенного в статье, можно заключить следующее. Построенная модель формирования загрязнения производственной среды на качественном уровне хорошо описывает реальные процессы, сопровождающие аварийный выброс гексафторида урана. Для количественного описания этих процессов, необходимо аналогичную модель построить для полидисперсной системы аэрозольных частиц.

Список литературы

1. Клиническая токсикология химических соединений урана при хронической экспозиции // Гастева Г.Н. [и др.] Радиационная медицина. М. : ИздАт, 2001. Т. 2. С. 369–389.

2. Гидролиз газообразного гексафторида урана в воздухе: отчет предприятия п.я. М-5122 и п.я. В-2343 / Бадьин В.И. [и др.] ЦНИИАТОМИНФОРМ, 1975. 76 с. ИК № М 34559.
3. Экспресс-методы измерения степени обогащения гексафторида урана и следовых количеств в НФ атмосфере на основе диодных лазеров ближнего и среднего ИК диапазона / Григорьев Г.Ю. [и др.] М., 2006. (Препринт ИАЭ 6395/12).
4. Петрянов-Соколов И.С., Суругин А.Г. Аэрозоли. М. : Наука, 1989. 144 с.
5. Мирхайдаров А.Х., Бабенко С.П., Бадьин В.И. Газоаэрозольная опасность соединений урана с фтором в аварийных ситуациях // Тезисы докладов на международной конференции, 24-26 апреля 2000 г. М., СПб.: Гидрометеоиздат, 2000. С. 229.
6. Бабенко С.П. Прогнозирование радиационного и токсического воздействия выбросов гексафторида урана методами математического моделирования: дис. . . . докт. тех. наук. М., 2008. 375 с.
7. Мирхайдаров А.Х. Исследование закономерностей загрязнения воздушной среды и поверхностей в производстве разделения изотопов урана: дис. . . . канд. тех. наук. М., 1978. 217 с.
8. Гильберт Д., Кон-Фоссен С. Наглядная геометрия. 3-е изд. М.: Наука, 1981. 344 с.

Creating and verification of pollution model of workshop in case of emergency emission of gaseous uranium hexafluoride

77-30569/306859

02, February 2012

Babenko S.P., Bad'in A.V.

Bauman Moscow State Technical University

babenkosp@mtu-net.ru

badyin@phys.msu.ru

Pollution model of workshop in case of emergency emission of gaseous uranium hexafluoride was described. The results of calculation of parameters, which characterize the distribution of uranium hexafluoride hydrolysate in the volume of workshop, were presented in the article. The method of experimental determination of these parameters and the results of their measurement were described. The experimental results are in good correlation with calculated ones, that's why developed model is suitable for the calculation of the dose that safe for the human in the workshop

References

1. Gasteva G.N., et al., Radiation medicine, Vol.2, Moscow, IzdAt, 2001, pp. 369-389.
2. Gidroliz gazoobraznogo geksaforida urana v vozdukh: otchet predpriyatiya p.ya. M-5122 i p.ya. V-2343 / Bad'in V.I. [i dr.] TsNIIATOMINFORM, 1975. 76 s. IK N M 34559.
3. Ekspress-metody izmereniya stepeni obogashcheniya geksaforida urana i sledovykh kolichestv v NF atmosfere na osnove diodnykh lazerov blizhnego i srednego IK diapazona / Grigor'ev G.Yu. [i dr.] M., 2006. (Preprint IAE 6395/12).
4. Petryanov-Sokolov I.S., Sutugin A.G. Aerozoli. M. : Nauka, 1989. 144 s.

5. Mirkhaydarov A.Kh., Babenko S.P., Bad'in V.I. Gazoaeozol'naya opasnost' soedineniy urana s fluorom v avariynnykh situatsiyakh // Tezisy dokladov na mezhdunarodnoy konferentsii, 24-26 aprelya 2000 g. M., SPb.: Gidrometizdat, 2000. S. 229.
6. Babenko S.P. Prognozirovaniye radiatsionnogo i toksicheskogo vozdeystviya vybrosov geksaforida urana metodami matematicheskogo modelirovaniya: dis. . . . dokt. tekh. nauk. M., 2008. 375 s.
7. Mirkhaydarov A.Kh. Issledovaniye zakonornostey zagryazneniya vozduшной sredy i poverkhnostey v proizvodstve razdeleniya izotopov urana: dis. . . . kand. tekh. nauk. M., 1978. 217 s.
8. Gilbert D., Kon-Fossen S. Naglyadnaya geometriya. 3-e izd. M.: Nauka, 1981. 344 s.