

щению (захоронению или вывозу на переработку). Данный документ был согласован с научным руководителем Билибинской АЭС – ФГУП «ГНЦ РФ-ФЭИ».

Библиографический список:

1. Радионуклидный состав ОЯТ и ТРО в ОТВС ЭГП-6 (БВ-1 и БВ-2) и характеристики источников излучения, необходимые для оценок радиационной безопасности: Отчет / ООО «Пролог». – Обнинск, 2011.
2. Карта дозовых нагрузок (полей) в помещениях БВ-1, БВ-2 и вокруг них. Техническая справка: ТС-229 / ООО НПФ «Сосны». – Димитровград, 2010. – 33 с. – Инв.№ 22-00605.
3. Исследование скорости выхода радионуклидов в воздух из топлива при осушении ОТВС I –й очереди БАЭС. Отчет о НИР (заключительный): Ф-069/02 / ФГУП «ИРМ» – Заречный, 2005.
4. Отчёт по углубленной оценке безопасности: Отчет / ФГУП концерн «Росэнергоатом», филиал «Билибинская атомная электрическая станция» – М., 2002.
5. Правила безопасности при хранении и транспортировании ядерного топлива на объектах использования атомной энергии. НП-061-05 : утв. Федеральной службой по экологическому, технологическому и атомному надзору 30.12.2005 : введ. 01.05.2006. – М., 2005. – 12 с.
6. Нормы проектирования сейсмостойких атомных станций : НП-031-01. – Взамен ПНАЭ Г-5-006-87 : утв. Госатомнадзором России 19.10.2001 № 9 : введ. 01.01.2002. – М., 2001. – 25 с.
7. Положение о прогнозировании индивидуальных радиационных рисков персонала и населения при нормальной эксплуатации и возможных авариях на объектах использования атомной энергии : утв. Ростехнадзором от 14.07.2010 № 605.

АМОСОВ С.В.<sup>1</sup>, ЛЕЩЕНКО А.Ю.<sup>1</sup>, ТЕПЛОВ В.Г.<sup>2</sup>, ИЛЬИН П.А.<sup>2</sup>

<sup>1</sup>ООО «НПФ «Сосны» - Димитровград, Россия

<sup>2</sup>ОАО «ГНЦ НИИАР» - Димитровград, Россия

### **ЭКСПЕРИМЕНТЫ ДЛЯ ОБОСНОВАНИЯ ПОЖАРО-И ВЗРЫВОБЕЗОПАСНОСТИ ПРИ ОБРАЩЕНИИ С ОЯТ РЕАКТОРОВ РБМК-1000**

Приведены результаты экспериментального определения скорости накопления водорода в объеме герметичной ампулы, содержащей негерметичные твэлы ОТВС РБМК-1000. Результаты экспериментальных работ будут использованы при обосновании безопасности транспортирования и временного хранения в бассейне ФГУП «ПО «Маяк» некондиционного ОЯТ РБМК 1000 в герметичных ампулах без предварительной осушки.

### **Введение**

На АЭС с реакторами РБМК-1000 к настоящему времени накоплено большое количество ОЯТ. Основным способом обращения с ОЯТ РБМК-1000 признан перевод на сухое контейнерное хранение с последующим вывозом в централизованное хранилище на ГХК.

Данное решение проработано для кондиционных ОТВС, т.е. пригодных для длительного сухого хранения. Способы обращения с некондиционными ОТВС в настоящее время разрабатываются. Одним из путей решения проблемы обращения с некондиционным ОЯТ является его переработка на заводе РТ-1 ФГУП «ПО «Маяк».

В 2010 году ГК «Росатом» инициировала работу по теме «Обеспечение безопасного обращения с отработавшим ядерным топливом реакторов РБМК. Обоснование переработки». Данный проект предусматривает подготовку к регулярным перевозкам некондиционных ОТВС РБМК на переработку.

Перевозка некондиционных (в основном, негерметичных) ОТВС РБМК-1000 должна осуществляться в герметичных по газу и по воде ампулах в составе контейнера ТУК-11. В процессе временного хранения и транспортирования неосушенных ОТВС РБМК-1000 в контейнере ТУК-11 возникает опасность накопления продуктов радиолиза, в частности, водорода.

Для организации вывоза некондиционных ОТВС определенные проектом в сроки необходимо расчетными методами обосновать пожаро- и взрывобезопасность временного хранения и транспортирования негерметичных ОТВС РБМК-1000 в ТУК-11 без предварительной осушки. Целью данной работы являлось определение кинетики накопления водорода в условиях, моделирующих транспортирование ОТВС РБМК-1000 с водой, находящейся под оболочками негерметичных твэлов, для верификации математических моделей образования радиолитического водорода в герметичных ампулах с ОТВС РБМК-1000.

### **Объекты исследования**

Для проведения в условиях защитных камер экспериментов по определению кинетики накопления водорода в герметичных ампулах, содержащих негерметичные твэлы РБМК-1000 с водой под оболочкой, были отобраны твэлы, параметры которых обеспечивали консервативность оценки кинетики накопления водорода.

Предполагаемые к перевозке и переработке ОТВС РБМК-1000 имеют обогащение 2,0 – 2,4%. С точки зрения радиационной безопасности, при перевозке и переработке ОТВС выдержка должна составлять не менее 10 лет. С точки зрения рентабельности переработки ОЯТ выгорание топлива не должно превышать 24 МВт·сут/кгU.

Выбор твэлов с максимальным выгоранием и минимальным сроком выдержки в указанных пределах обеспечивает максимальную радиацион-

ную нагрузку на воду, а следовательно, обеспечивает консерватизм по выходу продуктов радиолиза.

Таким образом, для проведения эксперимента было выбрано четыре твэла из ТВС РБМК-1000 с обогащением 2,4%, выгоранием топлива 24,0 МВт-сут/кгU и выдержкой около 10 лет на начало эксперимента.

Перед установкой в ампулу у всех четырех твэлов были срезаны верхние заглушки.

Кинетику накопления водорода определяли при температуре защитной камеры (30–40°C) и при максимально возможной температуре газовой среды во время транспортирования ОТВС РБМК-1000 (80°C).

### Экспериментальная установка

В состав оборудования для заполнения твэлов водой и моделирования условий транспортирования ОЯТ РБМК входят следующие основные компоненты:

- ампула для размещения твэлов;
- вспомогательная система для подготовки ампулы к эксперименту;
- система пробоотбора.

Свободный объем негерметичного твэла после эксплуатации и хранения в БВ может быть полностью заполнен водой. Для того чтобы это смоделировать, ампулу с твэлами заполняли водой после предварительного вакуумирования.

Воду из свободного объема ампулы сливали под давлением аргона, что позволило создать в ампуле инертную атмосферу. После герметизации ампулы твэлы находились в среде аргона при давлении около 1 атм.

Принципиальная схема стенда для отбора проб приведена на рис. 1. Объем системы пробоотбора (включая пробоотборник) приблизительно в 100 раз меньше свободного объема в ампуле, что обеспечивает минимальное влияние пробоотбора на процессы в ампуле. Анализ состава проб газовой фазы из ампулы проводили на масс-спектрометре МИ-1201 по методике масс-спектрометрического анализа состава газов в твэлах.

Количество водорода в ампуле на момент пробоотбора определяется как

$$n_{H_2амп} = \frac{C_{H_2}}{100\%} \cdot \frac{(V_{амп} + V_{сн})}{V_M} \cdot \frac{P}{P_n} \cdot \frac{T_n}{T}, \quad (1)$$

где  $n_{H_2амп}$  – количество водорода в ампуле, моль;

$V_{амп}$  – свободный объем в ампуле, см<sup>3</sup>;

$V_{сн}$  – объем системы пробоотбора, см<sup>3</sup>;

$V_M$  – молярный объем, см<sup>3</sup>/моль;

$C_{H_2}$  – объемная доля водорода в пробе, %;

$P_n$  – нормальное давление, кПа;

$T_n$  – нормальная температура, К;  
 $P$  – давление при пробоотборе, кПа;  
 $T$  – температура при пробоотборе, К.

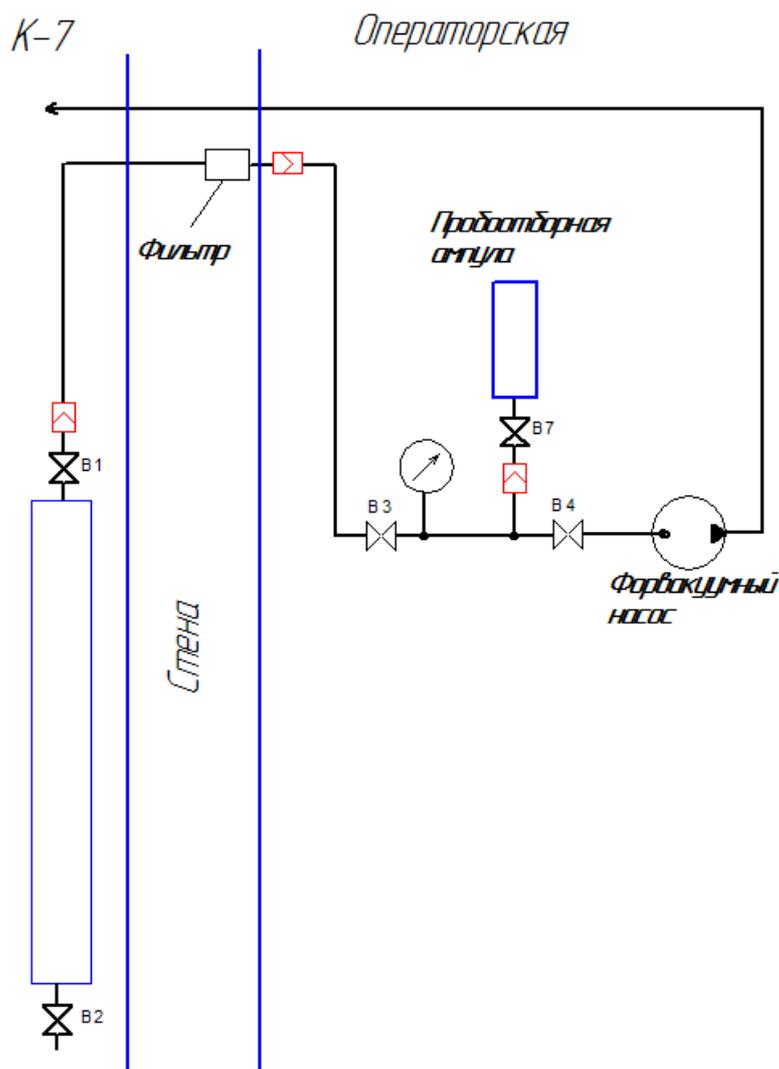


Рисунок 1. Схема стенда для отбора проб газа

При определении количества водорода, образовавшегося в результате радиолитического распада воды, учитывали уменьшение количества водорода в ампуле за счет пробоотбора по формуле

$$n_{H_2 \Sigma}^i = n_{H_2 \Sigma}^{i-1} + \left( n_{H_2 \text{амп}}^i - n_{H_2 \text{амп}}^{i-1} \cdot \frac{V_{\text{амп}}}{V_{\text{амп}} + V_{\text{сн}}} \right), \quad (2)$$

где  $i$  – номер отбираемой пробы.

Относительная погрешность определения количества водорода в ампуле практически полностью определяется погрешностью масс-спектрометрического анализа состава газа и составляет не более 20,1% от измеренного значения в диапазоне концентрации до 0,1% об. и не более 10,1% от измеренного значения в диапазоне концентрации выше 0,1% об.

Для поддержания в течение длительного времени температуры твэлов на уровне  $80^{\circ}\text{C}$  использовали внутрикамерный стенд сухого хранения (рис. 2).

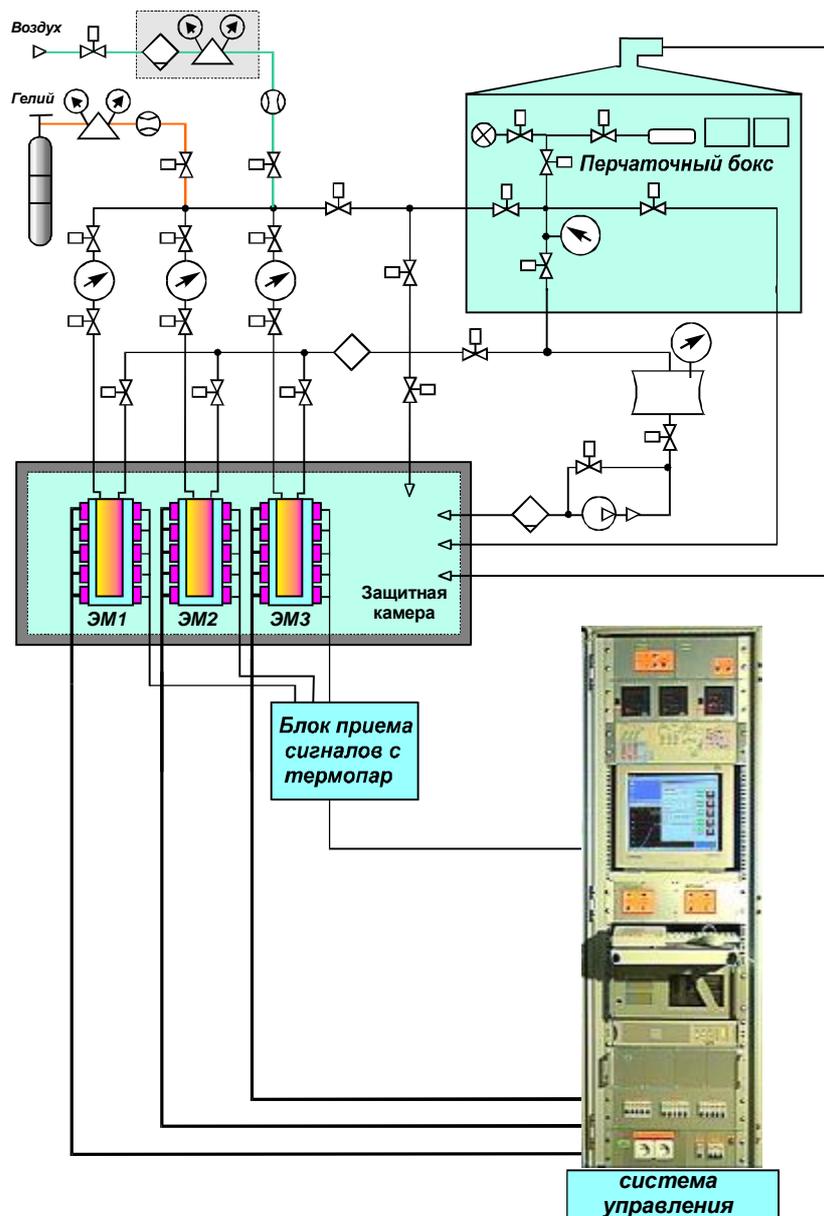


Рисунок 2. Структурная схема стенда сухого хранения

После завершения эксперимента по изучению кинетики накопления водорода при температуре защитной камеры  $30\text{-}40^{\circ}\text{C}$ , у ампулы с твэлами РБМК-1000 вскрыли крышку. Из газосборников всех четырех твэлов с помощью шприца, оснащенного удлиняющей насадкой, удалили воду. После этого твэлы были перегружены из ампулы стенда моделирования перевозки ОЯТ РБМК в ампулу стенда сухого хранения. Твэлы в ампуле располагались вертикально газосборниками вверх. На ампулу герметично установили крышку.

Погрешность регулирования температуры нагревательных элементов стенда сухого хранения ( $\pm 4^{\circ}\text{C}$ ) приводит к колебаниям давления внутри

ампулы, что препятствует расчету количества газовой фазы в ампуле с твэлами.

В связи с этим был разработан способ расчета количества накопленного в ампуле водорода, основанный на возможности расчетного определения количества аргона в ампуле с твэлами при каждом отборе проб.

Количество аргона в ампуле на момент  $i$ -го отбора пробы определяется как

$$n_{Ar\text{ амн}}^i = n_{Ar\text{ амн}}^{i-1} \cdot a^{i-1}, \quad (3)$$

где  $n_{Ar\text{ амн}}$  – количество аргона в ампуле, моль;

$a^i$  – коэффициент пробоотбора.

Доля газа (коэффициент пробоотбора), остающегося в ампуле с твэлами после  $i$ -го пробоотбора

$$a^i = \left[ 1 + \frac{T_{амн}^i \cdot V_{СП}}{T_{СП}^i \cdot V_{амн}} \right]^{-1}, \quad (4)$$

где  $T_{амн}^i$  – температура газа в ампуле, К;

$T_{СП}^i$  – температура газа в системе пробоотбора, К;

$V_{амн}$  – свободный объем в ампуле, см<sup>3</sup> ( $V_{амн} = 8548,3$  см<sup>3</sup>);

$V_{СП}$  – объем системы пробоотбора, см<sup>3</sup> ( $V_{СП} = 92,4$  см<sup>3</sup>).

Количество аргона в ампуле на момент отбора пробы № 0 определяется как

$$n_{Ar\text{ амн}}^0 = \frac{C_{Ar}^0}{100\%} \cdot \frac{P^0}{R} \cdot \frac{(V_{амн} + V_{СП})^2}{T_{амн}^0 \cdot V_{амн} + T_{СП}^0 \cdot V_{СП}}, \quad (5)$$

где  $C_{Ar}^0$  – объемная доля аргона в пробе №0, %;

$P^0$  – давление при отборе пробы №0, Па;

$T^0$  – температура при отборе пробы №0, К.

Количество водорода в ампуле на момент  $i$ -го пробоотбора определяется как

$$n_{H_2\text{ амн}}^i = \frac{C_{H_2}^i}{C_{Ar}^i} \cdot n_{Ar\text{ амн}}^i, \quad (6)$$

где  $n_{H_2\text{ амн}}$  – количество водорода в ампуле, моль;

$n_{Ar\text{ амн}}$  – количество аргона в ампуле, моль;

$C_{H_2}$  – объемная доля водорода в пробе, %;

$C_{Ar}$  – объемная доля аргона в пробе, %;

Количество водорода, накопленного на момент  $i$ -го пробоотбора, определяется как

$$n_{H_2 \Sigma}^i = n_{H_2 \Sigma}^{i-1} + (n_{H_2 \text{амп}}^i - n_{H_2 \text{амп}}^{i-1} \cdot a^{i-1}). \quad (7)$$

### Обсуждение результатов

Кинетика образования радиолитического водорода в ампуле с облученными негерметичными твэлами РБМК-1000 при температурах 30 и 80°C представлена на рис. 3.

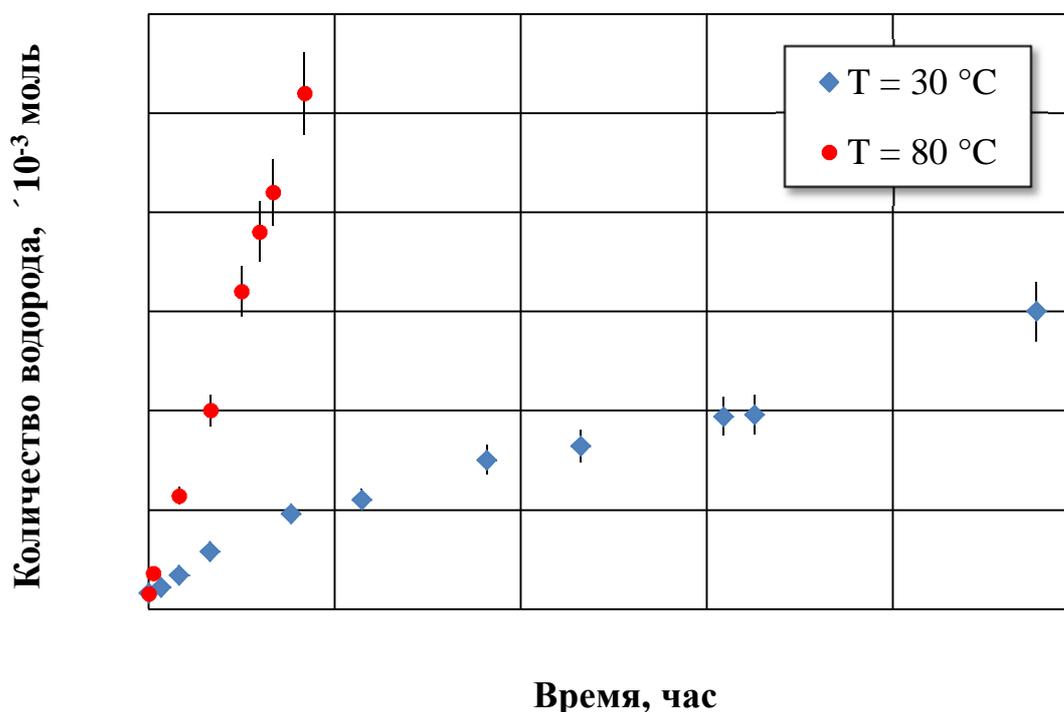


Рисунок 3. Кинетика накопления радиолитического водорода в ампуле с четырьмя негерметичными твэлами РБМК-1000 при температурах 30 и 80°C

Были выполнены оценочные расчеты скорости накопления водорода внутри герметичной ампулы с ПТ негерметичной ОТВС с параметрами:

- исходное обогащение по  $^{235}\text{U}$  .....2%;
- выгорание.....24,9 МВт·сут/кгU;
- выдержка.....10 лет.

При расчете были использованы радиационные характеристики ОТВС с указанными выше параметрами, которые приведены в [1]. Температура оболочек твэлов и газа внутри ампулы принималась равной 80°C. Предполагалось, что внутренний объем негерметичного твэла полностью заполнен водой. В этом случае накопление водорода происходит за счет радиолиза водяного пара в газовом объеме ампулы под действием гамма-излучения и за счет радиолиза воды в негерметичном твэле под действием альфа-, бета- и гамма-излучения.

Для оценки скорости образования водорода в результате радиолиза воды или водяного пара использовалось соотношение [2]

$$\frac{dn_{H_2}}{dt} = \frac{G_{H_2} \cdot E}{100 \cdot N_A}, \quad (8)$$

где  $dn_{H_2} / dt$  – скорость образования водорода, моль/с;

$G_{H_2}$  – первичный радиационный выход водорода, который составляет 0,45 и 8,0 молекул/100 эВ для воды и водяного пара соответственно [2];

$N_A$  – число Авогадро,  $N_A = 6,02 \cdot 10^{23}$ , молекул/моль;

$E$  – поток энергии, поглощаемой водой или водяным паром, эВ/с.

Расчетная скорость накопления водорода составила  $3,17 \cdot 10^{-6}$  моль/час только за счет радиолиза воды внутри одного негерметичного твэла, а наибольшая скорость накопления для четырех твэлов в эксперименте при температуре  $80^\circ\text{C}$  без заполненного водой газосборника составляла  $3,03 \cdot 10^{-6}$  моль/час, т.е. в пересчете на один твэл в четыре раза меньше расчетного.

Расхождение между расчетом и экспериментом, по-видимому, объясняется отсутствием учета при моделировании следующих факторов:

- зависимость концентрации водорода в газовой фазе от его концентрации в жидкости (закон Генри);
- обратные химические реакции, протекающие в воде и приводящие к рекомбинации продуктов радиолиза с образованием молекул воды, например,



Последняя реакция конкурирует с процессом удаления молекулярного водорода путем диффузии до границы раздела жидкой и газовой фаз и десорбции с поверхности воды в газовую фазу. Чем больше высота столба воды, тем больше вероятность реакции рекомбинации молекулярного водорода по сравнению с вероятностью удаления водорода из жидкой фазы, а высота твэла реактора РБМК-1000 составляет 3,64 м.

Не менее важным фактором, влияющим на снижение выхода радиолитического водорода, является протекание физико-химических процессов окисления-восстановления диоксида урана на границе контакта топлива с водой.

Образующиеся в процессе радиолиза оксиданты (в основном, перекись водорода  $H_2O_2$ , а также кислород  $O_2$  и свободные радикалы  $OH$ ) реагируют с  $U(IV)$  на поверхности топлива, формируя  $U(VI)$ . При достижении стехиометрического состава  $U_3O_7$  урановая матрица разрушается и растворяется в воде [3]. Этот процесс не уменьшает вероятность рекомбинации

молекулярного водорода оксидантами. Перекись водорода вносит основной вклад (98-99%) в окисление диоксида урана по цепочке реакций



при этом также образуются радикалы гидроксила.

Однако многочисленные эксперименты выявили значительный эффект подавления процесса растворения топлива в присутствии молекулярного водорода [3,4].

Кроме реакций рекомбинации, возможны еще и другие механизмы: восстановление водородом растворенного U(VI) или U(VI) в твердой фазе на поверхности топлива. Было предположено, что восстановление твердой фазы урана может быть катализировано нанометровыми частицами благородных металлов, присутствующими в отработавшем топливе [5], по реакции



Частицы благородных металлов, называемые  $\epsilon$ -частицы, состоят из смеси металлических продуктов деления (Mo, Pd, Ru, Nc и Rh) [6]. Также возможна реакция между  $H_2$  и радиолитической перекисью водорода, катализируемая  $\epsilon$ -частицами [7].

Тем не менее, в любом случае молекулярный водород потребляется на подавление процесса растворения топлива перекисью водорода.

И еще один момент: наличие двух объемов воды внутри негерметичного твэла – вода в топливном столбе и вода в газосборнике. Радиолитиз воды в газосборнике твэла протекает только под действием гамма-излучения топлива (пробег альфа- и бета-частиц в воде составляет ~0,04 мм и ~0,85 мм, соответственно, при высоте газосборника 170 мм), т.е. мощность поглощенной дозы для воды в газосборнике в несколько раз меньше, чем для воды в топливной части твэла, и концентрация водорода в воде газосборника всегда будет ниже.

Важное практическое замечание при обосновании безопасности транспортирования негерметичного топлива РБМК-1000: в том случае, если негерметичный твэл полностью заполнен водой, включая газосборник, скорость выхода водорода в газовый объем ампулы определяется условиями радиолитиза воды в газосборнике под действием гамма-излучения и условиями массопереноса водорода между жидкой и газовой фазой. Альфа- и бета-излучение топлива негерметичного твэла практически не влияет на скорость накопления водорода в газовом объеме ампулы, а заполненный водой газосборник играет роль своеобразного «газового затвора». Это продемонстрировано различием скорости выхода водорода почти на порядок в

экспериментах с заполненным водой газосборником и без, при том, что зависимость радиационного выхода водорода от температуры значительно слабее.

### Заключение

Получены экспериментальные данные, позволяющие верифицировать расчетные модели для обоснования пожаро- и взрывобезопасности перевозки некондиционных ОТВС РБМК-1000 без предварительной осушки в герметичных ампулах.

Существенное расхождение между результатами расчетов и экспериментальными данными объясняется отсутствием учета при моделировании следующих факторов:

- зависимость концентрации водорода в газовой фазе от его концентрации в жидкости (закон Генри);
- обратные химические реакции, приводящие к рекомбинации продуктов радиолиза с образованием молекул воды.

Библиографический список:

1 Радиационные характеристики облученного ядерного топлива: Справочник/ В.М. Колобашкин, П.М. Рубцов, П.А. Ружанский, В.Д. Сидоренко.– М.: Энергоатомиздат, 1983.

2 С.А. Кабакчи, Г.П. Булгакова. Радиационная химия в ядерном топливном цикле. – М.:РХТУ им. Д.И. Менделеева, 1997.

3 J. Bruno, E. Cera, M. Grivé, Experimental determination and chemical modeling of radiolytic processes at the spent fuel/water interface. SKB Technical Report TR-99-26, 1999, Svensk Kärnbränslehantering AB.

4 P. Carbol, J. Cobos-Sabate, J. P. Glatz, B. Grambow, B. Kienzler, A. Loida, A. Martinez, E. Valiente, V. Metz, J. Quiones, C. Ronchi, V. Rondinella, K. Spahiu, D. H. Wegen, T. Wiss, The effect of dissolved hydrogen on the dissolution of <sup>233</sup>U doped UO<sub>2</sub>(s), high burn-up spent fuel and MOX fuel. SKB Technical Report TR-05-09, 2005, Svensk Kärnbränslehantering AB.

5 Cera E, Bruno, Duro L, Eriksen T E. Experimental determination and chemical modelling of radiolytic processes at the spent fuel/water interface. SKB Technical Report TR 06-07, Stockholm, 2006, Svensk Kärnbränslehantering AB.

6 Nilsson S., Jonsson M., On the catalytic effect of Pd(s) on the reduction of UO<sub>2</sub><sup>2+</sup> with H<sub>2</sub> in aqueous solution, J. Nucl. Mater., 2008, V. 374, P. 290-292.

7 Nilsson S, Jonsson M., On the catalytic effects of UO<sub>2</sub>(s) and Pd(s) on the reaction between H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> and H<sub>2</sub> in aqueous solution, J. Nucl. Mater., 2008, V. 372. – P. 160-163.