

При этом не требуется введение коэффициентов запаса, поскольку полученные значения объемной концентрации водорода будут заведомо консервативными из-за того, что при расчетах не учитывается снижение концентрации водорода за счет химических реакций. Учет последнего обстоятельства крайне сложен из-за наличия большого количества неопределенностей.

Библиографический список:

1. Оценка пожаро- и взрывобезопасности при транспортировке ОЯТ РБМК: техническая справка. /ООО НПФ «Сосны». – Москва, 2011.
2. Подготовка исходных данных по радиационным характеристикам и нуклидному составу ОЯТ РБМК-1000 для обоснования безопасности его транспортирования и оценки целесообразности переработки: техническая справка. / НИЦ «Курчатовский институт». – Москва, 2011.
3. New Generation VVER and RBMK Fuel: Results of Post-irradiation Examinations, Justification of Operational Reliability, D.V. Markov, S.V. Pavlov, A.Ye. Novoselov at al. // 2010 LWR Fuel Performance Meeting/TopFuel/WRFPM. – September 26-29, 2010, Orlando, Florida, USA.
4. Марков Д.В., Павлов С.В., Новосёлов А.Е. и другие. Топливо ВВЭР и РБМК нового поколения: результаты послереакторных исследований, обоснование надёжности и работоспособности. // Сборник докладов 9-ой Российской конференции по реакторному материаловедению, ОАО «ГНЦ НИИАР», Димитровград, 14–18 сентября 2009.
5. Обоснование ядерной, пожаро- и взрывобезопасности, тепловой расчет транспортно-упаковочного комплекта ТУК-11Р-2, загруженного 16 пучками ТВЭЛов опытной партии некондиционных ОТВС реактора РБМК-1000 Ленинградской АЭС: отчет. /ООО НПФ «Сосны». – Димитровград, 2011.
6. Кабакчи С.А., Булгакова Г.П.. Радиационная химия в ядерном топливном цикле: учебное пособие. – М.: РХТУ им. Менделеева, 1997.

ГАЯЗОВ А.З.<sup>1</sup>, КУЗЬМИН И.В.<sup>1</sup>, ЛЕЩЕНКО А.Ю.<sup>1</sup>, СЕРЕБРЯКОВ В.В.<sup>2</sup>,  
ХРЕНОВ А.С.<sup>2</sup>

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

<sup>2</sup>ОАО «Государственный научный центр научно-исследовательский институт атомных реакторов», г. Димитровград, Россия

### **ИССЛЕДОВАНИЕ ГРАНУЛОМЕТРИЧЕСКОГО СОСТАВА И ВЫХОДА РАДИОАКТИВНЫХ ВЕЩЕСТВ ИЗ ПРОДУКТОВ РЕЗКИ ПРИ МОДЕЛИРОВАНИИ РАЗДЕЛКИ ОЯТ АМБ ПОД ВОДОЙ**

Представлены методы, оборудование и результаты экспериментальных исследований гранулометрического состава продуктов резки облученного ТВЭЛА с дисперсным топливом (U-9%Mo)+Mg и выхода радиоактивных веществ из продуктов резки облученных ТВЭЛов с дисперсным топливом (U 9%Mo)+Mg и UC+Ca. Резку образцов прово-

дили в воде с помощью кольцевой биметаллической пилы на установке, размещенной в защитной камере. Определена удельная активность частиц каждой фракции продуктов резки твэла. Определена кинетика выхода  $^{137}\text{Cs}$  из продуктов резки в воду. Получен коэффициент распределения  $^{137}\text{Cs}$  между раствором и воздухом, а также скорость выхода альфа-излучающих аэрозолей с поверхности раствора.

ОЯТ реакторов АМБ Белоярской АЭС выгружено из реакторов и в настоящее время хранится в двух бассейнах выдержки Белоярской АЭС и в «мокром» хранилище ФГУП «ПО «Маяк». В ФГУП «ПО «Маяк» проектируется специальное здание (отделение разделки и пеналирования, ОРП) для подготовки ОЯТ реакторов АМБ к радиохимической переработке, которая предполагает разделку кассет с ОЯТ на топливную и конструкционную составляющие [1].

Особенностью данной технологии является резка и разборка ОТВС в водной среде. Опыт использования подобных технологий [2] подтверждает принципиальную возможность реализации рассматриваемого варианта обращения с ОЯТ. Для обеспечения оптимального консерватизма оценки радиационной обстановки при обосновании безопасности технологии разделки ОЯТ реакторов АМБ, а также для проектирования оборудования, например, защитной плиты бассейна разделки, систем спецводоочистки (СВО) и спецвентиляции, требуется проведение дополнительных исследований для получения следующих исходных данных:

- гранулометрического состава продуктов резки ОТВС;
- кинетики выхода радиоактивных веществ (РВ) из продуктов резки облученных твэлов в воду;
- выхода радиоактивных аэрозолей из воды, содержащей продукты резки, в воздух.

Для достижения поставленной задачи выполнен комплекс экспериментальных исследований по моделированию резки ОЯТ АМБ под водой. В представляемой статье изложены методы и результаты исследования состава и распределения по размерам продуктов резки образцов отработавших твэлов с дисперсным топливом (U-9%Mo)+Mg, а также результаты исследований выхода РВ из продуктов резки облученных твэлов с дисперсным топливом двух типов: UC+Ca и (U-9%Mo)+Mg.

### **Характеристики объектов исследования**

В ТВС, эксплуатировавшихся в реакторах АМБ, содержалось семь различных типов топливной композиции. Анализ состава топлива, подлежащего разделке, свидетельствует, что наибольшие изменения радиационной обстановки на рабочих местах персонала следует ожидать при резке ТВС с дисперсным топливом UC+Ca. Это обусловлено высокой скоростью выхода РВ в раствор в результате химической реакции частиц карбида урана и кальциевой матрицы с водой. В связи с этим для исследований в рамках данной работы выбраны фрагменты облученных твэлов с топливом UC+Ca. Кроме того, исследовали ОЯТ с наиболее распространенной топ-

ливной композицией – (U 9%Mo)+Mg (более 40% от всех ОТВС реакторов АМБ).

Исследуемые образцы представляли собой отрезки облученных твэлов реактора АМ, имеющих идентичный твэлам АМБ состав топливной композиции и аналогичную трубчатую конструкцию. Единственное отличие твэлов реактора АМ – меньшие диаметры внутренней и наружной оболочек [3].

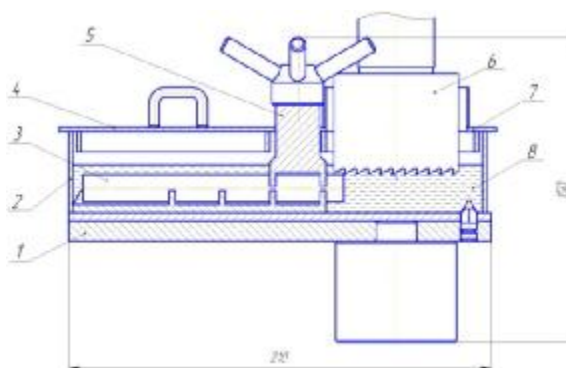
Для выбора участков вырезки образцов твэлов проводили аттестационные исследования, включавшие измерение диаметра, длины и массы, а также гамма-сканирование фрагментов твэлов АМ. Подробное описание примененных методик измерений приведено в работе [4].

Основной вклад в гамма-излучение топлива вносит  $^{137}\text{Cs}$ , что объясняется большой длительностью выдержки после эксплуатации – более 25 лет. По результатам аттестационных исследований из фрагментов центральной части облученных твэлов с равномерным распределением  $^{137}\text{Cs}$  были выбраны и вырезаны образцы длиной 130 мм. По оценке, выгорание топлива на выбранном участке для образцов с топливом (U-9%Mo)+Mg составило 23 МВт·сут/кг U, с топливом UC+Ca – 7 МВт·сут/кг U. Вырезка проводилась алмазным кругом с охлаждением зоны реза водой.

### Методика исследования

**Подготовка образцов продуктов резки.** Для получения образцов продуктов резки подготовленные фрагменты твэлов подвергали механической резке на внутрикамерной установке (рис. 1). Резку проводили под водой с помощью кольцевой биметаллической пилы «Sandflex» 3830-62-VIP фирмы Wasco. Конструкция ленточной пилы для разделки ОЯТ на Белоярской АЭС предусматривает использование полотна этой же модели. Основные характеристики кольцевой пилы:

- наружный диаметр – 62 мм;
- толщина полотна – 0,9 мм;
- шаг – переменный, 4/6 зуба на дюйм.



а)



б)

Рисунок 1. Схема (а) и внешний вид (б) экспериментальной установки резки: 1 – плита основания; 2 – съемная емкость; 3 – фрагмент твэла; 4 – задняя крышка; 5 – прижимная планка; 6 – кольцевая пила; 7 – передняя крышка, 8 – вода

Опилки, образовавшиеся при резке, подвергались гранулометрическому анализу. Воду и находящиеся в ней продукты резки использовали в качестве образцов в экспериментах по определению скорости выхода РВ из осадка в раствор и в экспериментах по определению выхода радиоактивных аэрозолей при испарении воды.

**Гранулометрический анализ** опилок производили дистанционно на внутрикамерном устройстве рассева, показанном на рис. 2. Использовали сита с размерами ячейки 500; 250; 160; 94 и 56 мкм, что, с одной стороны, обеспечивало удовлетворительную для решаемой задачи представительность результатов, а с другой – позволяло минимизировать объем внутрикамерных операций.

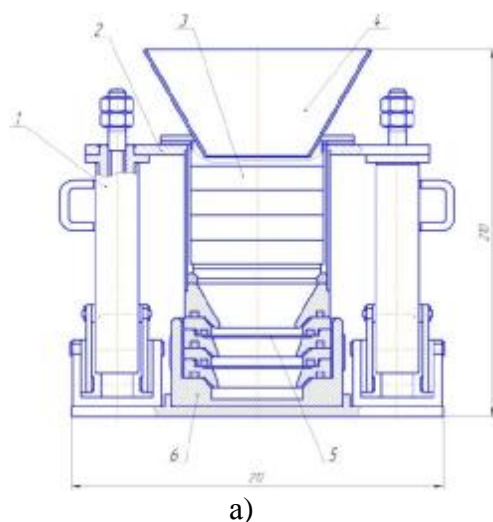


Рисунок 2. Схема (а) и внешний вид (б) устройства рассева:  
1 – стойка; 2 – прижимная плита; 3 – колонка сит; 4 – крышка-воронка;  
5 – фильтровальный элемент; 6 – корпус блока фильтров

Продукты резки загружали в устройство рассева вместе с водой. После откачки профильтрованной воды частицы продуктов резки на ситах и фильтре промывали этиловым спиртом и высушивали на воздухе. Осушенные опилки подвергали рассеву с помощью вибропривода с последующим взвешиванием. Массу частиц каждой фракции определяли как разность масс сита или фильтра до и после рассева. После взвешивания опилки из каждого сита передавали на гамма-спектрометрические измерения для определения удельной активности частиц разных фракций. Относительная погрешность результатов спектрометрических измерений не превышала 20 %.

**Определение кинетики выхода РВ из продуктов резки в воду.** В экспериментах по определению кинетики выхода РВ из продуктов резки в воду использовали устройство выдержки (рис. 3). Устройство представляло собой емкость, содержащую образец – раствор РВ с опилками ОЯТ.

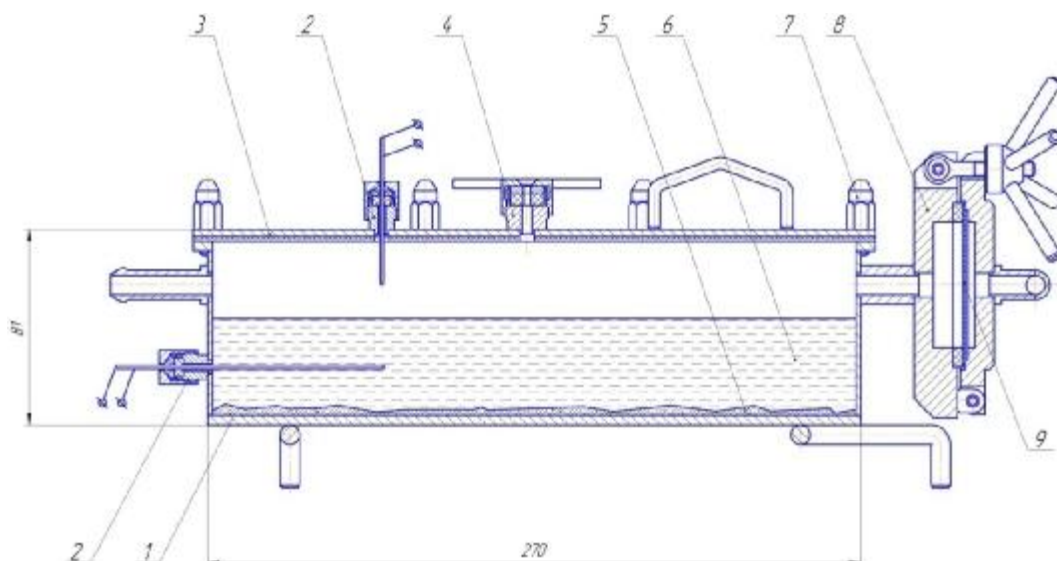


Рисунок 3. Схема устройства выдержки: 1 – корпус; 2 – разъем ТЭП; 3 – крышка; 4 – разъем для пробоотбора; 5 – образец продуктов резки; 6 – раствор РВ; 7 – прижимная гайка; 8 – фильтродержатель; 9 – фильтр.

Определение кинетики выхода РВ из продуктов резки твэла в воду проводили методом гамма-спектрометрического анализа периодически отбираемых проб раствора РВ из устройства выдержки. Состав и активность РВ в пробе определяли с помощью гамма-спектрометрической установки с полупроводниковым детектором ДГДК-80В. Относительная неопределенность измерения активности не превышала 12 % при доверительной вероятности 0,95.

Для определения относительного выхода РВ в воду при резке образца твэла и выдержке продуктов резки в воде растворяли отрезки твэлов длиной 2-3 мм в азотной кислоте с последующим измерением абсолютной активности РВ в полученном растворе. Неопределенность относительного выхода  $^{137}\text{Cs}$  не превышала 22 % при доверительной вероятности 0,95.

**Определение выхода радиоактивных аэрозолей при испарении воды, содержащей растворенные РВ.** Исследуемый образец представлял собой воду, в которой проводилась резка образцов облученных твэлов реактора АМ и дальнейшая выдержка продуктов резки. Перед проведением эксперимента измеряли объемную активность раствора с РВ.

Для организации продувки воздуха над поверхностью раствора к устройству подключали газовую линию. Аэрозоли, захваченные потоком воздуха с поверхности раствора РВ, улавливались аэрозольным гидрофобным фильтром АФА-РСП-20, установленным в фильтродержатель на выходном патрубке устройства. В течение эксперимента измеряли температуру раствора и продуваемого воздуха, а также контролировали расход воздуха через устройство. Погрешность поддержания заданного расхода воздуха не превышала 5 %.

Для определения активности альфа и гамма-излучающих радионуклидов на фильтрах, а также радионуклидного состава РВ проводились лабораторные радиометрические и спектрометрические исследования. Коэф-

коэффициент распределения гамма-излучающих нуклидов между водой и воздухом определяли по активности радионуклида на фильтре, объемной активности раствора РВ, расходу и времени продувки воздуха. Относительная неопределенность коэффициента распределения РВ между водой и воздухом не превышала 20 % при доверительной вероятности 0,95.

Для альфа-излучающих радионуклидов определяли скорость выхода, так как измерения их объемной активности в воде не проводились. Относительная неопределенность скорости выхода альфа-излучающих радионуклидов не превышала 30 % при доверительной вероятности 0,95.

### Результаты исследований

**Гранулометрический анализ продуктов резки ОЯТ (U-9%Mo)+Mg, относительная активность фракций.** Проведены два эксперимента с продуктами резки фрагментов облученных твэлов с топливом (U-9%Mo)+Mg. Скорость резки при подготовке образцов опилок в первом эксперименте (13,1 м/мин) была выбрана в соответствии с рекомендациями производителя пилы для резки нержавеющей и конструкционной стали. Скорость подачи пилы (5 мм/мин) выбрали на основе расчетной оценки времени резки одной тридцатипятиместной кассеты К-35 с ОТВС АМБ на Белоярской АЭС («проектный» режим резки). Во втором эксперименте исследовались продукты резки при повышенной до 23,4 м/мин скорости резания и сниженной до 1 мм/мин скорости подачи пилы. (Данный режим может быть использован в особо тяжелых условиях резки.) При этом образуются более мелкие опилки, что может ускорить выход РВ в воду, повлиять на изменение радиационной обстановки на рабочих местах обслуживающего персонала и эксплуатационные показатели СВО («консервативный» режим). Результаты гранулометрического анализа продуктов резки при разных режимах резки показаны на рис. 4.

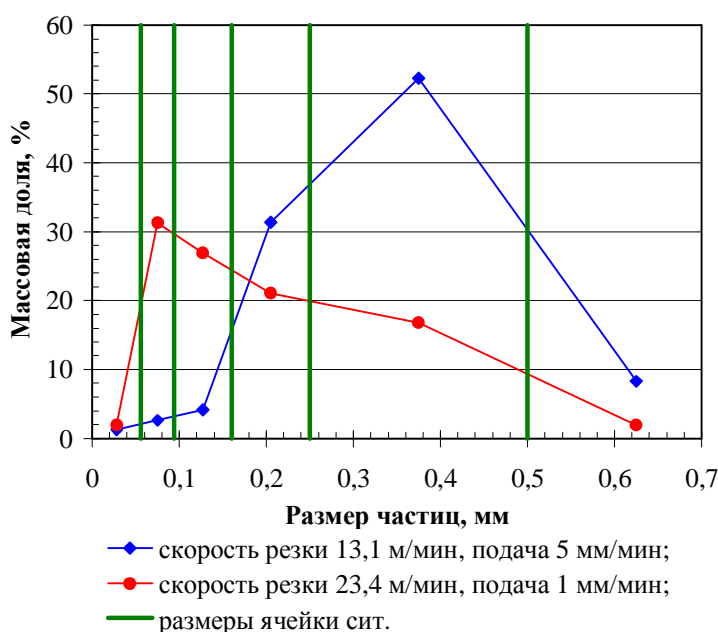


Рисунок 4. Гранулометрический состав продуктов резки твэла АМ с топливом (U-9%Mo)+Mg



При резке в «проектном» режиме распределение опилок ОЯТ по размерам имеет максимум, приходящийся на фракцию с размером частиц в диапазоне  $0,25 \div 0,5$  мм. Массовая доля частиц размером менее  $0,094$  мм составляет  $3,9$  %. При резке в «консервативном» режиме наибольшую массу имеет фракция с размером частиц от  $0,056$  до  $0,094$  мм. Массовая доля частиц размером менее  $0,094$  мм составляет  $33,2$  %. Ширина реза не зависит от режима резки ( $3,0$  мм в обоих режимах).

Результаты гамма-спектрометрического анализа фракций опилок ОЯТ (U-9%Mo)+Mg, а также образца из фрагмента облученного твэла АМ приведены на рис. 5. Относительная удельная активность всех фракций опилок, полученных при «консервативном» режиме резки, примерно одинакова и равна относительной удельной активности целого фрагмента твэла (образца-свидетеля). Исключение составляет фракция наиболее крупных частиц. В нее входят в основном стальные опилки и заусенцы, чем и объясняется низкая удельная активность фракции.

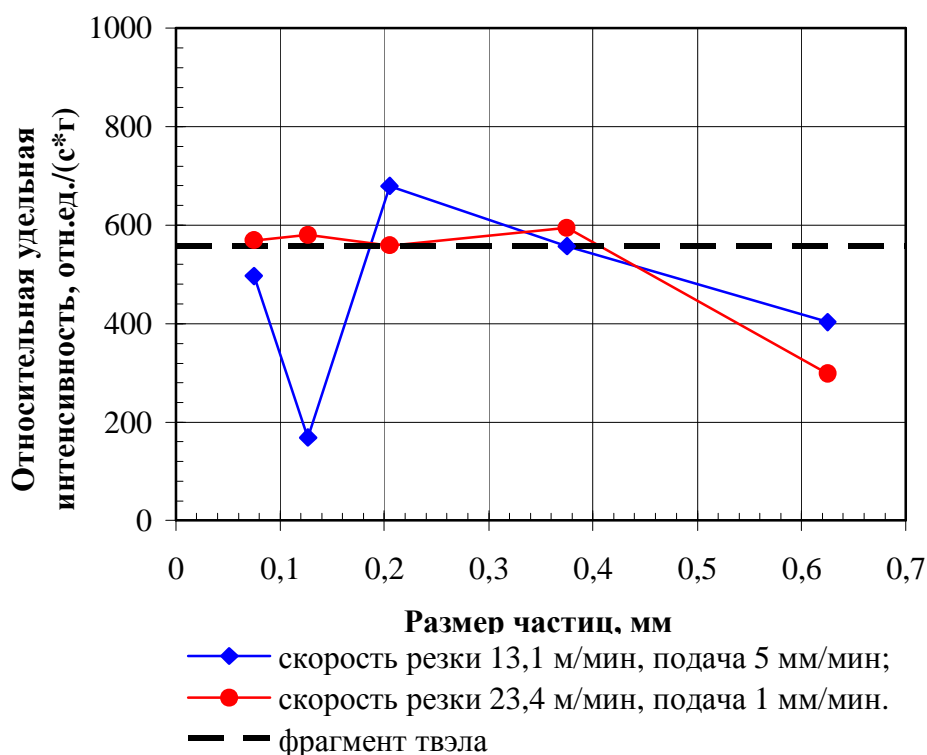


Рисунок 5. Результаты гамма-спектрометрического анализа просеянных фракций опилок твэла АМ с топливом (U-9% Mo) + Mg

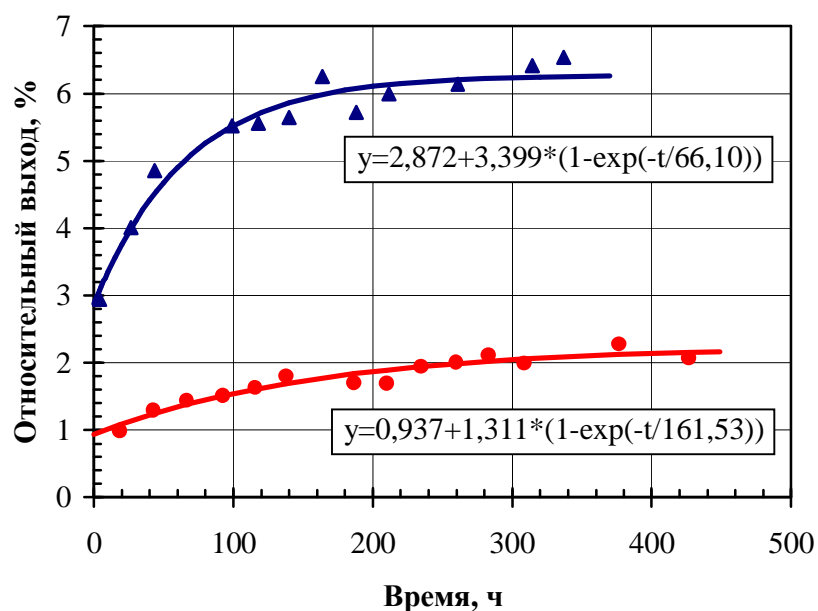
При резке в «проектном» режиме фракции с размером частиц более  $500$  мкм и от  $94$  до  $160$  мкм также обеднены топливом. Можно предположить, что причиной пониженной активности этой фракции является выкрашивание топливных частиц с размером  $0,094 - 0,160$  мм из матрицы. Косвенным подтверждением этой гипотезы служит несколько повышенная активность фракции размером  $0,16 \div 0,25$  мм.

Доля активности для частиц размером менее 0,094 мм от общей активности опилок составляет 2,4 и 32 % при резке в «проектном» и «консервативном» режиме, соответственно.

**Кинетика выхода РВ в воду.** Для подготовки образцов опилок были выполнены резки в «проектном» и «консервативных» режимах. В ходе каждой резки провели по 8 резов образцов твэла.

Кинетика относительного выхода  $^{137}\text{Cs}$  в воду из продуктов резки ОЯТ (U-9%Mo)+Mg приведена на рис. 6. Активность  $^{137}\text{Cs}$ , вышедшего из опилок после резки в «консервативном» режиме, не превысила 1,55 ГБк, что соответствует относительному выходу 6,3 %. 90 % вышедшего в воду  $^{137}\text{Cs}$  перешло в раствор за 120 часов выдержки.

После выдержки в воде опилок, полученных при резке в «проектном» режиме, активность вышедшего из них  $^{137}\text{Cs}$  составила 0,52 ГБк, что соответствует относительному выходу 2,2 % от исходной активности  $^{137}\text{Cs}$ , содержавшегося в топливе до резки. 90 % вышедшего в воду  $^{137}\text{Cs}$  перешло в раствор за 280 часов выдержки топлива в воде.



● скорость резки - 13,1 м/мин, подача - 5 мм/мин;

▲ скорость резки - 23,4 м/мин, подача - 1 мм/мин.

Рисунок 6. Кинетики выхода  $^{137}\text{Cs}$  из продуктов резки ОЯТ (U-9% Mo)+Mg в воду

Большая скорость выхода и высокий результирующий относительный выход  $^{137}\text{Cs}$  из опилок, полученных при резке в «консервативном» режиме, объясняются большей долей мелких фракций опилок и, следовательно, большей удельной поверхностью частиц.

Кинетика относительного выхода  $^{137}\text{Cs}$  в воду из продуктов резки ОЯТ UC+Ca приведена на рис. 7. Активность  $^{137}\text{Cs}$  в воде составила 0,25 ГБк после 100 часов выдержки опилок, что соответствует относительному выходу 68 % от исходной активности  $^{137}\text{Cs}$ , содержавшегося в топливе до резки. Выход  $^{137}\text{Cs}$  практически прекратился уже через 10 часов выдержки. После выдержки раствора обнаружено выпадение мелкодисперсного осад-



ка нерастворимого диоксида урана, образующегося при реакции карбида урана с водой [5, 6]. Сорбцией на мелкодисперсных частицах осадка объясняется неполный выход цезия в раствор.

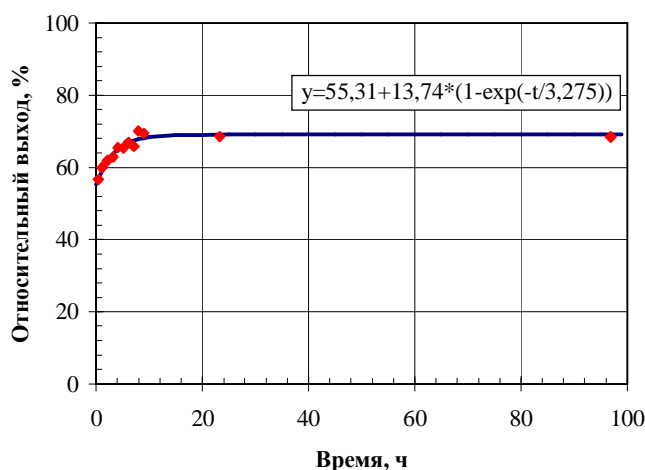


Рисунок 7. Кинетика выхода  $^{137}\text{Cs}$  из продуктов резки ОЯТ UC+Ca в воду

**Выход радиоактивных аэрозолей при испарении воды, содержащей растворенные РВ.** Полученные в серии экспериментов результаты и параметры их проведения приведены в таблице. Полученные результаты хорошо согласуются с данными работы [7], в которой представлены исследования межфазного распределения  $^{137}\text{Cs}$  между водой и водяным паром. Коэффициент распределения цезия в данной работе составил  $5 \cdot 10^{-9}$ .

Коэффициент распределения  $^{137}\text{Cs}$  между воздухом и водой после выдержки в ней ОЯТ UC+Ca на порядок меньше, чем после выдержки (U-9%Mo)+Mg. В обоих случаях коэффициент распределения цезия и скорость выхода альфа-излучающих радионуклидов возрастают при повышении скорости воздуха.

Таблица. Параметры и результаты экспериментов по определению выхода радиоактивных аэрозолей с поверхности раствора РВ

Тип топлива	U-9% Mo			UC+Ca		
	проектный	консервативный				
Режим резки						
Скорость воздуха, м/с	0,3	0,29	1,40	0,3	0,58	1,4
Время продувки, мин	20	20	20	20	20	20
Температура воды, °C	28,5	29	29	24	24	20
Температура воздуха, °C	29	30	30	26	26	22
Коэффициент распределения $^{137}\text{Cs}$ , $\times 10^{-9}$	$3,8 \pm 0,4$	$5,0 \pm 0,8$	$3,5 \pm 0,5$	$0,47 \pm 0,09$	$0,83 \pm 0,13$	$0,24 \pm 0,04$
Скорость выхода альфа-излучающих радионуклидов, Бк/(с·м <sup>2</sup> )	$3,1 \pm 0,5$	$1,6 \pm 0,3$	$9,3 \pm 2,0$	–	$2,3 \pm 0,7$	$16,5 \pm 3,4$
Доля активности-альфа-излучателя, %	$^{241}\text{Am} + ^{238}\text{Pu}$	56	41	–	66	66
	$^{239}\text{Pu}$	42	42	–	28	26
	$^{244}\text{Cm}$	–	18	–	6	8

### Заключение

Выполненные экспериментальные исследования, моделирующие условия разделки облученных твэлов АМБ на специально созданных установках, позволили определить гранулометрический состав продуктов резки топлива U-9%Mo в магниевой матрице, кинетику выхода РВ из продуктов резки в воду и выход радиоактивных аэрозолей при испарении воды, содержащей растворенные РВ, для двух типов топлива: U-9%Mo в магниевой матрице и UC в кальциевой матрице.

Полученные экспериментальные данные используются при проектировании оборудования комплекса разделки ОЯТ, при разработке методик учета и контроля ядерных материалов при обращении с ОЯТ, а также для обоснования ядерной и радиационной безопасности технологии проведения работ по разделке ОЯТ АМБ.

#### Библиографический список:

1. Кудрявцев Е.Г., Смирнов В.П. Создание технологий обращения с ОЯТ АМБ. // Безопасность окружающей среды. – 2010. – №1. – С. 66-68.
2. Смирнов В.П., Звир Е.А. Разработка принципиальной технологии вывоза ОЯТ АЭС «Пакш». // Безопасность окружающей среды. – 2010. – №1. – С. 80-83.
3. Емельянов И. Я. и др. Конструирование ядерных реакторов. / Под общ. ред. акад. Н.А. Доллежала. – М: Энергоиздат, 1982.
4. Смирнов В.П. Разработка и совершенствование методов и средств исследований ТВС и твэлов для лицензирования топлива ЯЭУ: автореферат диссертации на соиск. учён. степ. д-ра техн. наук. – Димитровград: ГНЦ РФ НИИАР, 1995. – 47 с.
5. Yoshio Hori, Takashi Mukaibo. Study on the Rate and the Products of the Reaction between Uranium Monocarbide and Water. Journal of Nuclear Science and Technology, 4[9] p.477-481, 1967.
6. Р.Б. Котельников, С.Н. Башлыков и др. Высокотемпературное ядерное топливо. – М.: Атомиздат, 1969.
7. Мартынова О.И., Назаров А.И., Чечеткин Ю.В. Радиоактивность теплоносителя кипящего реактора ВК-50. // Атомная энергия. – т. 23, вып. 4, 1967.