

ИССЛЕДОВАНИЕ ОБРАЗОВАНИЯ ГОРЮЧИХ ГАЗОВ И ВЫХОДА РАДИОНУКЛИДОВ ПРИ ОБРАЩЕНИИ С ОЯТ РЕАКТОРА АМ ПОД ВОДОЙ

А.З. Гаязов*, А.Ю. Лещенко*, В.П. Смирнов*, П.А. Ильин, В.Г. Теплов****

* ООО НПФ «Сосны»

433507, Ульяновская обл., г. Димитровград, пр. Димитрова, д. 4а

** АО «ГНЦ НИИАР»

433510, Ульяновская обл., г. Димитровград, Западное шоссе, д. 9



Приведены результаты экспериментов по исследованию накопления горючих газов в условиях, моделирующих обращение с негерметичным ОЯТ реактора АМ в воде. Исследовались две топливные композиции: уран-молибденовое топливо с магниевым подслоем и карбид урана с кальциевым подслоем.

Измерен выход ^{137}Cs при хранении уран-молибденового топлива под водой. Получены кинетики выхода водорода для обоих типов топливных композиций, а также кинетика образования метана для карбидного ОЯТ. Кинетики наилучшим образом аппроксимируются экспоненциальными зависимостями, которые формально соответствуют химическим реакциям первого порядка.

Произведена расчетная оценка вклада радиолитического водорода в объем образующихся в экспериментах газов. Показано, что определяющим источником образующихся газов является химическое взаимодействие материалов ОЯТ с водой.

Эксперимент с уран-молибденовым топливом показал ярко выраженный эффект пассивации химических процессов на поверхности топлива вследствие образования нерастворимых продуктов коррозии. В испытаниях карбидного ОЯТ наблюдался инкубационный период около 20-ти часов с последующим интенсивным выходом водорода и метана.

Проведен сравнительный анализ полученных результатов с опубликованными данными по поведению компонентов исследованных топливных композиций в воде.

Полученные данные могут использоваться для обоснования пожаро-взрывобезопасности технологий обращения с разрушенным ОЯТ с рассмотренными топливными композициями (ОЯТ реакторов АМ, АМБ, ЭГП-6 и др.) в воде, например, при обосновании технологий подготовки ОЯТ АМБ к переработке под слоем воды.

Ключевые слова: пожаровзрывобезопасность, разрушенное ОЯТ, реактор АМ (АМБ), радиолиз, водород, метан, хранение в воде.

ВВЕДЕНИЕ

Для безопасного обращения с ОЯТ и РАО в присутствии воды на всех стадиях топливного цикла требуется обоснование пожаровзрывобезопасности применяемых тех-

© А.З. Гаязов, А.Ю. Лещенко, В.П. Смирнов, П.А. Ильин, В.Г. Теплов, 2021

нологий. Горючие газы могут накапливаться в оборудовании не только за счет радиолиза воды, но и за счет химических реакций в случае обращения с негерметичным ОЯТ.

В общем виде скорость реакции с образованием горючих газов зависит от многих причин: от природы и концентрации веществ, давления, температуры, наличия катализаторов, примесей и их концентрации, степени разрушения ОЯТ, геометрии оборудования, мощности дозы излучения. Даже в простом случае оксидного ОЯТ ВВЭР невозможно аналитически учесть влияние всех составляющих на процесс образования водорода [1]. Тем более это справедливо при необходимости описания выхода горючих газов и радионуклидов из многокомпонентных видов ОЯТ, например, фрагментов ОЯТ АМБ (Атом Мирный Большой) в водной или влажной среде.

Процессы образования горючих газов в водной среде для топлива сложного состава мало изучены, и для обоснования пожаровзрывобезопасности требуется применение физического моделирования разрушенного ОЯТ и получение экспериментальных зависимостей выхода горючих газов для предполагаемых в дальнейшем условиях обращения с масштабированием и экстраполяцией полученных результатов при необходимости.

Приведены результаты выполненных в АО «ГНЦ НИИАР» экспериментов по исследованию накопления горючих газов и расчётов в ООО НПФ «Сосны» накопления радиолитического водорода в условиях, моделирующих обращение с негерметичным ОЯТ АМ (АМБ) с магниевым и кальциевым подслоем в воде. Полученные данные могут использоваться для обоснования пожаровзрывобезопасности технологий обращения с разрушенным ОЯТ АМ (АМБ), например, при обосновании технологий подготовки ОЯТ под слоем воды к радиохимической переработке [2 – 4].

ВЫБОР И АТТЕСТАЦИЯ ОЯТ ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЙ

Состав топливной композиции (ТК) ОЯТ АМБ меняется в широких пределах. ТК содержит от 1 до 20% ^{235}U и состоит как из оксида урана, так и из сплава металлического урана с молибденом в матрице из магния ((U-9%Mo)+Mg) или из карбида урана в матрице из кальция (UC+Ca). С учётом работы [1], где приведены результаты выхода водорода и продуктов деления из оксидного ОЯТ, эксперименты выполнялись с фрагментами твэлов облученного топлива исследовательского реактора АМ, прототипа ОЯТ АМБ, с ТК (U-9%Mo)+Mg и UC+Ca.

Для исследований были выбраны три партии отработавших твэлов реактора АМ (табл. 1).

Таблица 1

Характеристики твэлов реактора АМ, выбранных для исследований

Партия (твэлы)	Номер ТВС	Топливная композиция	Обогащение по ^{235}U , %	Период облучения	Выгорание, МВт-сут/кгU
1 (№№ 1, 2)	АМК-Б-16	UC+Ca	10	07.1968 – 06.1969	6
2 (№№ 3, 4)	Д-62	(U-9%Mo)+Mg	6,5	23.01.1979 – 10.04.1984	20
3 (№№ 5, 6)	Д-45	(U-9%Mo)+Mg	6,5	21.09.1979 – 10.04.1984	20

Визуальный осмотр твэлов показал, что твэл № 2 с ТК UC+Ca является негерметичным и имеет видимые повреждения. Все остальные твэлы с большой долей вероятности герметичны. Результаты гамма-сканирования указывают на отсутствие вымывания топлива из всех отобранных твэлов. Гамма-спектрометрия растворенных образцов ОЯТ показала, что единственным видимым радиоактивным изотопом является ^{137}Cs (наблюдались следы ^{134}Cs и ^{154}Eu), который имеет максимальную удельную активность $1,08 \cdot 10^9$ Бк/г для ОЯТ с ТК (U-9%Mo)+Mg и $2,7 \cdot 10^8$ Бк/г для ОЯТ с ТК UC+Ca.

Линейная плотность твэлов определялась с помощью измерения длины и массы

фрагментов и составила $7,1 \pm 0,3$ г/см для твэлов с ТК UC+Ca и $9,1 \pm 0,6$ г/см для твэлов ТК (U-9%Mo)+Mg.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ОБОРУДОВАНИЕ И ПОРЯДОК ПРОВЕДЕНИЯ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

Для исследования поведения разрушенного топлива в условиях, моделирующих обращение с негерметичным ОЯТ АМ (АМБ) с магниевым и кальциевым подслоем, в Отделении реакторного материаловедения АО «ГНЦ НИИАР» использовался внутрикамерный стенд с автоматизированным управлением технологическими параметрами экспериментов. В состав экспериментального оборудования входили модельный пенал и системы нагрева, паропроводов, фильтрации, конденсации, откачки, заполнения и пробоотбора газовой среды, масс-спектрометр ЭМГ-20-8, блок детектирования ИРГ БДГБ-02П, автоматизированная система управления (АСУ). Более подробное описание стенда и используемого измерительного оборудования приведено в [1].

Исследуемые образцы ОЯТ в виде фрагментов твэлов загружались в выемную часть, которая располагалась в цилиндрическом пенале.

В процессе исследований при выдержке ОЯТ в воде контролировали давление, концентрации водорода и метана в свободном объеме пенала, а также концентрацию ^{137}Cs в воде после эксперимента.

РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТОВ И ОБСУЖДЕНИЕ

Результаты экспериментов с фрагментами твэлов с ТК (U-9%Mo)+Mg

Семь фрагментов твэлов № 3 и № 4 реактора АМ с топливной композицией (U-9%Mo)+Mg длиной около 245 мм каждый и общей массой 1.565 кг размещались в герметичном пенале под слоем воды. Для снятия окисного слоя с торцов фрагментов твэлов предварительно отрезали по 1 мм. Свободный объем пенала заполнялся аргоном с давлением 1 бар. Длительность выдержки составляла 380 часов с периодическим отбором проб для анализа газового состава. Через восемь суток от начала замачивания отбиралась проба воды из пенала и проводился гамма-спектрометрический анализ, который показал наличие в растворе ^{137}Cs с общей активностью $(1.6 \pm 0,2) \cdot 10^8$ Бк в объеме 2.9 л. При аттестации твэлов перед экспериментом было установлено, что максимальная погонная активность ^{137}Cs в твэлах составляет $9.74 \cdot 10^9$ Бк/см. По этим данным глубина выщелачивания ^{137}Cs из ОЯТ с каждого торца фрагмента на момент отбора пробы оценочно составляет 12 мкм.

В пробах газовой среды из пенала обнаруживался только водород. Кинетика образования водорода приведена на рис. 1 и наилучшим образом аппроксимируется экспоненциальной зависимостью, которая формально соответствует химической реакции первого порядка,

$$V = 356 \cdot [1 - \exp(-0.0075t)], \quad (1)$$

где V – объем выделившегося водорода при н.у., см³; t – время, ч.

Исходя из определенной при аттестации максимальной удельной активности ^{137}Cs в твэлах с топливом (U-9%Mo)+Mg произведена оценка вклада выхода радиолитического водорода при хранении ОЯТ в пенале в ходе эксперимента.

Расчет скорости накопления радиолитического водорода осуществлялся по формуле

$$v = V_M \cdot G_\gamma \cdot D_{CS} \cdot m_B / (100 \cdot N_A \cdot 1.6 \cdot 10^{-19} \cdot 3600), \quad (2)$$

где v – скорость образования радиолитического водорода при н.у., л/с; V_M – молярный объем газов при н.у. (22,4 л/моль); G_γ – радиационный выход молекулярного водорода при поглощении водой 100 эВ энергии γ -излучения (0,45 молекулы/100 эВ [5, 6]); D_{CS} – мощность поглощенной дозы γ -излучения нуклида ^{137}Cs , Гр/ч; m_B – масса воды в пенале, г; N_A – постоянная Авогадро ($6.02 \cdot 10^{23}$ молекул/моль).

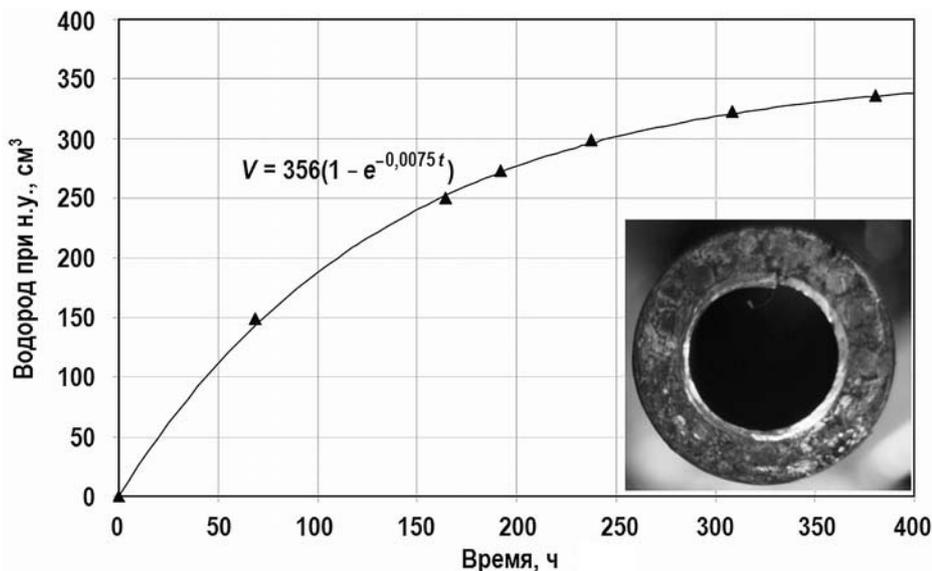


Рис. 1. Кинетика накопления водорода в свободном объёме пенала при хранении фрагментов твэлов реактора АМ с ТК (U-9%Mo)+Mg в воде и фотография торца фрагмента твэла

В расчете не учитывали радиолиз воды за счет α - и β -излучений, так как выход этих частиц осуществляется только с торцов твэлов из тонкого слоя с толщиной, равной пробегу частиц в металлическом уране ($17,5 \text{ мг/см}^2$ [7] или 9 мкм для α -частиц с энергией 5 МэВ и 348 мг/см^2 [8], или 183 мкм для β -частиц с энергией 500 кэВ). При этом суммарная активность α -излучающих нуклидов в топливе реактора АМ по имеющимся данным на один – два порядка меньше активности ^{137}Cs , а суммарную активность β -излучающих нуклидов можно принять равной активности ^{137}Cs .

Расчет мощности поглощенной дозы γ -излучения проводили с использованием модуля MAVRIC [9], входящего в состав программного комплекса SCALE 6.1.2 [10], разработанного Окриджской национальной лабораторией для Комиссии по ядерному регулированию США. Модуль MAVRIC программного комплекса SCALE предназначен для расчёта интенсивности частиц и мощности дозы от источника сложной геометрии на основе методов Монте-Карло.

Для получения консервативной оценки мощности поглощенной дозы в воде пенала проведены несколько расчетов с различной геометрией размещения фрагментов твэлов в пенале, при этом один фрагмент твэла размещался по центральной оси пенала, а остальные симметрично располагались на одинаковом расстоянии от оси, образуя периферийный ряд.

На рисунке 2 представлена иллюстрация расчетной модели пенала с размещенными внутри семью фрагментами твэлов реактора АМ.

На рисунке 3 приведена зависимость расчетной мощности поглощенной дозы в воде пенала от расположения периферийного ряда фрагментов твэлов на различном радиусе от оси пенала. В результате была определена геометрия с максимальной мощностью дозы для всего объема воды в пенале, которая составила $12,9 \text{ Гр/ч}$. Расчетная оценка скорости образования радиолитического водорода при н.у. составила $1,1 \cdot 10^{-8} \text{ л/с}$, что за время эксперимента соответствует накоплению 15 см^3 водорода, т.е. $4,5\%$ от измеренного в эксперименте. Таким образом, кинетика накопления водорода при хранении ОЯТ реактора АМ типа (U-9%Mo)+Mg практически определяется электрохимическими процессами коррозии материалов топливной композиции.

Конструкция твэлов реактора АМ представляет собой частицы сплава U-9%Mo, зали-

тые в матрице из расплава Mg между двумя трубчатыми оболочками из нержавеющей стали 06X18H10T (см. рис. 1), что обуславливает при погружении в воду возникновение гальванопар между разнородными металлами и интенсивную электрохимическую коррозию.

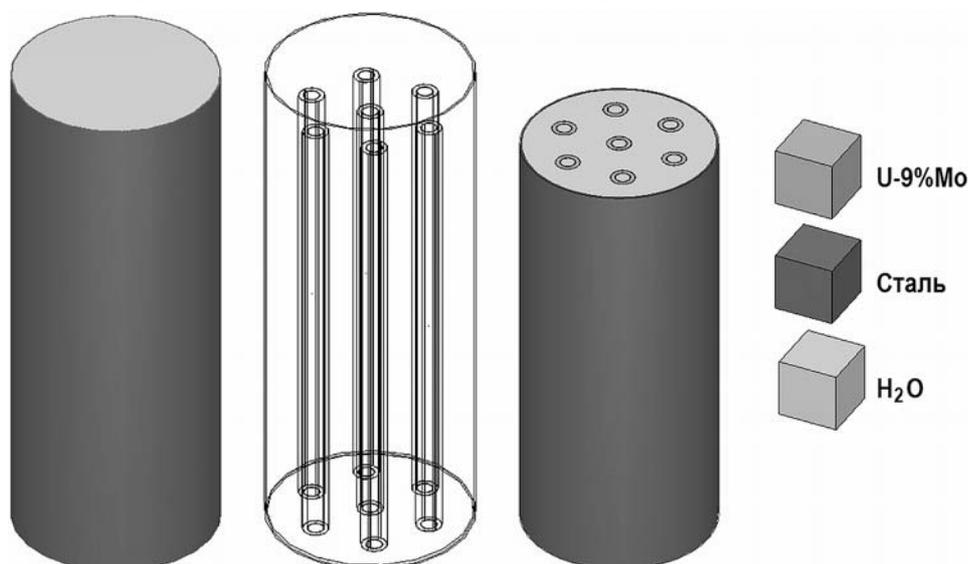


Рис. 2. Иллюстрация геометрии расчетной модели в SCALE 6.1.2

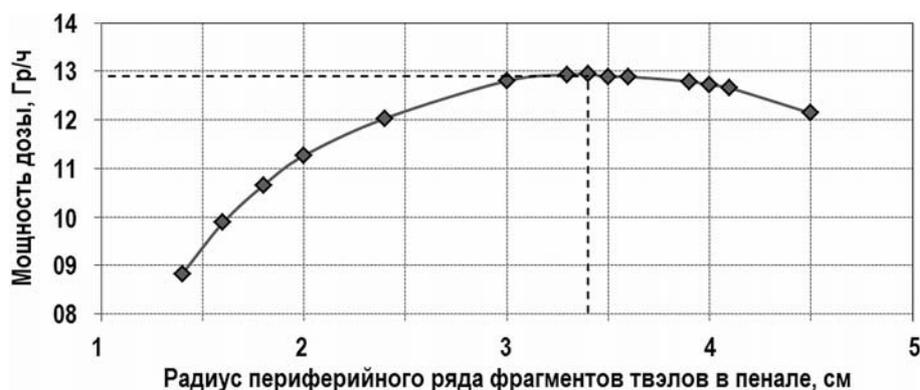
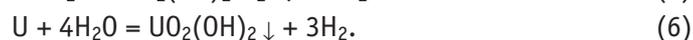
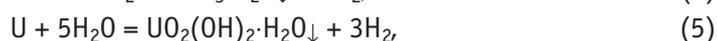
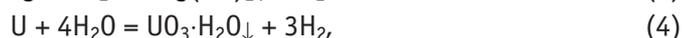
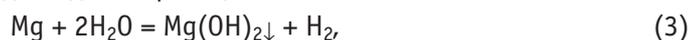


Рис. 3. Зависимость расчетной мощности поглощенной дозы в воде пенала от расположения фрагментов твэлов периферийного ряда на различном радиусе от оси пенала

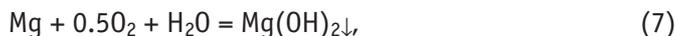
В этой системе металлов наиболее отрицательные стандартные электродные потенциалы имеют магний ($E_{Mg^{2+}/Mg} = -2.363$ В) и уран ($E_{U^{3+}/U} = -1.789$ В, $E_{U^{4+}/U} = -1.5$ В) по сравнению с молибденом и нержавеющей сталью [11], поэтому процессы коррозии протекают, в основном, с образованием нерастворимых гидроксидов по следующим реакциям с водородной депполяризацией:



Наблюдаемое снижение выхода водорода в эксперименте можно объяснить тем, что образующиеся нерастворимые продукты коррозии затрудняют доступ воды к поверхности металла, что приводит к постепенному снижению скорости реакций (3) – (6) до их полной остановки.

В предположении образования водорода за счет коррозии открытой поверхности топлива (которая в эксперименте составляет ~ 12.6 см²) можно заключить, что при любых временах хранения в воде ОЯТ АМБ в виде фрагментов твэлов с магниевой матрицей удельный на единицу площади открытой поверхности топлива приведенный к н.у. выход водорода не превысит 30 мл/см². В предположении, что весь водород в эксперименте образовался за счет реакции (3), оценка прореагировавшего слоя ТК с магниевым подслоем составляет около 370 мкм с каждого торца фрагмента твэла, что значительно превышает толщину прореагировавшего слоя, оцененную по глубине выщелачивания ¹³⁷Cs из ОЯТ.

Подобные лабораторные коррозионные испытания образцов ОЯТ реактора АМБ с топливными композициями типа (U-3%Mo)+Mg и (U-9%Mo)+Mg приведены в работе [11]. При выдержке образца ОЯТ с топливом (U-9%Mo)+Mg при температуре 40°C в течение 270-ти суток в пенале объемом 800 см³ под слоем воды (60 см³), контактирующей с воздухом, замедления скорости выхода водорода не происходило, однако наблюдалась убыль кислорода из свободного объема пенала. В этом случае образцы ОЯТ представляли собой фрагменты твэла, обработанные под специальную форму (в виде «радиаторов»), содержащие как оболочку, так и топливо, с кольцевыми пропилами наружной оболочки и топливного сердечника для увеличения общей поверхности топливного сердечника (около 40 см²). Грубая оценка по приведенным в работе [11] данным показывает, что за 270 суток количество образовавшегося водорода на единицу площади поверхности топлива, находящегося под слоем воды с воздушной средой в свободном объеме пенала, на порядок меньше, чем с инертной средой в свободном объеме пенала с топливом АМ за 16 суток, что, видимо, обусловлено преобладающим протеканием реакций с кислородной деполяризацией в присутствии кислорода воздуха



Однако эксперимент с фрагментами твэлов реактора АМ с ТК (U-9%Mo)+Mg при отсутствии кислорода в свободном объеме пенала показал ярко выраженный эффект пассивации химических процессов на поверхности топлива при протекании реакций (3) – (6) с водородной деполяризацией из-за образования нерастворимых продуктов коррозии компонентов ТК.

Результаты экспериментов с фрагментами твэлов с ТК UC+Ca

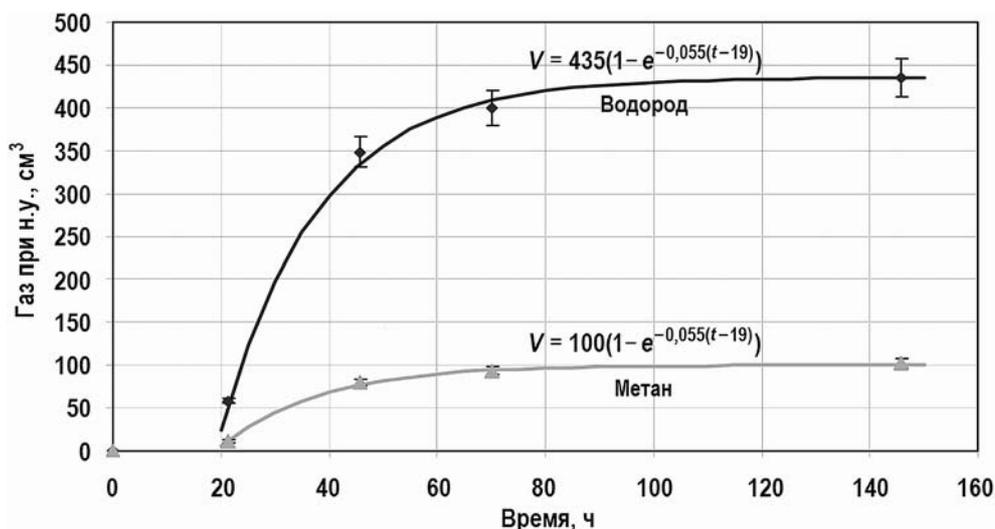


Рис. 4. Водород и метан в свободном объеме модельного пенала с замоченным в воде образцом твэла с ТК UC+Ca
В эксперименте использовали фрагмент твэла с топливной композицией UC+Ca длиной

10 мм и массой 7,12 г. В пенал наливали 0,98 л воды, свободный объём пенала составлял 2,6 л. Общее время выдержки в воде составило 150 часов. В пробах газа обнаруживались водород и метан, кинетики выхода которых приведены на рис. 4. Интенсивному выделению газов предшествует инкубационный период длиной около 20 ч. Скорость выделения газов экспоненциально уменьшается со временем и по истечении около 100 ч практически прекращается из-за полной коррозионной деградации топливной композиции.

Исходя из определенной при аттестации максимальной удельной активности ^{137}Cs в твэлах с топливом UC+Ca произведена оценка вклада выхода радиолитического водорода при хранении ОЯТ в пенале в ходе эксперимента.

Расчет скорости накопления радиолитического водорода осуществлялся в предположении, что весь экспериментальный образец растворился в воде пенала и радионуклиды равномерно распределены по объему раствора; при этом использовали формулу

$$v = \frac{V_M \cdot G_\gamma \cdot D_{\text{Cs}} \cdot m_b}{100 \cdot N_A \cdot 1.6 \cdot 10^{-19} \cdot 3600} + \frac{V_M \cdot (G_\alpha \cdot A_\alpha \cdot E_\alpha + G_\beta \cdot A_\beta \cdot E_\beta)}{100 \cdot N_A}, \quad (9)$$

где G_α и G_β – радиационные выходы молекулярного водорода при поглощении водой 100 эВ энергии α - и β -излучения (1,8 [12, 13] и 0,45 молекулы/100 эВ соответственно [5, 6]); A_α , A_β – активность α - и β -излучающих радионуклидов в воде пенала, Бк; E_α , E_β – максимальная энергия α - и β -излучающих радионуклидов, кэВ (5,5 и 0,5 МэВ, соответственно).

Расчет мощности поглощенной дозы γ -излучения проводили с использованием модуля MAVRIC программного комплекса SCALE 6.1.2. Для α - и β -излучений предполагалось, что вся их энергия поглощается водой в пенале. Активность β -излучающих радионуклидов принималась равной активности ^{137}Cs . Данные по α -активности образца отсутствовали, однако на основании сведений о том, что удельная α -активность аналогичного по параметрам ОЯТ реактора АМБ в 10 – 50 раз меньше удельной активности ^{137}Cs , консервативно α -активность в образце была принята равной половине активности ^{137}Cs .

Оценка выхода радиолитического водорода составила $3.8 \cdot 10^{-9}$ л/с, что за время эксперимента соответствует накоплению всего 2 см³ водорода, т.е. 0.5% от измеренного в эксперименте.

Проведенная расчетная оценка, как и для топлива с магниевой матрицей, показала, что образованием водорода за счет радиолитического распада воды в эксперименте можно пренебречь.

Наличие инкубационного периода может быть связано с медленным растворением продуктов коррозии (оксидов), образующихся на поверхности торцевых резцов при разделке твэлов в воздушной атмосфере.

На основании паспортных данных на ТВС и геометрии образца произведена расчетная оценка массы карбида урана и кальция в образце, которые составили 4,63 г и 0,88 г соответственно. При взаимодействии кальция с водой образуется гидроксид кальция и водород в количестве 560 см³ на 1 г Ca, а при гидролизе карбида урана – гидратированная двуокись урана и, в основном, метан с водородом, а также небольшое количество высших углеводов [14 – 18].

В таблице 2 приведены опубликованные данные по объему выделяющихся газов на 1 г карбида урана, а также доли метана и водорода в газе при гидролизе облученного и необлученного карбида урана. В той же таблице приведены оценки максимально возможного количества водорода и метана для экспериментального образца ОЯТ АМ при условии его полной коррозионной деградации. Максимально возможное количество водорода за счет реакции кальция с водой для экспериментального образца составляет 493 мл при н.у.

Опубликованные данные по объему выделяющихся газов на 1 г необлученного УС, доля CH_4 и H_2 в газе при гидролизе УС при температуре 80 °С, максимально возможное количество CH_4 и H_2 для экспериментального образца

Источник	[10]	[11]	[12]	[13]	[13]	[13]	[10]	[13]	[13]	[10]	[13]
Температура, °С	80	80	80	25 – 99	25 – 99	80	80	25 – 99	60 – 80	80	99
Выгорание, МВт-сут/кгУ	0	0	0	0	0	0	600	3375	4333	6000	16667
Объем газа при н.у., мл/гУС	90,4	92	67,3	90,6	91,5	98,9	96,2	98,7	–	–	–
Доля CH_4 , %	88	86	86	82,2	87,7	76,7	67	69	37 – 62	–	19,1
Доля H_2 , %	8,9	11	11	11	8,8	20,9	28	25,8	33 – 59	–	77,1
Оценка объема CH_4 при н.у. для ОЯТ АМ, мл	369	367	268	345	372	351	299	315	–	–	–
Оценка объема H_2 при н.у. для ОЯТ АМ, мл	37	47	34	46	37	96	125	118	–	–	–

Хотя водород в эксперименте с топливом реактора АМ образовывался в результате как гидролиза УС, так и при реакции кальция с водой, из полученных оценок можно предположить, что при замачивании экспериментального образца с УС+Са- топливом реактора АМ с водой прореагировало только около 25 – 40% карбида урана и около 80 – 85% кальция.

Согласно опубликованным данным в работах [15, 18] при увеличении выгорания доля метана в выделяющемся при гидролизе УС газе падает, а доля водорода повышается, однако при выгорании выше порядка 4300 МВт-сут/тУ образцы становятся инертными по отношению к воде. В работе [15] утверждалось, что для облученного до выгораний 6000 МВт-сут/тУ карбида урана реакция гидролиза (выход газов) вообще не наблюдается, по крайней мере, при выдержке образцов в воде в течение 24 ч, а в работе [18] для выгораний 4333 МВт-сут/тУ и выше наблюдаемый выход газов был настолько низкий при очень медленно протекающем гидролизе, что эксперименты были остановлены до окончания реакции, хотя при этом все образцы за короткое время превратились в порошок.

Испытанный образец топлива АМ имеет высокое выгорание – около 6270 МВт-сут/тУ, но для него наблюдался значительный выход метана после инкубационного периода около 20 ч и это расходится с выводом в работах [15, 18], что облученный до высоких выгораний карбид урана очень слабо реагирует с водой.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведены эксперименты по исследованию накопления горючих газов в условиях, моделирующих обращение с негерметичным ОЯТ реактора АМ в воде. Получены кинетики выхода водорода для топливных композиций (U9% Мо)+Mg и УС+Са, а также кинетика образования метана для карбидного ОЯТ. Скорость выделения газов экспоненциально уменьшается со временем.

Расчетная оценка показала, что вкладом радиолитического водорода в выход газов можно пренебречь и определяющим источником образующихся газов является

ся химическое взаимодействие материалов исследованных композиций ОЯТ с водой.

Установлено, что химические процессы на поверхности (U-9%Mo)+Mg-топлива практически полностью останавливаются из-за образования нерастворимых продуктов коррозии, при этом оценка глубины коррозионного слоя с торцов фрагментов твэлов составляет всего 370 мкм.

Для карбидного ОЯТ обнаруживается инкубационный период около 20-ти часов, предположительно вызванный наличием окисного слоя на неподверженных механической обработке торцах фрагмента, с последующим интенсивным выходом водорода и метана до полной коррозионной деградации образца. Тем не менее, несмотря на полную деградацию, компоненты ОЯТ не полностью реагируют с водой – только около 25 – 40% карбида урана и около 80 – 85% кальция. В то же время наблюдаемый в эксперименте интенсивный выход газов расходится с опубликованными в зарубежной литературе выводами, что облученный до высоких выгораний карбид урана очень слабо реагирует с водой.

Полученные данные могут использоваться для обоснования пожаровзрывобезопасности технологий обращения с разрушенным ОЯТ с рассмотренными топливными композициями (ОЯТ реакторов АМ, АМБ, ЭГП-6 и др.) в воде, например, при обосновании технологий подготовки ОЯТ АМБ к переработке.

Литература

1. Гаязов А.З., Комаров С.В., Лещенко А.Ю., Ревенко К.Е., Смирнов В.П., Звир Е.А., Ильин П.А., Теплов В.Г. Исследование образования водорода и выхода радионуклидов при хранении разрушенного оксидного ОЯТ во влажной среде // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2018. – № 3. – С. 125-136; DOI: <https://doi.org/10.26583/pre.2018.3.11>.
2. Кудрявцев Е.Г., Смирнов В.П. Создание технологий обращения с ОЯТ АМБ Белоярской АЭС // Безопасность окружающей среды. – 2010. – № 1. – С. 66–68.
3. Smirnov V. Proposals on AMB SNF Management. // Proc. of the International Conference on the Management of Spent Fuel from Nuclear Power Reactors; Vienna (Austria); 31 May – 4 Jun 2010. Электронный ресурс: https://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/SupplementaryMaterials/P1661CD/Session_9.pdf (дата обращения: 10.12.2020).
4. Kirillov S.N., Kolupaev D.N., Logunov M.V., Ermolin V.S., Fedorov Yu.S., Rodionov S.A., Zilberman B.Ya., Goletskiy N.D., Kudinov A.S., Shadrin A.Yu., Smelova T.V., Kudryavtsev E.G., Naperskaya A.V. Possibility of Various Types SNF Reprocessing at the PA Mayak exampled with AMB SNF // Procedia Chemistry – 2012. – Vol. 7. – PP. 98-103; DOI: <https://doi.org/10.1016/j.proche.2012.10.018>.
5. Бугаенко Л.Т., Кузьмин М.Г., Полак Л.С. Химия высоких энергий. – М.: Химия, 1988. – 368 с.
6. Кабакчи С.А., Пикаев А.К. Методы расчета газовыделения и оценки взрывоопасности радиационно-химических аппаратов с водяным теплоносителем или биологической защитой. – М.: Энергоиздат, 1981. – 51 с.
7. Электронный ресурс: <https://physics.nist.gov/PhysRefData/Star/Text/ASTAR.html> (дата обращения: 10.12.2020).
8. Электронный ресурс: <https://physics.nist.gov/PhysRefData/Star/Text/ESTAR.html> (дата обращения: 10.12.2020).
9. Peplow D.E. MAVRIC: MONACO with automatic variance reduction using importance calculations. // ORNL/TM-2005/39/ – 2009. – Vol. I.
10. Scale: A Comprehensive Modeling and Simulation Suite for Nuclear Safety Analysis and Design, ORNL/TM-2005/39, Version 6.1. – Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, June 2011.
11. Голосов О.А., Николкин В.Н., Семериков В.Б. и др. Коррозия отработавшего ядерного топлива реакторов АМБ. / Сб. докладов X Российской конференции по реакторному материаловедению. Димитровград, 27-31 мая 2013 г. – Димитровград: НИИАР, 2013. –

С. 253-288.

12. *Владимирова М.В.* Альфа-радиолиз водных растворов. // Успехи химии. – 1964. – Т. 33. – № 4. – С. 462-476; DOI: <https://doi.org/10.1070/RC1964v033n04ABEH001397>

13. *Аллен А.О.* Радиационная химия воды и водных растворов. – М.: Госатомиздат, 1963. – 204 с.

14. *Петерсон Э., Уаймер Р.* Химия в атомной технологии. – М.: Атомиздат, 1967. – 430 с.

15. *Bradley M.J., Goode J.H., Ferris L.M., Flanary J.R., Ullmann J.W.* Hydrolysis of Neutron-Irradiated Uranium Monocarbide. // Inorg. Chem. – 1964. – Vol. 3. – No. 3. – PP. 454-454; DOI: <https://doi.org/10.1021/ic50013a033>.

16. *Bradley M.J., Ferris L.M.* Processing of Uranium Carbide Reactor Fuels. I. Reaction with Water and HCl. // Report ORNL-3101. – 1961; DOI: <https://doi.org/10.2172/4006980>.

17. *Hori Y., Mukaibo T.* Study on the Rate and the Products of the Reaction between Uranium Monocarbide and Water. // Journal of Nuclear Science and Technology. – 1967. – Vol. 4. – No. 9. – PP. 477-481;

DOI: <https://doi.org/10.1080/18811248.1967.9732790>.

18. *Dyck R.W., Boase D.G., Taylor R., Gerwing A.F.* A study of the hydrolysis of uranium monocarbide. Part II: Reaction in water between 25°C and 99°C. – Whifeshell Nuclear Research Establishment, Pinawa, Manitoba, AECL 4918, 1975.

Поступила в редакцию 19.12.2020 г.

Авторы

Гаязов Артём Зуферович, начальник отдела

E-mail: gaz@sosny.ru.

Лещенко Антон Юрьевич, главный специалист, к.т.н.

E-mail: lay@sosny.ru.

Смирнов Валерий Павлович, директор, д.т.н., профессор

Email: vps@sosny.ru.

Ильин Павел Александрович, начальник лаборатории, к.ф-м.н.

E-mail: ilyinpavel74@yandex.ru.

Теплов Вадим Геннадьевич, ведущий инженер

E-mail: saurial@live.ru.

UDC 621.039.546

A STUDY OF FLAMMABLE GAS GENERATION AND RADIONUCLIDE RELEASE DURING UNDERWATER HANDLING OF AM REACTOR SPENT FUEL

Gaiazov A.Z.*, Leshchenko A.Yu.*, Smirnov V.P.*, Ilyin P.A.***, Teplov V.G.**

* SOSNY R&D Company

4a Dimitrov Ave, 433507 Dimitrovgrad, Ulyanovsk Reg., Russia

** JSC «SSC RIAR»

9 Zapadnoye Hwy, 433510 Dimitrovgrad, Ulyanovsk Reg., Russia

ABSTRACT

The paper presents the research results on the accumulation of flammable gases under conditions simulating the underwater handling of leaking spent nuclear fuel from

the AM reactor. Two fuel compositions as fuel rod fragments were examined, i.e., uranium-molybdenum dispersed in magnesium and uranium carbide dispersed in calcium. The experiments were carried out in the in-cell automatic test rig of the Material Testing Division at JSC «SSC RIAR».

The experiments measured the ^{137}Cs release during underwater storage of uranium-molybdenum fuel. Data were also obtained on the kinetics of hydrogen yield for both fuel compositions as well as on the kinetics of methane generation for the carbide SNF. The kinetics are best approximated by exponential dependences, which formally correspond to first-order chemical reactions.

A calculated estimate was made of the contribution of radiolytic hydrogen to the volume of the gases generated during the experiments. It was shown that the determining source of the gases was the chemical interaction between the spent fuel under study and water.

An experiment with the uranium-molybdenum fuel revealed a pronounced effect of passivation of chemical processes on the fuel surface due to the formation of insoluble corrosion products. The depth of the corroded fuel composition for the fuel segment edges was estimated to be equal to $370\ \mu\text{m}$ when calculated from the amount of hydrogen released during the experiment as a result of the reaction of magnesium with water.

As for the experiments with the carbide SNF, an incubation period of about 20 hours was observed followed by a vigorous release of hydrogen and methane.

A comparative analysis was carried out for the results of the experiments and published data on the behavior of the components of the fuel compositions in water. The methane release obtained from the experiment for the carbide SNF does not correlate with foreign publications in the sense that uranium carbide irradiated higher than $4300\ \text{MW}\cdot\text{day}/\text{tU}$ poorly reacts with water.

The findings can be used to justify fire and explosion safety of underwater handling of the damaged spent nuclear fuel with the considered fuel compositions (SNF from reactors AM, AMB, EGP-6, etc.), for instance, to justify underwater preparations of the AMB SNF for reprocessing.

Key words: fire and explosion safety, damaged SNF, AM (AMB) reactor, radiolysis, hydrogen, methane, storage in water.

REFERENCES

1. Gaiazov A.Z., Komarov S.V., Leshchenko A.Yu., Revenko K.E., Smirnov V.P., Zvir E.A., Il'in P.A., Teplov V.G. Study of Hydrogen Generation and Radionuclide Release During Storage of SNF Oxides in Water. *Izvestiya vuzov. Yadernaya Energetika*. 2018, no. 3. pp. 125-136; DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2018.3.11> (in Russian).
2. Kudryavtsev E.G., Smirnov V.P. Development of Handling Techniques for Beloyarsk AMB SNF. *Bezopasnost Okruzhayuschej Sredy*. 2010, v. 1, pp. 66-68 (in Russian).
3. Smirnov V.P. Proposals on AMB SNF Management. *Proc. of the International Conference on the Management of Spent Fuel from Nuclear Power Reactors*. Vienna (Austria), 31 May – 4 Jun 2010. Available at: https://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/SupplementaryMaterials/P1661CD/Session_9.pdf (accessed Dec. 10, 2020).
4. Kirillov S.N., Kolupaev D.N., Logunov M.V., Ermolin V.S., Fedorov Yu.S., Rodionov S.A., Zilberman B.Ya., Goletskiy N.D., Kudinov A.S., Shadrin A.Yu., Smelova T.V., Kudryavtsev E.G., Haperskaya A.V. Possibility of Various Types of SNF Reprocessing at the PA Mayak Exemplified with AMB SNF. *Procedia Chemistry*. 2012, v. 7, pp. 98-103; DOI: <https://doi.org/10.1016/j.proche.2012.10.018>.
5. Bugaenko L.T., Kuz'min M.G., Polak L.C. *High Energy Chemistry*. Moscow. Khimiya Publ., 1988, 368 p. (in Russian)
6. Kabakchi S.A., Pikaev A.K. *Methods for Calculations of Gas Release and Estimation of*

Explosion Hazard of Radiochemical Water-Cooled Facilities with Biological Shielding. Moscow. Energoizdat Publ., 1981. 51 p. (in Russian).

7. Available at: <https://physics.nist.gov/PhysRefData/Star/Text/ASTAR.html> (accessed Dec. 10, 2020).

8. Available at: <https://physics.nist.gov/PhysRefData/Star/Text/ESTAR.html> (accessed Dec. 10, 2020).

9. Peplow D.E. MAVRIC: MONACO with Automatic Variance Reduction Using Importance Calculations. ORNL/TM-2005/39/, v. I, 2009.

10. Scale: A Comprehensive Modeling and Simulation Suite for Nuclear Safety Analysis and Design, ORNL/TM-2005/39, Version 6.1, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, June 2011.

11. Golosov O.A., Nikolkin V.N., Semerikov V.B., Staritsyn S.V., Bedin V.V. Corrosion of Spent Nuclear Fuel from AMB Reactor. *Proceedings of the X Russian Conference on Reactor Material Science.* Dimitrovgrad, 27-31 May 2013. Dimitrovgrad. NIIAR Publ., 2013, pp. 253-288 (in Russian).

12. Vladimirova M.V. Alpha-Radiolysis of Water Solutions. *Uspekhi Khimii.* 1964, v. 33, iss. 4, pp. 462-467; DOI: <https://doi.org/10.1070/RC1964v033n04ABEH001397> (in Russian).

13. Allen A.O. *Radiation Chemistry of Water and Aqueous Solutions.* Moscow. Gosatomizdat Publ., 1964, 204 p. (in Russian).

14. Peterson S., Wymer R.G. *Chemistry in Nuclear Technology.* Moscow. Atomizdat Publ., 1967, 430 p. (in Russian).

15. Bradley M.J., Goode J.H., Ferris L.M., Flanary J.R., Ullmann J.W. Hydrolysis of Neutron-Irradiated Uranium Monocarbide. *Inorganic Chemistry.* 1964, v. 3, iss. 3. 454 p.; DOI: <https://doi.org/10.1021/ic50013a033>.

16. Bradley M.J., Ferris L.M. Processing of Uranium Carbide Reactor Fuels. I. Reaction with Water and HCl. *Report ORNL-3101*, 1961; DOI: <https://doi.org/10.2172/4006980>.

17. Hori Y., Mukaibo T. Study on the Rate and the Products of the Reaction between Uranium Monocarbide and Water. *Journal of Nuclear Science and Technology.* 1967, v. 4, no. 9, pp. 477-481; DOI: <https://doi.org/10.1080/18811248.1967.9732790>.

18. Dyck R.W., Boase D.G., Taylor R., Gerwing A.F. *A Study of the Hydrolysis of Uranium Monocarbide. Part II: Reaction in Water Between 25°C and 99°C.* Whifeshell Nuclear Research Establishment, Pinawa, Manitoba, AECL 4918, 1975.

Authors

Gaiazov Artem Zuferovich, Head of Department

E-mail: gaz@sosny.ru

Leshchenko Anton Yurievich, Principle Engineer, Cand. Sci. (Engineering)

E-mail: lay@sosny.ru

Smirnov Valery Pavlovich, Director, Professor, Dr. Sci. (Engineering)

E-mail: vps@sosny.ru

Ilyin Pavel Aleksandrovich, Head of Laboratory, Cand. Sci. (Phys.-Math.)

E-mail: ilyinpavel74@yandex.ru

Teplov Vadim Gennadievich, Leading Engineer

E-mail: saurial@live.ru