

МАЛОМАСШТАБНЫЕ ЭКСПЕРИМЕНТЫ, МОДЕЛИРУЮЩИЕ ТЯЖЕЛУЮ АВАРИЮ ВОДО-ВОДЯНОГО РЕАКТОРА С ПЛАВЛЕНИЕМ АКТИВНОЙ ЗОНЫ

А.Д. Гречаник, А.А. Ситников, В.И. Яковлев, М.К. Скаков

В работе представлены краткое описание экспериментального стенда и основные результаты экспериментов, в которых моделировалась тяжелая авария водо-водяного ядерного реактора АЭС «Fukushima-1». В результате проведенных экспериментов и постэкспериментальных исследований была определена температура кристаллизации композиции материалов, близкой по составу с содержимым активной зоны ядерного реактора АЭС «Fukushima-1», был определен фазовый состав затвердевших фрагментов имитатора расплава активной зоны, а также описано взаимодействие имитатора расплава активной зоны с расплавом конструкционной стали SUS 304.

Ключевые слова: ТЯЖЕЛАЯ АВАРИЯ, АЭС, ФУКУСИМА, ВВЭР, АКТИВНАЯ ЗОНА, КОРИУМ, СТАЛЬ, ЭКСПЕРИМЕНТ, ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ, ДИФфуЗИЯ

ВВЕДЕНИЕ

Возникновение тяжелых аварий на АЭС возможно. И, как показывает практика [1, 2], вероятность таких аварий не так уж мала. В очередной раз это было подтверждено аварией, произошедшей на АЭС «Fukushima-1» в 2011 г. в Японии.

При аварии на водо-водяном реакторе АЭС «Fukushima-1» ядерное топливо было расплавлено из-за прекращения функционирования всех систем охлаждения реактора. Образовавшийся в результате аварии кориум перемещался и мог затвердевать в различных областях реакторной установки. Одной из задач, которую необходимо решить для ликвидации последствий этой аварии, является удаление затвердевшего кориума из корпуса реактора и контеймента АЭС. Основной проблемой при решении этой задачи является отсутствие достоверных данных о состоянии и свойствах затвердевшего кориума, что затрудняет разработку и создание инструментов для его удаления.

В связи с этим на базе Института Атомной Энергии Национального ядерного центра Республики Казахстан (ИАЭ) по заказу японской компании Toshiba был проведен ряд экспериментов, целью которых являлось изучение свойств имитатора кориума АЭС «Fukushima-1» для создания методики извлечения и переработки реальных затвердевших фрагментов расплава активной зоны аварийного реактора. Результаты данных исследований также необходимы для построения ги-

потетических сценариев развития тяжелой аварии на водо-водяном реакторе.

ПОЛУЧЕНИЕ ИМИТАТОРА КОРИУМА ВОДО-ВОДЯНОГО РЕАКТОРА

Экспериментальные исследования были проведены на стенде высокотемпературных испытаний материалов ВЧГ-135. Данная установка предназначена для плавления различных материалов методом индукционного нагрева в горячем тигле. Основными узлами стенда ВЧГ-135 являются: высокочастотный электроламповый генератор, герметичная, водоохлаждаемая рабочая камера с индуктором (рисунок 1), система подачи и отвода газов в рабочую камеру.

Эксперименты с условным обозначением А, Б, В были проведены с целью получения имитатора кориума, образовавшегося в результате аварии на водо-водяном реакторе АЭС «Fukushima-1», а также для определения температуры плавления и кристаллизации данного материала. При подготовке данных экспериментов в экспериментальную секцию стенда – графитовый тигель, на внутреннюю стенку которого было нанесено защитное покрытие из карбида циркония [3], загружалась композиция материалов, в экспериментах А и Б, состоящая из диоксида урана, металлического циркония и карбида бора, в эксперименте В к перечисленным выше компонентам добавлялся оксид циркония (таблица 1, рисунок 2). Аналогичная композиция материалов присутствовала в актив-

МАЛОМАСШТАБНЫЕ ЭКСПЕРИМЕНТЫ, МОДЕЛИРУЮЩИЕ ТЯЖЕЛУЮ АВАРИЮ ВОДОВОДЯНОГО РЕАКТОРА С ПЛАВЛЕНИЕМ АКТИВНОЙ ЗОНЫ

ной зоне аварийных реакторов АЭС «Fukushima-1».

Таблица 1 – Состав композиции материалов, используемой в экспериментах по получению имитатора кориума

Эксперимент	Концентрация, масс. %			
	UO ₂	Zr	ZrO ₂	B ₄ C
А	71,5	27,8	-	0,7
Б	71,5	27,8	-	0,7
В	68,2	13,2	17,9	0,7

В процессе экспериментов данные материалы, загруженные в графитовый тигель, подвергались индукционному нагреву до температуры ~ 2400 °С. Нагрев до этой температуры обоснован данными, полученными в работе [4]. В качестве основных средств измерения температуры в экспериментах использовались термопары ВР5/20 градуировки А-1 и пирометры различных типов.

графитовый тигель индуктор



Рисунок 1 – Рабочая камера станда высокотемпературных материаловедческих испытаний ВЧГ-135

В соответствии с диаграммой, представленной на рисунке 3, диапазон температур между солидусом и ликвидусом составляет для исследуемой композиции материалов (без учета В₄С, Zr – 53,5 ат. %) 800 градусов. В процессе экспериментов на этапах нагрева-остывания по показаниям термопар и пирометров ожидалось зафиксировать начало плавления, либо полную кристаллизацию металлического циркония при температуре 2100 К, и начало плавления, либо полную кристаллизацию твердого раствора (U, Zr)O₂ в области 2400 К.

В результате анализа временных зависимостей показаний термопар и пирометров

ПОЛЗУНОВСКИЙ ВЕСТНИК № 4 Т.2 2016

было установлено, что температура кристаллизации основной массы композиции материалов, участвовавшей в экспериментах А, Б составляет 2200±20 °С, температура кристаллизации наиболее легкоплавкого компонента – 2150±20 °С. Основные процессы кристаллизации композиции материалов участвовавшей в эксперименте В происходили в диапазоне температур 2420÷2300 °С.

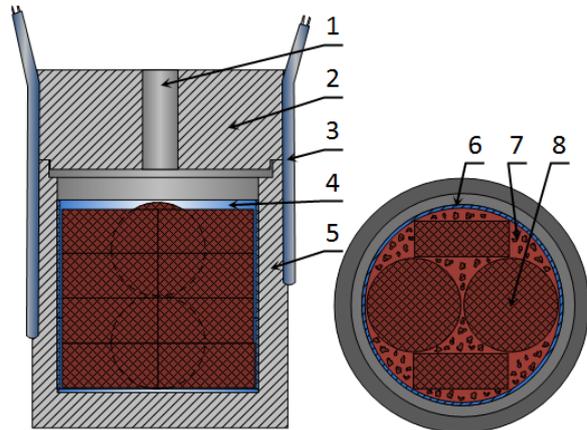


Рисунок 2 – Схема экспериментальной секции, участвовавшей в экспериментах по получению имитатора кориума

1 – пирометрическое отверстие, 2 – крышка, 3 – термопара WR 5/20, 4 – диск из сплава E110, 5 – графитовый тигель, 6 – цилиндр из сплава E110, 7 – смесь порошков UO₂, ZrO₂, B₄C и циркониевой стружки, 8 – таблетки, спрессованные из смеси порошков UO₂, ZrO₂, B₄C и циркониевой стружки

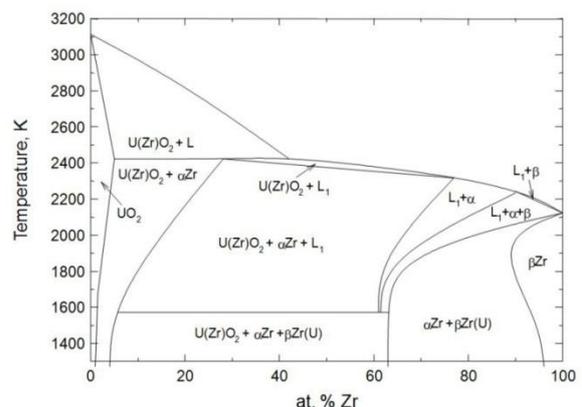


Рисунок 3 – Фазовая диаграмма системы UO₂-Zr [4]

По результатам рентгеновского фазового анализа было выяснено, что основными компонентами фазового состава имитатора

кориума, полученного в экспериментах А, Б и В является твердый раствор $(U, Zr)O_2$ с гранцентрированной кубической (ГЦК) решеткой двуокиси урана, металлическая фаза на основе α -модификации циркония $\alpha-Zr(O, U, \dots)$ и фаза переменного состава с ГЦК решеткой карбида циркония, общую формулу которой можно представить в виде $(Zr, U)(C, O, B)_{1-x}$. Ряд линий малой интенсивности позволяет также идентифицировать фазу ZrB_2 . В составе образцов кориума, полученного в экспериментах А и Б, содержание циркониевых фаз $\alpha-Zr(O, U, \dots)$, $(Zr, U)(C, B, O)_{1-x}$ оказалось значительно большим, чем в образцах кориума, полученного в эксперименте В.

ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ИМИТАТОРА КОРИУМА С КОНСТРУКЦИОННОЙ СТАЛЬЮ SUS 304

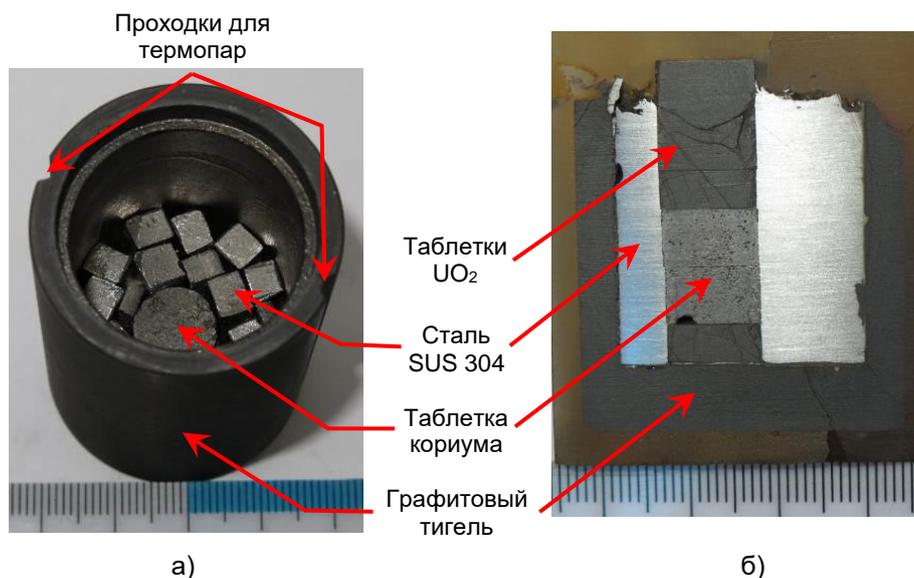
Полученный имитатор кориума был использован в серии экспериментов, в процессе которых данный материал взаимодействовал с расплавленной сталью SUS 304, данные эксперименты также проводились на стенде ВЧГ-135. На этапе подготовки данных экспериментов в графитовый тигель с покрытием из ZrC помещался фрагмент кориума: для удобства постэкспериментального анализа он дистанцировался от стенки тигля и фиксировался от перемещений с помощью таблеток из двуокиси урана (рисунок 4). Шихта для получения расплава стали была приготовлена из листа SUS304 толщиной 10 мм и пред-

ставляла собой параллелепипеды размером $5 \times 5 \times 10$.

После проведения данных экспериментов были произведены диаметральные разрезы экспериментальных устройств. В результате комплексных материаловедческих исследований диаметральных сечений экспериментальных устройств были определены глубины диффузионного проникновения стали в образцы имитатора кориума.

Результаты экспериментов данной серии представлены в **Ошибка! Источник ссылки не найден.** ице 2, где они размещены по возрастанию температуры и длительности выдержки в экспериментальной секции.

Эксперименты 4, 5 и 6 проводились при сравнительно низких температурах $1300^\circ C$. При этом, для расплавления стали производился предварительный нагрев до $1500-1550^\circ C$. Формирование диффузионных структур в процессе этих экспериментов происходило только на начальном этапе нагрева, когда сталь находилась в расплавленном состоянии. Дальнейшая изотермическая выдержка при температуре $1300^\circ C$ и возрастание ее длительности, приводят лишь к перераспределению элементов внутри сформировавшихся уже структур. Это подтверждают результаты элементного анализа произведенного вдоль линии, проходящей через зону взаимодействия стали с кориумом (см. рисунок 5, а), данный анализ производился на растровом электронном микроскопе JEOL JSM-6390 с приставкой энергодисперсионного микроанализа JEOL JED-2030.



МАЛОМАСШТАБНЫЕ ЭКСПЕРИМЕНТЫ, МОДЕЛИРУЮЩИЕ ТЯЖЕЛУЮ АВАРИЮ ВОДОВОДЯНОГО РЕАКТОРА С ПЛАВЛЕНИЕМ АКТИВНОЙ ЗОНЫ

Рисунок 4 – Вид экспериментальной секции до – а) и после – б) проведения эксперимента по взаимодействию расплава стали SUS 304 с кориумом

Таблица 2 – Основные параметры и результаты экспериментов, в которых исследовалось взаимодействие расплава стали SUS 304 с имитатором кориума

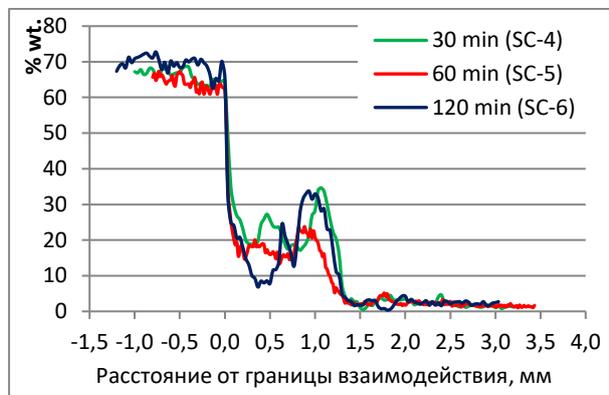
Эксп.	Материал шихты		Температура, °С		Длительность выдержки, мин	Проникновение железа в кориум, мм
	Сталь	Кориум*	предв. нагрев	изотерм. выдержка		
4	SUS 304	Б-1	1500	1300	30	3
5	SUS 304	Б-3	1500	1300	60	2,5
6	SUS 304	Б-2	1500	1300	120	3
7	SUS 304	Б-5	-	1500	30	5,3
9	SUS 304	В-2	-	1500	30	1,5
3	SUS 304	Б-4	-	1600	15	4,7
1	SUS 304	А-1	-	1600	30	сквозное
8	SUS 304	В-1	-	1600	5	1,3
2	SUS 304	А-2	-	1650	5	4

* Буквой обозначен эксперимент, в результате которого был получен слиток кориума, цифрой – номер зерна, высверленного из слитка кориума

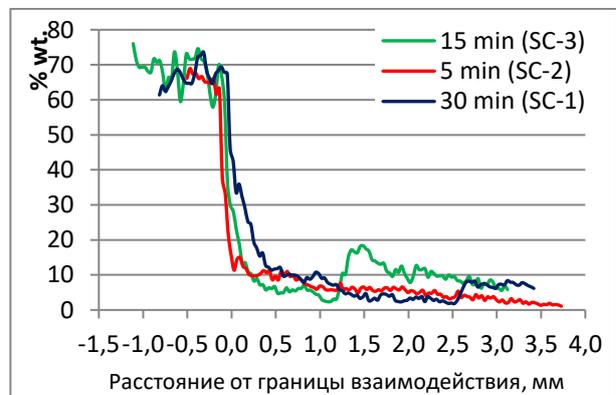
Наиболее высокое проникновение компонентов стали в материал кориума, было зафиксировано на диаметральных сечениях экспериментальных секций 1, 2 и 3 (см.

Рис. 5, б). Данные эксперименты проводились при более высоких температурах –

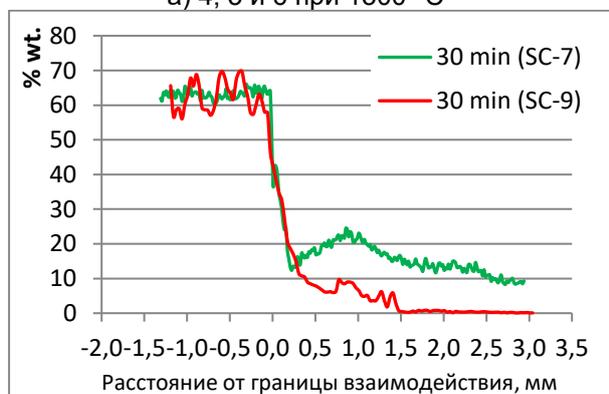
1600 °С, 1650 °С. В результатах данных экспериментов наблюдается влияние длительности изотермической выдержки на глубину проникновения компонентов стали в кориум.



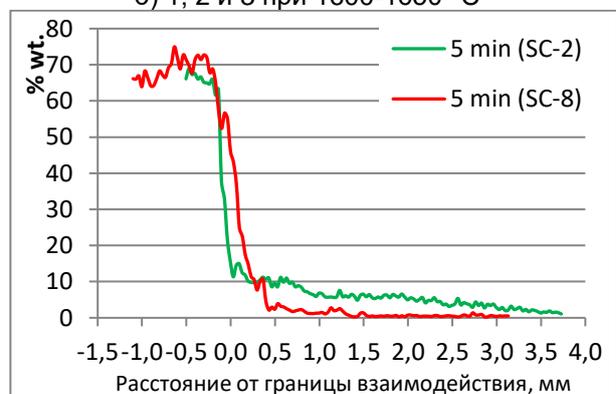
а) 4, 5 и 6 при 1300 °С



б) 1, 2 и 3 при 1600-1650 °С



в) 7 и 9 при 1500 °С



г) 8 и 2 при 1600 °С и 1650 °С

Рисунок 5 – Графики, демонстрирующие изменение концентрации железа вдоль линии, проходящей через зону взаимодействия стали с кориумом в экспериментах 1 – 9

Температура и время выдержки в экспериментах 7 и 9 были одинаковыми. В эксперименте 7 использовался кориум, полученный в эксперименте Б, глубина проникновения железа в данный кориум составила 5,3 мм. В эксперименте 9 использовался кориум, полученный в эксперименте В, глубина проникновения железа в данный кориум составила всего 1,3 мм (см.

Рис5, в). Аналогичная ситуация наблюдалась в экспериментах 2 и 8, где температуры и длительности выдержки были одинаковыми, но использовался разный кориум, и глубины проникновения компонентов стали в кориум оказались также разными (см.

Рис5, г). Из этого можно сделать вывод, что формирование диффузионных структур в зоне взаимодействия стали с кориумом зависит от химического состава структурно-фазового состояния материала кориума.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

При анализе результатов проведенных маломасштабных экспериментов были сделаны следующие основные выводы:

- Температура кристаллизации расплава, полученного из композиции материалов, близкой по составу с содержимым активной зоны ядерного реактора АЭС «Fukushima-1» и не содержащей окисленного циркония, составляет 2200 ± 20 °С. Температура кристаллизации расплава, полученного из композиции материалов, в которой 50 % всего циркония находилось в окисленном состоянии, находится в диапазоне $2420 \div 2300$ °С.

- Структура полученного имитатора кориума ядерного реактора АЭС «Fukushima-1» в основном четырехфазная. Данный материал состоит из твердого раствора $U_{0.95}Zr_{0.05}O_2-x$, с ГЦК решеткой диоксида урана, фазы переменного состава с ГЦК решеткой карбида циркония $(Zr,U)(C,O,V)_{1-x}$, металлической фазы на основе α -модификации циркония $\alpha-Zr(O,U)$ и металлической фазы $\alpha-U$

- При взаимодействии имитатора кориума с расплавленной сталью образуются диффузионные слои. В результате исследований было определено, что основными факторами, влияющими на глубину проникновения компонентов стали в материал кориума являются температура и время выдержки: чем выше температура и время выдержки, тем глубже проникновение компонентов стали в материал кориума. Также установлено,

что формирование диффузионного слоя зависит от химического состава и структурно-фазового состояния кориума.

На следующем этапе исследований планируется проведение расчета коэффициентов диффузии компонентов стали в материал кориума и компонентов кориума в сталь. Для этого могут потребоваться дополнительные СЭМ/ЭДС исследования образцов, полученных в результате маломасштабных экспериментов. Также на следующем этапе работ по данной теме планируется проведение серии крупномасштабных экспериментов, в которых взаимодействие имитатора кориума с конструкционными материалами будет происходить в условиях, более приближенных к реальным.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Proc. of the First Int. Information Meeting on the TMI-2 Accident. (Germantown, MD), 1985.
2. Абагян А.А., Аршавский И.М., Дмитриев В.М. Атомная энергия. – 1991. - Т. 71, вып. 4. - С. 275-287.
3. Пат. 30667 Республики Казахстан, МКИ⁹ C23C 26/00. Способ нанесения защитного барьерного покрытия из карбида циркония на внутреннюю поверхность графитового тигля / В. В. Бакланов [и др.]. - № 2014/1099.1; заявлено 18.08.2014; опубл. 15.12.2015, Бюл. № 12. – 3 с.
4. Chemical and X-Ray Diffraction Analysis on Selected Samples from TMI-2 Reactor Core / Kernforschungszentrum Report; H. Kleykamp, R. Pejsa. – Karlsruhe, 1991. – 100 p. - KfK-4872.

Гречаник Алексей Дмитриевич, аспирант, Алтайский государственный технический университет им. И.И. Ползунова, г. Барнаул, E-mail: grechanik@nnc.kz.

Ситников Александр Андреевич, доктор технических наук, профессор, Алтайский государственный технический университет им. И.И. Ползунова, г. Барнаул, E-mail: sitalan@mail.ru.

Яковлев Владимир Иванович, кандидат технических наук, доцент, Алтайский государственный технический университет им. И.И. Ползунова, г. Барнаул, E-mail: yak1961@yandex.ru.

Скаков Мажын Канолинович, доктор физико-математических наук, профессор, Институт Атомной Энергии, г. Курчатова, Казахстан, E-mail: skakov@nnc.kz.