

На правах рукописи

**БЕШТА
Севостьян Викторович**

**ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНЫЕ ПРОЦЕССЫ С РАСПЛАВАМИ
КОРИУМА В ПРОБЛЕМЕ БЕЗОПАСНОСТИ АЭС С ВВЭР**

Специальность 05.14.03 — "Ядерные энергетические установки,
включая проектирование, эксплуатацию и вывод из эксплуатации"

**Автореферат
диссертации на соискание ученой степени
доктора технических наук**

САНКТ-ПЕТЕРБУРГ — 2004

Работа выполнена в ФГУП "Научно-исследовательский технологический институт им. А.П. Александрова" (НИТИ), г. Сосновый Бор Ленинградской обл.

Научный консультант:

— доктор техн. наук, профессор *Хабенский Владимир Бенцианович*

Официальные оппоненты:

— доктор техн. наук, профессор *Еперин Анатолий Павлович*

— доктор техн. наук, профессор *Юрьев Юрий Сергеевич*

— доктор хим. наук, профессор *Москвин Леонид Николаевич*

Ведущая организация: *ФГУП "Санкт-Петербургский научно-исследовательский и проектно-конструкторский институт "Атомэнергопроект"*.

Защита диссертации состоится 27 апреля 2004 г. в 16-00 на заседании диссертационного совета Д 212.229.04 в ГОУ ВПО "Санкт-Петербургский государственный политехнический университет" по адресу:

195251, Санкт-Петербург, ул. Политехническая, 29
в аудитории 130 главного здания

С диссертацией можно ознакомиться в фундаментальной библиотеке ГОУ ВПО "Санкт-Петербургский государственный политехнический университет".

Автореферат разослан " ___ " марта 2004 г.

Отзыв на автореферат, заверенный печатью учреждения, в двух экземплярах просим направить по вышеуказанному адресу на имя ученого секретаря диссертационного совета.

Факс: (812)5527684

E-mail: kg@kg1210.spb.edu

Ученый секретарь
диссертационного совета

К.А.Григорьев

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность работы. Обеспечение безопасности АЭС по мере развития ядерной энергетики во все большей степени базируется на принципах глубоко эшелонированной защиты. Допускается, что, несмотря на все принятые превентивные проектные меры, включая системы безопасности, авария может произойти в результате технических отказов и/или ошибок персонала. Совокупность технологических систем и систем безопасности образует сложную разветвленную многоуровневую иерархическую структуру с высокой степенью функционального и энергетического дублирования. Обоснование безопасности выполняется на принципах системного подхода с использованием методологии вероятностного анализа, который впервые был применен к анализу безопасности АЭС в докладе Расмуссена комиссии NRC США. Вероятностный анализ безопасности является существенным дополнением к детерминистскому анализу различных аварийных сценариев, который позволяет прогнозировать ход развития аварийных процессов и последствия аварии.

Исторически в практике проектирования АЭС и обоснования безопасности принято условно разделять общую совокупность возможных аварийных ситуаций на проектные, для предотвращения развития которых имеются штатные средства, обеспечивающие непревышение проектных критериев, и запроектные (тяжелые аварии), которые могут привести к существенному повреждению активной зоны вплоть до ее плавления.

Современная стратегия управления тяжелыми авариями в соответствии с общими рекомендациями МАГАТЭ и требованиями надзорных органов (Госатомнадзора России) предусматривает следующие основные целевые функции:

- Снижение вероятности реализации тяжелой аварии (тяжелого повреждения активной зоны) до уровня ниже порогового. Для действующих АЭС эта величина составляет $10^{-3} \dots 10^{-4}$ (реактор•лет)⁻¹, для современных — $10^{-4} \dots 10^{-6}$ (реактор•лет)⁻¹, а для проектируемых АЭС нового поколения — $10^{-6} \dots 10^{-7}$ (реактор•лет)⁻¹.
- Снижение вероятности выхода радиоактивных продуктов деления за пределы герметичной оболочки (контейнмента) до уровня ниже порогового.

В упрощенном виде эти целевые функции могут быть представлены кратко следующим образом. Главной задачей является не допустить плавление (тяжелое повреждение) активной зоны, а в случае, если это произойдет, – локализовать и заохладить корриум, содержащий основное количество долгоживущих продуктов деления, надежно изолировав его в пределах герметичной оболочки реакторного здания. Проблема локализации корриума, на решение которой направлена настоящая работа, имеет ключевое значение для сохранения последнего инженерного барьера на пути распространения радиоактивных продуктов, и поэтому актуальность исследований в этом направлении не вызывает сомнений.

Как инструмент анализа для системного проектирования и разработки организационно-технических мероприятий на случай тяжелой аварии используется набор компьютерных кодов. Основными задачами, которые решают с применением расчетных кодов, в том числе современных кодов улучшенной оценки, являются:

- определение представительных (базовых) сценариев, которые выбирают в качестве основы для проектирования систем безопасности;
- прогноз развития выбранных сценариев, определение эффективности систем безопасности, расчет условий протекания аварии и работы оборудования, определе-

ние временных характеристик аварийной последовательности для разработки концепции управления аварией и подготовки персонала, расчет радиационных последствий аварии;

- обоснование безопасности для последующего лицензирования АЭС.

Большинство кодов, описывающих тяжелые аварии АЭС, моделируют процессы с участием расплава активной зоны – кориума – смеси топливного расплава с конструкционными материалами активной зоны, органов регулирования и ВКУ на внутрикорпусной фазе аварии или еще более сложных смесей кориума с различными конструкционными и строительными материалами за пределами корпуса реактора. Моделирование развития тяжелой аварии относится к задачам высшей сложности, которая может быть сформулирована как задача нестационарного тепло-массообмена с химическими реакциями в неравновесной системе с тремя агрегатными состояниями вещества и изменяющейся топологией.

Разработчики, пользователи тяжелоаварийных кодов и проектировщики АЭС при разработке мероприятий по локализации кориума и анализе безопасности сталкиваются с комплексом проблем, среди которых можно выделить следующие:

- понимание и описание высокотемпературных теплофизических и физико-химических процессов в широком диапазоне изменения параметров (прежде всего, температуры и состава сред),

- выявление эффектов, которые являются ключевыми для адекватного прогноза развития аварии,

- получение данных по физико-химическим свойствам высокотемпературных расплавов,

- оценка неопределенностей расчетных моделей,

- валидация и верификация расчетных программ.

Прогресс в решении указанных проблем не может быть достигнут без систематических экспериментальных исследований, при реализации которых также возникают значительные трудности.

Очевидно, что проведение экспериментов в натуральных условиях невозможно. Отметим, что даже результаты детальных исследований послеаварийного состояния реакторов АЭС ТМІ-2 и ЧАЭС-4 имеют ограниченное применение вследствие особенностей развития этих аварий и конструкций реакторов. Поэтому большинство экспериментов проводят во вне реакторных условиях в уменьшенном масштабе, и для применения полученных результатов требуется тщательный анализ и экстраполяция данных, что зачастую является нетривиальной задачей. При невозможности применения в полном объеме теории подобия вследствие комплексности и многообразия процессов при тяжелой аварии возрастает роль сравнительного анализа и приближенных оценок.

Актуальность экспериментальных исследований в России по проблеме локализации кориума возросла в конце 80-х годов в связи с реализацией концепции удержания расплава в корпусе реактора в проекте ВВЭР-640 и еще более увеличилась в конце 90-х годов в связи с предпринятыми рядом организаций МИНАТОМА РФ проектными изысканиями, направленными на увеличение безопасности АЭС нового поколения и, в частности, с работами по созданию устройства локализации расплава кориума при тяжелой аварии АЭС с ВВЭР-1000. С этого времени при активном научно-техническом сотрудничестве с ведущими научными и проектно-конструкторскими организациями: РНЦ «Курчатовский институт» (Москва), ГНЦ ФЭИ (Обнинск),

ИБРАЭ РАН (Москва), ФГУП СПб «Атомэнергопроект» (Санкт-Петербург), ФГУП «Атомэнергопроект» (Москва), ОКБ «Гидропресс» (Подольск), ПКФ «Росэнергоатомпроект» (Москва) и др., начались практическая разработка концептуальных положений, технических решений и проведение поддерживающего их комплекса НИОКР.

Цель работы. Целью работы является обеспечение безопасности АЭС с ВВЭР при тяжелой аварии с плавлением активной зоны и образованием ванны расплава, достигаемое локализацией и захолаживанием кориума в пределах первого контура или контейнента.

Для реализации этой цели в работе решались следующие задачи:

- сравнительный анализ существующих и перспективных концепций локализации расплава кориума,
- выявление доминирующих высокотемпературных процессов, определяющих поведение расплава при тяжелой аварии и эффективность систем безопасности,
- получение, анализ и обобщение экспериментальных данных, необходимых для разработки математических моделей, верификации расчетных кодов и обоснования безопасности,
- анализ влияния исследуемых процессов на условия локализации расплава,
- разработка моделей высокотемпературных процессов и их верификация,
- исследование свойств расплавов и фазовых диаграмм кориума,
- разработка предложений по концепции локализации расплава кориума при тяжелой аварии АЭС с ВВЭР и по расчетно-экспериментальному обоснованию проектно-технологической реализации указанной концепции.

Научная новизна. Соискателем впервые в практике экспериментального исследования процессов при тяжелой аварии:

- разработана и реализована технология индукционной высокочастотной плавки кориума широкого диапазона составов в холодном тигле, позволяющая существенно расширить экспериментальные возможности,
- исследован широкий спектр процессов взаимодействия расплава прототипного урансодержащего кориума с конструкционными и жертвенными материалами в окислительной атмосфере,
- определены особенности коррозии охлаждаемой корпусной стали при ее взаимодействии с окисленным кориумом по механизму окисления ее компонент,
- определены особенности коррозии корпусной стали при взаимодействии с неокисленным кориумом по эвтектическому механизму с образованием легкоплавкой металлоподобной системы Fe-U-Zr-O,
- выявлено определяющее влияние оксидов железа на пропитку и кинетику абляции диоксидциркониевых огнеупоров при взаимодействии с расплавом кориума,
- исследован процесс кипения воды на поверхности расплава кориума и стали и показано, что при условиях выполненных экспериментов взаимодействие расплава с водой не приводит к паровому взрыву,
- экспериментально выявлен крайне важный для локализации кориума в корпусе реактора и в УЛР процесс экстракции урана, циркония и некоторых продуктов деления расплавом стали из расплава неокисленного кориума, при определенных условиях сопровождающийся гравитационной инверсией расслоенных оксидной и металлической жидкостей, т.е. изменением структуры ванны расплава,
- экспериментально показано определяющее влияние кислородного потенциала расплава на характеристики процессов взаимодействия кориума со сталью, ЖМ,

строительными бетонами и на скорость испарения оксидов урана и некоторых продуктов деления с поверхности расплава,

- экспериментально продемонстрировано и теоретически обосновано, что введением в расплав кориума стабильных изотопов стронция можно уменьшить испарение соответствующих радиоактивных изотопов,

- уточнены фазовые диаграммы систем UO_2-FeO и ZrO_2-FeO и получены данные по температурам солидус/ликвидус для многокомпонентных составов кориума,

- экспериментально обнаружено наличие купола расслаивания в жидкой фазе в некоторых оксидных системах на основе кориума, в том числе в некоторых прототипных многокомпонентных системах,

- на основе модельных представлений о взаимодействии кориума с оксидными материалами, сформулированных в работе функциональных требований и анализа свойств индивидуальных оксидов разработан новый класс оксидных материалов – жертвенные материалы для устройства локализации расплава (УЛР) кориума,

- определен автокаталитический характер взаимодействия расплава неокисленного кориума и расплава стали, содержащей цирконий, с используемым для АЭС с ВВЭР-1000 жертвенным материалом на основе оксидов железа (III) и алюминия (по типу жидкофазного горения).

Приоритет на разработанный жертвенный материал, указанный выше способ ограничения выхода из расплава значимых на поздней стадии аварии продуктов деления, конструкцию УЛР, а также метод исследования комплекса теплофизических свойств на основе технологии ИПХТ защищены патентами РФ и в ряде стран.

Автор защищает:

1. Оригинальную технологию плавки урансодержащего кориума методом индукционного высокочастотного нагрева расплава в холодном тигле, основные технические решения и параметры созданных на основе этой технологии экспериментальных установок серии «Расплав», методики исследования высокотемпературных процессов и комплекс высокотемпературных измерений в условиях индукционных печей.

2. Новые эффекты в расплаве кориума, важные для обоснования и повышения безопасности АЭС.

3. Экспериментальные данные, характеризующие:

- взаимодействие расплава кориума с материалами, используемыми в российских АЭС, и перспективными материалами для АЭС нового поколения:

- условия теплообмена при подаче воды на поверхность расплава;

- выходы продуктов деления SrO , BaO , La_2O_3 , CeO_2 и оксидов урана из расплава;

- распределение продуктов деления между оксидной и металлической фазами в субокисленном металлооксидном расплаве;

- фазовые диаграммы кориума и отдельные свойства расплава (плотность, электропроводность и излучательную способность);

- перераспределение U , Zr и гравитационную инверсию в системе с ограниченной взаимной растворимостью двух жидкостей: расплав субокисленного кориума и расплав стали.

- 4 Модели, описывающие взаимодействие расплава кориума с огнеупором, сталью корпуса и жертвенным материалом УЛР.

5. Отдельные элементы концепции локализации кориума в подреакторном пространстве АЭС с ВВЭР-1000 в Китае и Индии, а также проектных и технологических решений УЛР.

6. Новый функциональный материал - жертвенный материал (ЖМ) для управления процессами в топливном расплаве при тяжелой аварии и оптимизации условий локализации кориума. Оптимальный состав ЖМ для условий удержания расплава в УЛР АЭС с ВВЭР-1000.

Практическая значимость и реализация результатов. На основе полученных автором результатов исследования высокотемпературных процессов в расплаве кориума решен ряд важных прикладных задач, в частности:

- Расчетные методики, разработанные для описания процессов взаимодействия расплава кориума со сталью корпуса реактора и ловушки расплава, с огнеупорным бетоном, с расплавом стали, с водой на поверхности расплава и с жертвенным материалом ловушки, использованы при анализе тяжелых аварий, обосновании безопасности АЭС и проектировании устройства локализации расплава.

- Дополнены полученными экспериментальными результатами российские и европейские базы данных по фазовым диаграммам систем на основе кориума и по выходу продуктов деления из расплава.

- Диоксидциркониевый бетон и диоксидциркониевая керамика, исследованные в работе, внедрены в качестве защитного материала ловушки в проект европейского реактора EPR.

- Предложенные в работе элементы концепции управления тяжелой аварией, проектных и технологических решений, разработанный жертвенный материал использованы при проектировании и сооружении АЭС с ВВЭР-1000 в Китае (ТАЭС) и в Индии (КАЭС).

- Результаты экспериментальных исследований использованы при обосновании удержания расплава в корпусе реактора для АЭС с ВВЭР-640 и ВВЭР-440.

- На основе технологического и методического опыта эксплуатации серии экспериментальных установок среднего масштаба спроектирована и сооружается крупномасштабная установка с массой кориума в тигле до 100 кг.

Степень обоснованности и достоверности научных положений. Обоснованность научных положений, выводов и рекомендаций, сформулированных в диссертации, основана на широком проведении экспериментальных исследований с реакторными материалами при условиях, характерных для тяжелой аварии АЭС с ВВЭР, использовании новых экспериментальных методик, современных методов физико-химического пост-тест анализа и поддерживающих расчетных исследований. Достоверность полученных экспериментальных результатов обуславливается применением в исследованиях разработанных под руководством и при участии автора метрологически аттестованных методик, автоматизированных приборных и измерительных комплексов, выполненным анализом погрешностей измерений, системным подходом к планированию эксперимента и подтверждается сравнительным анализом с данными других авторов.

Достоверность и обоснованность полученных результатов, использованных при обосновании безопасности АЭС нового поколения с ВВЭР-1000, прошла проверку надзорных органов ГАН РФ и МАГАТЭ.

Фактическая основа работы и методы исследований. Фактическую основу работы составили результаты экспериментальных исследований, проведенных авто-

ром в 1987-2003 гг. сначала в ВО ВНИПИЭТ, а затем в НИТИ им. А.П. Александрова согласно ежегодным отраслевым планам НИР и ОКР Министерства РФ по атомной энергии, по договорным НИОКР, а также по международным грантам, программам и проектам. В работе использованы результаты более 70 серий экспериментов с расплавами прототипного урансодержащего кориума. Твердые продукты опытов исследовались методами рентгенофлуоресцентного анализа, электронной и оптической микроскопии и рентгеноспектрального микроанализа, порошковой дифрактометрии, атомно-абсорбционной спектроскопии, гамма - спектрометрии, масс - спектрометрии с ионным источником и с индуктивно связанной плазмой. Газовые продукты взаимодействия исследовались методами газовой хроматографии и масс - спектрометрии. Аэрозольные частицы - импакционным методом, оптической и электронной микроскопией, гамма - спектрометрией и методом малоуглового рассеяния света.

Личный вклад автора. Автор руководил и принимал непосредственное участие во всех этапах работ, положенных в основу представленной диссертации:

- инициировал не проводимые в то время в СССР экспериментальные исследования по изучению расплава прототипного кориума, сформулировал задачи и программу исследований, требования к экспериментальным установкам;

- предложил применение технологии индукционной плавки оксидов в холодном тигле для физического моделирования ванны расплава кориума с внутренним энерговыделением, отладил основные элементы технологии на модельных системах и затем на кориуме различного состава;

- руководил и принимал участие в проектировании и сооружении экспериментальных установок;

- разрабатывал и реализовывал методологию экспериментальных исследований, высокотемпературных измерений и пост-тест анализа;

- руководил и участвовал в проведении, обработке и обобщении результатов экспериментальных исследований, подготовке и верификации моделей исследуемых процессов;

- разрабатывал предложения по формированию научно-концептуальных положений по локализации кориума, схемным и аппаратурно-технологическим решениям для реализации этих положений, а также разрабатывал перспективные материалы с особыми свойствами;

- участвовал в обосновании принятых концепций, проектировании систем локализации и их внедрении в проектах АЭС с ВВЭР-640 и ВВЭР-1000.

Апробация работы. Основные положения и результаты работы докладывались автором и обсуждались на национальных и международных конференциях и семинарах, в том числе на: III ежегодной науч.-техн. конф. Ядерного общества "Ядерная энергетика — завтрашний день" (Санкт-Петербург, 12-20 сентября 1992 г.); IV ежегодной науч.-техн. конф. Ядерного общества "Ядерная энергия и безопасность человека" (Нижний Новгород, июнь 28-июль 2, 1993 г.); I междунар. конф. по электротехнике и электротехнологии "МКЭЭ-94" (Суздаль, сентябрь 13-16, 1994 г.); междунар. конф. ТЕПЛОФИЗИКА-95 (Обнинск, ноябрь 21-24, 1995 г.); отраслевом семинаре по динамике ядерно-энергетических установок «Математическое и физическое моделирование ядерных реакторов и петлевых установок, проблемы верификации» (Дмитровград, сентябрь 9-13, 1996); междунар. конф. по исследованию тяжелых аварий в Японии, SARJ-99 (Токио, ноябрь 4-6, 1998); на междунар. конф. ОЭСР по внекорпусному захлаживанию кориума (Карлсруе, Германия, ноябрь 15-18, 1999); евро-

пейских симпозиумах по безопасности ядерной энергетики FISA-99 (Люксембург, ноябрь 29 – декабрь 1, 1999) и FISA 2001 (Люксембург, ноябрь 12-14, 2001); VIII междунар. конф. по ядерной энергетике ICON-8 (Балтимора, США апрель 2-6, 2000); науч.-техн. совещ. «Электротермия-2000» (Санкт-Петербург, июнь 6-7, 2000); науч.-практич. семинаре «Вопросы безопасности АЭС с ВВЭР» (Санкт-Петербург, сентябрь 12-14, 2000); науч.-практич. конф. «Химия для топливно-энергетического комплекса России» в рамках Междунар. форума "Топливо-энергетический комплекс России" (Санкт-Петербург, 31 октября - 3 ноября 2000 г.); междунар. семинаре по программе РАСПЛАВ (Мюнхен, Германия, ноябрь 14-15, 2000 г.); специальной сессии МАГАТЕ по экспертизе проекта АЭС нового поколения с ВВЭР-1000 в Китае (Санкт-Петербург, 2002 г.); VI междунар. конф. по межмолекулярным взаимодействиям (Гданьск, Польша, 10-13 сентября 2001 г.); VI междунар. конф. по высокотемпературным сверхпроводникам и новым неорганическим материалам (Москва, 24-30 июня 2001); регулярных междунар. совещаниях экспертов МНТЦ по управлению проектами по исследованию кориума; регулярных рабочих семинарах междунар. технического комитета по программе OECD MASCA в 2000-2003 гг.; всерос. конф. "Процессы горения и взрыва в физикохимии и технологии неорганических материалов" (Москва, 24-27 июня 2002 г.); регулярных совещаниях рабочей группы управления проектами по выходу продуктов деления из расплава кориума по 4-ой и 5-ой рамочным программам европейского сообщества в 1996-2003 гг.

Публикации. По теме диссертации автором опубликована 51 работа. Основные публикации приведены в конце реферата.

Структура и объем работы. Диссертация состоит из введения, 6 глав, заключения, списка литературы.

СОДЕРЖАНИЕ ДИССЕРТАЦИИ

В первой главе дана общая характеристика процессов при тяжелой аварии с плавлением активной зоны реактора типа ВВЭР. На основе общей характеристики, феноменологического описания процессов при тяжелой аварии корпусного легководного реактора и анализа литературных источников выявлены ключевые процессы, знание и корректное описание которых необходимо как для адекватного прогнозирования протекания и последствий тяжелой аварии, так и для разработки и расчетного обоснования противоаварийных мер. Выявлены недостаточно изученные ключевые процессы и определены направления диссертационной работы. Показана важная роль экспериментальных исследований указанных процессов и сформулированы обобщенные цели экспериментов:

- выявление эффектов, которые определяют поведение расплава и его взаимодействие с окружающими структурами и, следовательно, должны быть учтены при разработке расчетных моделей,

- определение количественных характеристик локальных теплофизических и физико-химических процессов,

- определение необходимых для расчетного моделирования свойств кориума,

- получение экспериментальных данных интегральных экспериментов для верификации расчетных кодов.

Дан общий анализ текущего состояния исследований указанных процессов. Отмечается, что большинство исследований выполнено с имитаторами кориума, что не позволяет приблизиться к пониманию физико-химических особенностей процессов

при тяжелой аварии, обусловленных специфическим составом и свойствами расплава кориума.

Показано, что экспериментальные исследования взаимодействия кориума с бетоном актуальны для прогнозирования последствий тяжелой аварии с плавлением активной зоны и выходом расплава на бетонное основание шахты реактора для действующих АЭС, в проектах которых не были внедрены соответствующие защитные меры. Уже выполненные экспериментальные и расчетные работы показывают, что подача воды на поверхность ванны расплава, который взаимодействует с подстилающим бетоном, не обеспечивает эффективного захлаживания кориума и прекращения абляции бетона. Для достижения быстрого захлаживания в этих условиях может быть рекомендована концепция СОМЕТ, которая предусматривает дозированную подачу воды в расплав снизу через предварительно заполненный водой слой пористого бетона. Однако эта концепция имеет серьезный недостаток - значительный пиковый выброс массы и энергии в контеймент в виде смеси пара и водорода.

Экспериментальные исследования взаимодействия кориума с перспективными огнеупорами проводятся, в основном, для проекта ловушки расплава европейского реактора EPR. Несмотря на большой объем выполненных исследований, еще имеются некоторые неопределенности в обосновании этого проекта, главным образом связанные с описанием растекания кориума и обоснованием стойкости защитного огнеупорного слоя, изолирующего расплав.

Обширные экспериментальные и расчетные исследования процессов при удержании расплава в корпусе реактора позволили разработать модели и коды, адекватно описывающие температурное и напряженно-деформированное состояние корпуса. Из отечественных отметим здесь разработки ОКБ ГП, ФЭИ и ИБРАЭ РАН. Однако в обосновании внутрикорпусного удержания еще имеются неопределенности, связанные главным образом с физико-химическими особенностями взаимодействия стратифицированных слоев оксидной и металлической составляющих расплава кориума друг с другом и с водоохлаждаемой стенкой корпуса. Более глубокого понимания некоторых физико-химических процессов в ванне расплава в условиях внутрикорпусного удержания удалось достичь по результатам международных программ OECD RASPLAV и MASCA, которые проводились и проводятся при координации РНЦ КИ (руководитель проф. В.Г. Асмолов). В этих программах также получены уникальные данные по некоторым теплофизическим свойствам жидкого и твердого кориума.

Обсуждаются работы по выходу продуктов деления из топливного расплава, который исследовали во внутриреакторных и вне реакторных экспериментах. Внутриреакторные интегральные эксперименты позволяют физически моделировать основные процессы при тяжелой аварии, но именно в силу их интегрального характера, не дают достаточного представления и данных по локальным процессам, что сдерживает разработку соответствующих моделей. Поэтому интегральные эксперименты должны быть обязательно дополнены экспериментами по исследованию локальных процессов, которые могут быть проведены в уменьшенном масштабе во вне реакторных условиях.

Для определения данных по свойствам расплава кориума и по фазовым диаграммам используются различные комбинации экспериментальных и расчетных (в том числе эмпирических) методов, которые в совокупности позволяют значительно расширить диапазоны применения ограниченной экспериментальной информации.

Однако многие используемые в расчетах данные нуждаются в уточнении/подтверждении.

По всем представленным направлениям экспериментальных исследований по проблеме кориума можно отметить следующее:

- Из-за технических сложностей работы с высокотемпературными химически агрессивными радиоактивными расплавами имеется весьма ограниченное количество экспериментальных исследований, особенно в интервале температур расплава выше 2000°C.

- Как правило, такие дорогостоящие исследования проводятся в рамках коммерческих программ на кооперативной основе, поэтому подробные результаты не публикуются, а доступны лишь участникам этих программ.

- Особенности используемых в различных странах концептуальных положений по безопасности при тяжелых авариях, конструкций реакторных установок и применяемых в них материалов определяют уникальность экспериментальных исследований, которые проводятся для конкретных проектов АЭС и ограничивают возможность применения этих результатов для других проектов.

Указанные обстоятельства усиливают актуальность экспериментальных исследований по проблеме.

В главе 1 также представлен обзор имеющейся стендовой базы. На основе анализа схемных решений и опыта эксплуатации экспериментальных установок сделан вывод о том, что технические характеристики и надежность установки, а, следовательно, и перспективы экспериментальных исследований с ее использованием в значительной степени определяются реализуемым методом нагрева расплава и его удержания.

Вторая глава диссертации посвящена разработке экспериментальных установок для исследований и, прежде всего, выбору метода нагрева и способа удержания расплава. Рассмотрены достоинства и недостатки различных методов и показано, что разработанная автором технология индукционной плавки кориума в холодном тигле имеет следующие преимущества:

- внутреннее энерговыделение в расплаве, что позволяет приблизиться к физическому моделированию расплава кориума, содержащего продукты деления,

- бесконтактный подвод энергии, что предотвращает загрязнение расплава материалом электродов,

- незагрязняющий расплав способ его удержания в автотигле (гарнисаже) в течение длительного времени,

- возможность проведения плавки тугоплавких материалов с перегревом расплава в окислительной и инертной среде,

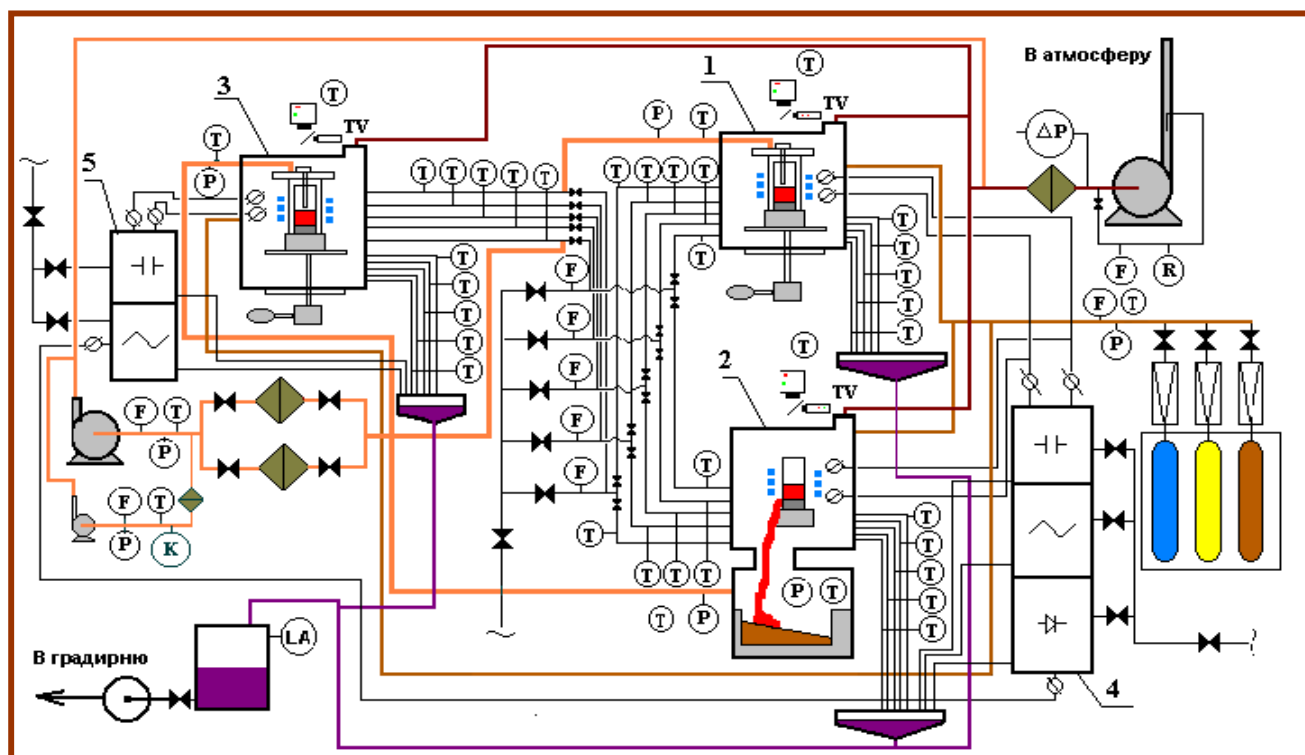
- компактность печи для размещения ее внутри защитного бокса или горячей камеры для достижения радиационной безопасности эксперимента.

В этой главе представлены технические характеристики (табл. 1) и схемные решения (рис. 1) созданных экспериментальных установок серии «Расплав».

Преимущества реализованного метода нагрева и способа удержания расплава подтверждаются появлением за время эксплуатации пилотной установки «Расплав-2» с 1988 г. серии аналогичных экспериментальных установок для исследований по проблеме кориума в России и за рубежом. К ним относятся установки RCW в РНЦ КИ (2002 г.), Россия, TROI в KAERI, Корея (2000 г.), КОМЕТА в NRI, Чехия (2000 г.), MCCI в Framatom ANP, Германия (1999 г.).

Табл. 1: Технические характеристики установок серии «Расплав»

Характеристика	Экспериментальная установка			
	РАСПЛАВ-2	РАСПЛАВ-2/С	РАСПЛАВ-3	РАСПЛАВ-4
Способ приготовления расплава кориума	Индукционная плавка в холодном тигле (ИПХТ)			
Мощность установленная, кВА	250		100	
Частота греющего тока, МГц	1,76	1,76	0,066-0,120	5,22
Масса расплава в тигле, кг	До 5	До 10	До 2	
Температура расплава, °С	до 3000			
Среда над расплавом	Воздух, азот, гелий, аргон, водяной пар и их смеси	воздух	Воздух, азот, гелий, аргон, водяной пар и их смеси	
Состав расплава	Окисленный кориум		Неокисленный кориум и сталь	Окисленный кориум
Возможные манипуляции с расплавом	Плавка на блок	Плавка на слив	Плавка на блок	
Дата ввода в эксплуатацию	1988	1995	2002	2004



Основное оборудование: 1-Печь ИПХТ Расплав-2, 2-Печь ИПХТ Расплав-2С, 3-Печь ИПХТ Расплав-3, 4- ВЧГ8-160/1.76, 5- ВЧГ7-100/0.66 (Печь ИПХТ Расплав-4 на схеме не показана)

Обозначения контрольных точек: Т – температура, Р – давление, F – расход, К –состав газа, R – радиационный контроль, LA – уровень

Рис. 1 Принципиальная технологическая схема комплекса установок «Расплав»

Изложенные в работе технические характеристики и особенности комплекса высокотемпературных измерений обеспечивают широкие экспериментальные возможности установок. Отметим разработанные для исследования высокотемпературных процессов с кориумом:

- совмещенную систему видеомониторинга, регистрации и пирометрии,
- волоконно-оптическую систему для измерения кинетики абляции бетона при взаимодействии с кориумом,
- ультразвуковую систему для измерения кинетики высокотемпературной коррозии корпусной стали при взаимодействии с кориумом.

Подробно рассмотрены инструментальные погрешности средств измерений и представлены их соответствующие характеристики. Используемая для отображения, регистрации, хранения и первичной обработки экспериментальных данных двухуровневая система экспериментальных измерений (СЭИ) обеспечивает, в частности, опрос и регистрацию до 116 аналоговых каналов с частотой до 20 Гц, сбор данных по цифровым каналам связи в соответствии с частотой обновления информации на приборах, поддержание режима разночастотного опроса датчиков, а также широкий набор сервисных функций в процессе измерений и постобработки.

Следующим шагом на пути увеличения масштаба экспериментальных установок для исследования кориума является сооружаемая в Научно промышленном центре атомной энергетики (НПЦ АЭ НИТИ) установка большой мощности (Табл. 2) - стенд тяжелых аварий (ПСТА).

Табл.2: Технические характеристики ПСТА

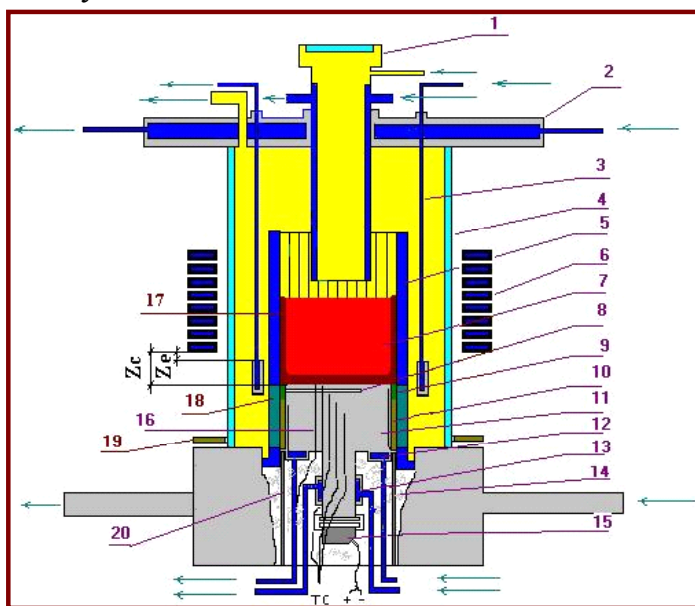
Метод приготовления расплава	ИПХТ
Мощность источника питания печи, кВт	600
Масса расплава в тигле, кг	70...100
Атмосфера над расплавом	Инертная или окислительная
Температура расплава, °С	До 2500
Длительность плавильной процедуры, час	До 70
Количество экспериментов в год	До 6

Третья глава посвящена экспериментальным исследованиям взаимодействия кориума с охлаждаемой по наружной поверхности корпусной сталью и с расплавом стали, а также процессов при подаче воды на поверхность расплава. Эти исследования проводились в обоснование концепции удержания расплава в корпусе ВВЭР-640 и ВВЭР-440. Схема и внешний вид печи ИПХТ для экспериментов по взаимодействию расплава кориума с водоохлаждаемыми образцами корпусной стали, расположенными в донной части ванны кориума, представлена на рис. 2.

В этих экспериментах после наплавления и гомогенизации ванны 7 реализовывали взаимодействие расплава кориума с корпусной сталью 11 при варьировании в характерных для внутрикорпусных условий удержания пределах следующих определяющих параметров: - состава расплава и его кислородного потенциала, температуры поверхности стали и теплового потока от расплава кориума в образец.

Температурное состояние образца и тепловой поток в образец определяли пост-тест расчетом по показаниям термопар, размещенных в нем на различных диаметре и высоте, и результатам измерения тепловых потоков в нижнем 13 и верхнем 12 калориметрах, пространственное положение фронта взаимодействия – методом ультразвуковой эхолокации с использованием совмещенного пьезоэлектрического излуча-

теля/приемника 15, температуру расплава кориума – по показаниям цветового оптического пирометра, сфокусированного на поверхность ванны вблизи ее оси через шахту 1.



а



б



в

1 – шахта пирометра; 2 – крышка; 3 – внутренний электромагнитный экран; 4 – кварцевая обечайка; 5 – секция тигля; 6 – индуктор; 7 – расплав; 8 – акустический дефект; 9 – плавленный ZrO_2 ; 10 – теплоизоляция из ZrO_2 ; 11 – образец корпусной стали; 12 – верхний калориметр образца; 13 – нижний калориметр образца; 14 – теплоизоляция из каолиновой ваты; 15 – ультразвуковой датчик; 16 – термопары; 17 – гарнисаж; 18 – наружный электромагнитный экран; 19 – электромагнитный экран коллектора; 20 – опора образца

Рис. 2 Схема печи ИПХТ (а), внешний вид печи (б) и образца стали (в)

Пример расчета температурного состояния образца и финальное положение границы взаимодействия после эксперимента МС 6 по взаимодействию расплава кориума С-30 (30% окисленного циркония от его общего содержания, атомное отношение $U/Zr=1,2$) представлены на рис. 3.

Точное положение границы взаимодействия определяли по профилограммам, построенным с помощью оптического микроскопа. Для исследования химического и фазового состава проб кориума и стали из зоны взаимодействия применяли следующие методы и аппаратуру.

Анализ элементного состава:

- Рентгенофлуоресцентный анализ (РСФА) – спектрометр с ПЛЭ.
- Химический анализ (ХА) – спектрофотометр СФ-2000.

Анализ фазового состава:

- Микрорентгеноспектральный анализ (EDX).

Металло-и керамография:

- Оптическая микроскопия.
- Сканирующая электронная микроскопия (SEM).

Степень окисленности кориума и количество свободного циркония в пробах рассчитывали по данным фотоколориметрического определения урана (IV) и урана (VI) с реагентом арсеназо-III и газовольнометрического определения металлического циркония по объему выделившегося при взаимодействии с фосфорной кислотой водорода.

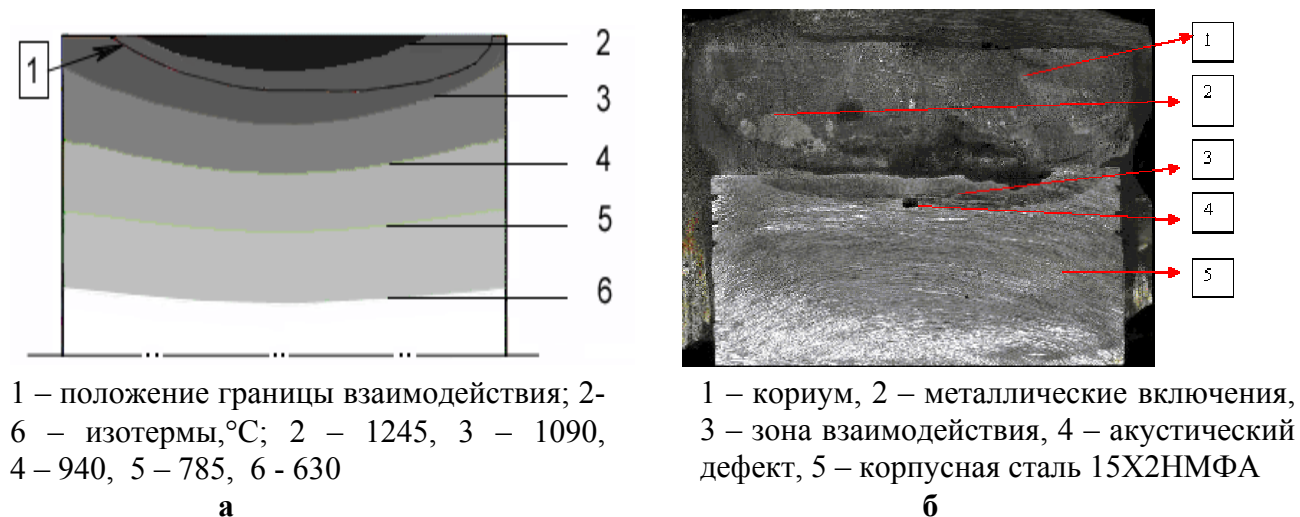
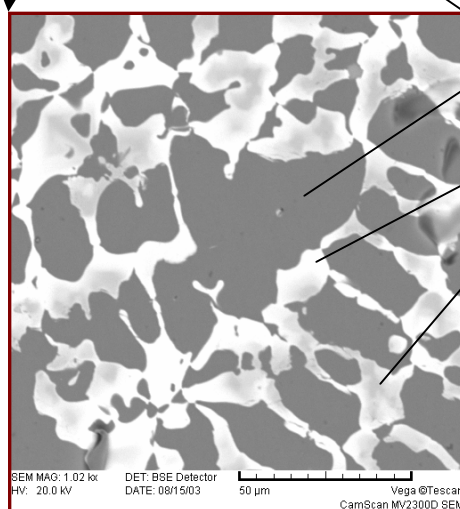
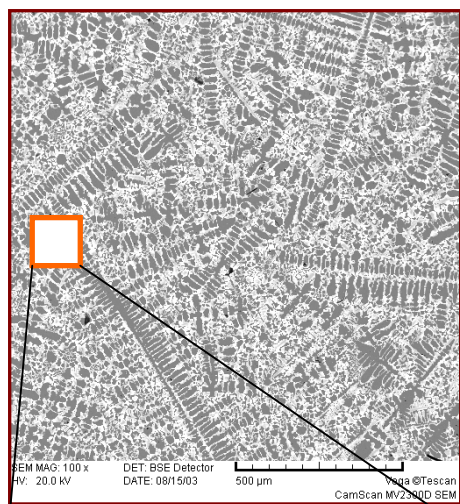


Рис. 3 Температурное состояние верхней части образца стали в эксперименте (а) и вид осевого сечения образца после эксперимента МС 6 (б)

На рис. 4 представлены характерные микроструктуры зоны взаимодействия 3 на рис. 3 б для условий с низким кислородным потенциалом расплава (эксперимент МС 6, субокисленный кориум С-30 в инертной среде) и при высоком кислородном потенциале расплава (эксперимент МС 2, окисленный кориум, содержащий оксиды железа, в воздушной среде).

Результаты экспериментов показали принципиально различный характер взаимодействия со сталью субокисленного и окисленного кориума, соответственно, по эвтектическому механизму с образованием легкоплавкой системы U-Zr-Fe с небольшим количеством кислорода и по механизму диффузионно-контролируемого твердофазного окисления стали за счет окислительных ресурсов кориума и атмосферы. В первом случае основными корродиентами являются ионы урана и циркония, во втором — свободный и связанный в оксидах переменной валентности кислород, т.е. используются окислительные ресурсы кориума и атмосферы. Кинетика коррозии в первом случае определяется транспортом урана и циркония к поверхности стали через корку кориума, а во втором — диффузией ионов железа через корку вюстита на поверхности стали. Минимальные скорость и финальная глубина коррозии стали соответствуют близкому к стехиометрическому составу кориума UO_2-ZrO_2 , то есть условиям плавки С-100 в инертной атмосфере. Влияние кислородного потенциала расплава на интенсивность коррозии, обобщенно определяющую скорость и финальную глубину коррозии, представлено на рис. 5.

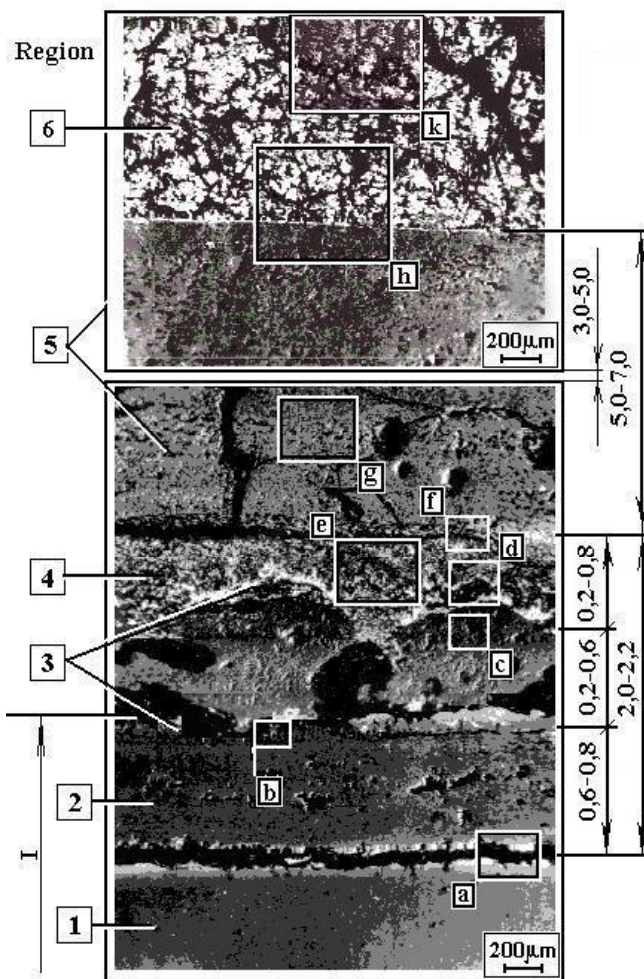


P ₁	Fe	Cr	Ni	Mn	Si
масс.%	93.9	4.2	0.4	1.2	0.3

P ₂	U	Zr	Fe	Cr
масс.%	59.5	2.4	28.2	0.2

P ₃	U	Zr	Fe	Cr
масс.%	36.6	19.6	41.3	0.7

(а)



I – первоначальное положение поверхности металла. 1 – стальной образец; 2 – 5 – регионы, отличающиеся структурой и составом элементов; 6 – кориум; a,b,c,d,e,f,g,h,k – фрагменты, для которых определялись SEM – имиджи и выполнялись EDX – анализы.

Состав зоны 2 – оксиды железа (продукты окисления стали)

(б)

Рис. 4. Микроструктуры зоны взаимодействия при низком (а) и высоком (б) кислородном потенциале расплава кориума

Выполненные исследования позволили разработать количественные модели взаимодействия окисленного кориума с водоохлаждаемой корпусной сталью и качественную модель для субокисленного кориума, см. рис. 6.

Сравнение результатов расчета кинетики коррозии стали при ее взаимодействии с окисленным кориумом с кинетическими данными из экспериментов показывает удовлетворительную сходимость результатов для рекомендованного диапазона параметров, см. пример для условий эксперимента МС 3 на рис. 7.

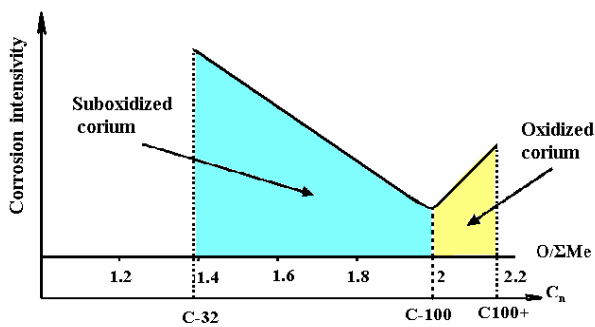


Рис. 5. Качественная зависимость интенсивности коррозии стали от индекса окисленности кориума

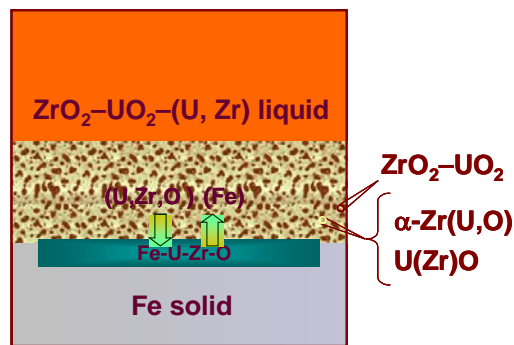
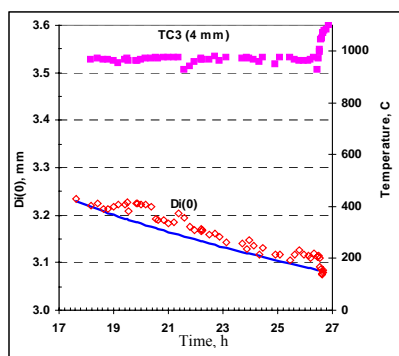
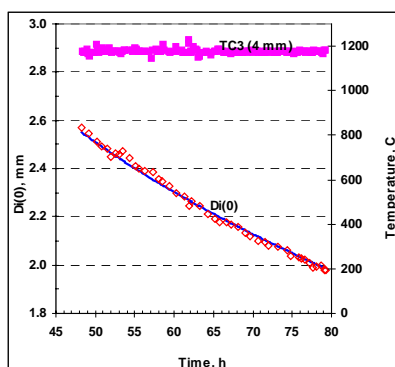


Рис. 6 Схема, иллюстрирующая модель взаимодействия субокисленного кориума со сталью



(а)



(б)

Рис. 7 Кинетика коррозии стали для условий эксперимента МС 3 при температуре поверхности стали 1000°C (а) и 1200°C (б)

◇ - экспериментальные данные величины коррозии образца во времени [мм],
 - расчет, □ - изменение во времени показаний термпары ТС3 вблизи поверхности стали

Для проблемы внутрикорпусного удержания расплава важно отметить следующие обстоятельства:

- Ранее физико-химические процессы взаимодействия кориума со сталью не учитывались, поэтому толщина неповрежденной части корпуса рассчитывалась при достижении теплового равновесия в предположении равенства температуры на границе кориума и корпусной стали температуре плавления стали 1550°C. Выполненное исследование показывает, что эта температура может быть существенно меньше, для кориума С-30 - примерно 1100°C. Т.е. толщина неповрежденной части корпуса оказывается заметно меньше.

- Для учета физико-химических процессов требуется рассмотрение не только теплового, а главным образом химического равновесия в системе кориум-ванна расплава, которая характеризуется чрезвычайно высокими градиентами температуры в зоне взаимодействия. Эта задача еще далека до практического решения, однако модельные представления о природе физико-химического равновесия в таких условиях уже имеются.

- Обнаруженный в экспериментах эффект экстракции урана и циркония сталью корпуса может привести к существенно разным характеристикам взаимодействия на горизонтальной и вертикальной поверхностях контакта кориума и стали вследствие высокой плотности образующегося металлического сплава. Можно предположить, что при взаимодействии с вертикальной стенкой процесс интенсифицируется

вследствие выхода из зоны реакции образующегося металлического расплава. Исследования в этом направлении следует отнести к приоритетным на перспективу.

- Разработанные модели взаимодействия окисленного кориума с корпусной сталью могут быть рекомендованы для использования не только в расчетах внутрикорпусного удержания, но и при моделировании внекорпусных процессов, в частности, процессов в ловушке для случая взаимодействия со сталью окисленного кориума, содержащего оксиды железа, в окислительной и инертной среде.

- Разработку количественных моделей взаимодействия субокисленного кориума с корпусной сталью также следует отнести к задачам высшего приоритета на перспективу.

Для определения макроструктуры удерживаемой на днище корпуса ванны расплава кориума на установке «Расплав-3» проведены экспериментальные исследования взаимодействия расплава кориума с жидкой сталью, которая во внутриреакторных условиях поступает в расплав кориума при взаимодействии с блоком опорных труб, стенкой корпуса, а также при плавлении вышерасположенных внутрикорпусных устройств. Поскольку компоненты кориума и стали образуют систему с ограниченной взаимной растворимостью, физико-химическое взаимодействие между расслаивающимися жидкостями – расплавами кориума и стали – может существенно влиять на свойства расплавов и структуру ванны. Матрица опытов СТОКС представлена в табл. 3, из которой видно, что в этой серии варьировались кислородный потенциал расплава и соотношение масс стали и кориума. Нержавеющую сталь вводили на поверхность ванны расплава. В третьем и четвертом эксперименте кроме перераспределения основных компонент исследовали перераспределение продуктов деления.

Таблица 3. Матрица экспериментов СТОКС по программе MASCA

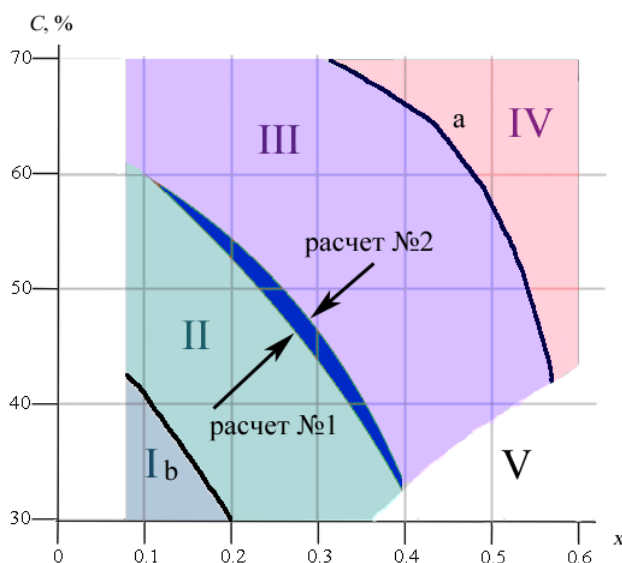
Параметр	СТОКС №			
	1	2	3	4
Время экспозиции, мин	30			
Масса расплава кориума перед введением стали, г	1434,2	1560,2	1503,1	1483,7
Масса стали, г	200	200	200	400
Степень окисленности кориума, %	33,1	74,6	36,5	39,7
Атомное отношение U/Zr в кориуме	1,2			
Имитаторы продуктов деления	-		SrO, BaO, CeO ₂ , La ₂ O ₃ , Ru, Mo	

Ранее, до проведения описываемых исследований предполагалось отсутствие химического взаимодействия расплавов оксидов и стали, и во всех случаях считали, что расплав стали, будучи более легким, располагается в верхней части ванны над расплавом оксидов. В экспериментах обнаружен новый эффект – экстракция урана, циркония и некоторых ПД расплавом стали из расплава субокисленного кориума. Равновесная концентрация урана и циркония в расплаве стали после взаимодействия определяется прежде всего степенью окисленности кориума (С) до взаимодействия, отношением U/Zr и соотношением масс стали и кориума (х). При определенных условиях состав и плотности оксидного и металлического расплавов изменяются столь значительно, что это может приводить к гравитационной инверсии слоев, т.е. к изменению структуры ванны расплава. Так, например, в экспериментах СТОКС 1, 3, 4 после взаимодействия плотность металлического расплава превышала плотность оксид-

ного, поэтому финальное положение расплава металла соответствует представленной на рис. 8 структуре слитка.



Рис. 8. Структура слитка кориума из эксперимента СТОКС 3 (реконструкция)



I, II – области всплытия оксидного расплава, III, IV – области всплытия металлического расплава, V – область однофазного расплава. a – минимальное и b – максимальное значение плотности кориума. Расчет № 1 и Расчет № 2 – расчеты с использованием различных данных по плотности жидкого оксида циркония

Рис. 9. Граница инверсии оксидного и металлического расплава как функция индекса окисленности кориума (С) и соотношения масс расплава стали и кориума (x)

По экспериментальным данным были определены зависимости концентрации урана и циркония в расплаве стали от С и х. С использованием базы данных ИВТАНТЕРМО разработана и верифицирована по полученным экспериментальным данным, вместе с данными Хофмана и РНЦ КИ, модель, описывающая равновесие в системе компонент кориума и стали. С помощью этой модели и модели идеального смешения компонентов расплава выполнены прогнозные расчеты плотностей оксидной и металлической частей расплава в равновесной системе и определен характер зависимости границы инверсии расплава от С и х, см. рис. 9, которая может быть рекомендована для оценки структуры ванны расплава для внутриреакторных условий.

Установлен характер распределения ПД между оксидной и металлической жидкостями, согласно которому рутений и молибден преимущественно находятся в расплаве металлов и сокристаллизуются с ним, в то время как оксиды стронция, бария, церия и лантана сосуществуют и кристаллизуются с оксидным кориумом.

На основе расчетных оценок и экспериментальных данных выполнен анализ возможных структур ванны расплава кориума в корпусе реактора ВВЭР-440. Показано, что с учетом обнаруженных экспериментально эффектов, «классическая» двухслойная структура с верхним расположением расплава стали может трансформироваться в более сложную – трехслойную. Обсуждены возможные процессы, которые необходимо изучать и учитывать при обосновании внутрикорпусного удержания расплава при более сложных структурах ванны.

Отмечено, что обнаруженные эффекты и конечная структура ванны оказываются более чувствительными, чем это считалось ранее, к сценарию деградации активной зоны, степени ее окисления и алгоритму поступления материалов в ванну расплава. Это обстоятельство значительно усиливает актуальность расчетного моделирования процессов деградации активной зоны и формирования ванны с помощью кодов улучшенной оценки.

В заключительном разделе главы 3 представлены результаты исследования процессов при подаче воды на поверхность расплава. Подача воды на поверхность расплава внутри и вне корпуса реактора может являться одним из элементов стратегии управления тяжелой аварией или может происходить самопроизвольно во многих аварийных последовательностях. Вода на поверхности расплава:

- способствует процессу захлаживания расплава;
- экранирует корпус реактора и незащищенные стены бетонной шахты от лучистого теплового потока с зеркала расплава;
- ограничивает выход в контейнмент продуктов деления и аэрозолей.

Однако, при определенных условиях подача воды может иметь негативные последствия – паровой взрыв, генерацию водорода, переопрессовку корпуса и пр.

Целью выполненных с расплавом оксидного кориума и расплавом стали экспериментов было проверить возможность парового взрыва, оценить условия теплоотдачи от расплава к воде и скорость генерации водорода.

В экспериментах с кориумом массой около 1 кг и сталью (от 40 г до 150 кг расплава) в атмосферах воздуха и аргона не зарегистрировано взрывных эффектов при подаче воды на поверхность расплава окисленного кориума и стали марки 12X18Н10Т, содержащей от 0 до 5 масс.% циркония в диапазоне температур расплава 1500 – 2000°C. Можно утверждать, что опасность парового взрыва при безнапорной подаче воды на расплав не только оксидов, но и нержавеющей стали, содержащей неокисленный цирконий, не столь велика, как считалось ранее.

Условия теплообмена при кипении воды на поверхности оксидного и металлического расплава могут быть рассчитаны по известным зависимостям для пленочного кипения воды на твердой обращенной вверх поверхности, результаты расчета совпадают с полученными в экспериментах данными в пределах 30% погрешности.

По результатам экспериментов с расплавом стали и стали с цирконием можно утверждать, что увеличение масштаба экспериментов примерно в 10 раз не привело к качественным и заметным количественным изменениям исследуемых процессов. При взаимодействии расплава металла с водой образуется водород и оксидный расплав или корка на поверхности ванны расплава металлов, являющиеся результатом высокотемпературной химической реакции между компонентами стали и водяным паром. Наличие такой корки между расплавом стали и кипящей водой уменьшает скорости окисления металла и выхода водорода. Отметим, что низкая теплопроводность оксидной корки обуславливает ее значительно более низкую температуру по сравнению с температурой металлического расплава. Соответственно, диффузия ионов металла через корку ослабляется существенно, чем для изотермического окисления, что обуславливает более крутой характер спадающей зависимости скорости окисления от времени, чем при параболическом окислении. Т.е. использование параболического закона при постоянной температуре для расчета

окисления расплава стали, особенно при наличии циркония в расплаве, консервативно.

Сравнение полученных данных с результатами других немногочисленных работ позволяет судить о сопоставимых количественных характеристиках взаимодействия. Полученные в экспериментах зависимости использованы при анализе процессов в УЛР и расчетном обосновании этих устройств. Результаты выполненных исследований подтверждают эффективность реализованных в концепции локализации расплава АЭС с ВВЭР-1000 технических решений, обеспечивающих подачу воды на поверхность расплава оксидов после инверсии оксидного и металлического слоев. Тем самым удается существенно ограничить выброс в контейнмент аэрозолей, ПД и неконденсируемых газов, прежде всего водорода.

В четвертой главе представлены результаты исследования процессов, характерных для внекорпусной фазы тяжелой аварии, разработки и обоснования отдельных элементов концепции и устройства для локализации расплава кориума за пределами корпуса реактора.

Для прогнозирования развития внекорпусной фазы тяжелой аварии на действующих АЭС с ВВЭР, не оснащенных устройством локализации расплава, и определения последствий аварии исследовано взаимодействие расплава кориума с бетонами шахты реактора: М-200 и серпентинитовым. В экспериментах определяли кинетику абляции бетона, количество и состав газовых и аэрозольных продуктов взаимодействия, влияние неокисленного циркония в расплаве на характеристики процессов. Матрица этих экспериментов представлена в табл. 4.

Табл. 4. Матрица опытов по взаимодействию расплава кориума с бетонами

N	Характеристика	Номер эксперимента						
		1	2	3	4	5	6	7
1	Марка бетона	М-200				Серпентинитовый	М-200	Серпентинитовый
2	Химический состав кориума, масс. %:							
	- UO ₂	54,9		60,2			60,5	
	- ZrO ₂	16,2		15,5			7,4	
	- Fe ₂ O ₃	20,9		15,4			13,9	
	- Cr ₂ O ₃	5,7		6,4			6,4	
	- NiO	2,3		2,5			2,9	
	- металлический Zr	-		-			5,9	
3	Атмосфера в печи	воздух			азот			

Схема экспериментальной ячейки была подобна представленной на рис. 2 при следующих отличиях: отсутствовали электромагнитные экраны, кинетика абляции определялась не по УЗД, а с помощью волоконно-оптических датчиков – световодов типа кварц/кварц, торцы которых были заделаны на различной высоте в образцах бетона, и термомпар, при проведении экспериментов выполняли отбор газовых и аэрозольных проб с последующим их масс-спектрометрическим анализом.

Проведенная серия экспериментов показала, что взаимодействие расплава кориума с бетонами, используемыми в АЭС с ВВЭР, не имеет принципиальных отличий по сравнению с зарубежными типами бетонов, взаимодействие с которыми исследовано в рамках международных программ ACE/MACE/LACE. Результаты экспериментов с серпентинитовым и строительным бетонами, в основном, подтверждают выводы, полученные другими авторами в опытах с силикатными и базальтовыми бетонами:

- Высокие скорости абляции бетона расплавом кориума, особенно неокисленным, не позволяют гарантировать целостности основания контейнента после поступления расплава кориума в шахту реактора. Подача воды на поверхность расплава в этих условиях не предотвращает абляции бетонного основания.

- Взаимодействие с бетоном сопровождается дополнительной переопрессовкой контейнента выделяющимися паром и неконденсируемыми газами, в частности водородом, особенно, если кориум содержит свободный цирконий.

- При взаимодействии с бетоном значительно интенсифицируется выход аэрозольных продуктов и продуктов деления в контейнент.

Указанные обстоятельства определяют целесообразность локализации кориума во внекорпусной ловушке для перспективных проектов АЭС, если не обеспечивается удержание расплава в корпусе реактора.

Одним из очевидных, но, как показано в работе, не самым надежным, способом удержания расплава является использование ограничивающего его распространение защитного барьера, изготовленного из огнеупора, т.е. огнеупорного тигля. Этим путем пошли авторы многочисленных патентов по внекорпусным ловушкам расплава кориума. Исследование взаимодействия расплава кориума с перспективными огнеупорами выполнено для следующих материалов, отличающихся по технологии изготовления и составу:

- плавлено-литые огнеупоры на основе алюмо-магнезиальной шпинели, оксида магния и оксида циркония (серия из 4 экспериментов с донным расположением образцов),

- диоксидциркониевая керамика (серия из 14 экспериментов с погружными образцами и серия из 11 экспериментов с донным расположением образцов),

- диоксидциркониевый бетон (ЦГБ) со связующим из моноалюмината бария/стронция (серия из 10 экспериментов с донными образцами).

Исследования с ЦГБ, который разработан в ИВТ РАН как огнеупорный материал для МГД генераторов, проведены по проекту МНТЦ №64 применительно к созданию внекорпусной ловушки расплава из этого материала (руководитель проекта проф. Пахомов Е.П.).

Результаты представленных в разделе экспериментальных исследований позволили выявить физико-химические особенности процесса взаимодействия кориума с огнеупором и сформулировать структуру расчетных моделей. Модели основаны на экспериментально подтвержденной гипотезе прекращения абляции огнеупора при достижении расплавом (в процессе насыщения тугоплавким оксидом) состава, для которого температура ликвидус равна температуре расплава. Модели верифицированы по экспериментальным данным (см. пример на рис. 10) и используются при расчетном обосновании ловушек расплава, в частности для реактора EPR.

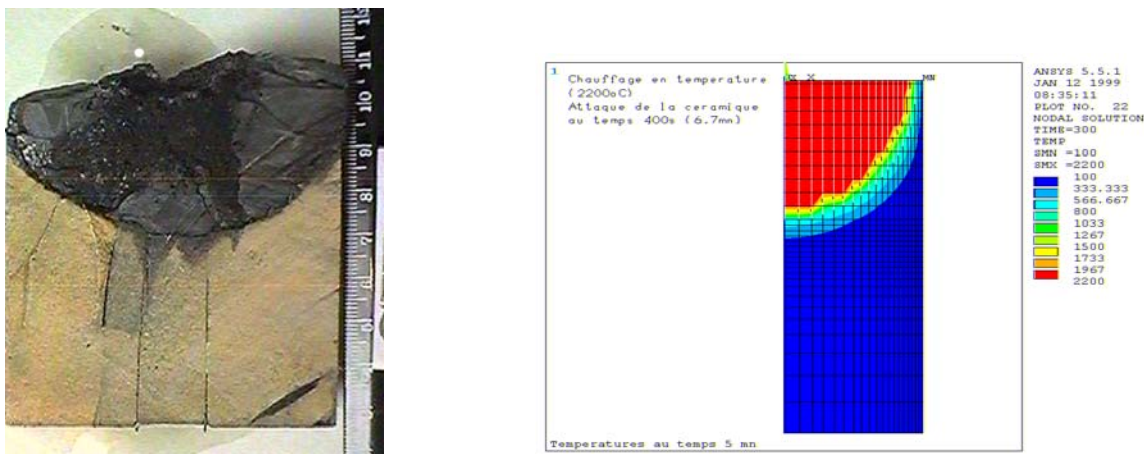


Рис. 10. Вид на разрезе и рассчитанная форма интерфейса взаимодействия расплава кориума с ZrO_2 -керамикой в эксперименте СИТ-9

По результатам исследования сформулированы следующие выводы:

- Сравнивая полученные экспериментальные данные по функциональным характеристикам огнеупоров при удержании кориума, следует отметить, что огнеупоры различной технологии производства на основе диоксида циркония, стабилизированного в кубической модификации, имеют наилучшие характеристики.

- Использование неохлаждаемых огнеупоров в качестве локализирующего кориум барьера не гарантирует удержания расплава как вследствие высокой коррозионной активности кориума, так и в силу специфических процессов растворения/кристаллизации огнеупорных оксидов, ограничивающих термоградиентную ванну расплава. Более перспективно использование охлаждаемых по наружной поверхности огнеупоров.

- При исследовании взаимодействия расплава кориума с огнеупорами на основе диоксида циркония выявлено, что наибольшую коррозионную активность в расплаве внекорпусного кориума по отношению к этим огнеупорам имеют оксиды железа.

Указанные выше обстоятельства, а также ограниченная механическая стабильность охлаждаемых огнеупоров в условиях градиента температур определяют высокую актуальность разработки альтернативных концепций и технических решений по локализации кориума.

При разработке концепции локализации расплава для новых проектов АЭС с ВВЭР-1000, которая выполнена при участии автора, на основе анализа существующих концепций принимались во внимание следующие факторы:

- опыт обоснования удержания расплава активной зоны в корпусе реактора;
- наличие большого свободного объема в подреакторном пространстве бетонной шахты;
- наличие значительного запаса воды внутри защитной оболочки (в шахте ревизии внутрикорпусных устройств и бассейне выдержки отработавшего топлива), которая может самотеком поступать к зоне локализации расплава и использоваться для его охлаждения.

Отметим, что концепция удержания расплава в корпусе реактора ВВЭР-1000 была исключена из рассмотрения, поскольку для реакторов большой мощности пока не удастся обеспечить необходимые запасы по критическим тепловым потокам на наружной поверхности корпуса для всего возможного спектра аварийных сценариев.

Принимая во внимание изложенные выше соображения, была предложена концепция устройства локализации расплава (УЛР) тигельного типа, сочетающая в себе положительные элементы, присущие концепции удержания расплава в корпусе реактора (пассивное водяное охлаждение металлических поверхностей, ограничивающих зону локализации расплава), и концепции EPR (использование жертвенных материалов). Это позволило, с одной стороны, снизить максимальную плотность теплового потока от расплава к охлаждаемой поверхности корпуса УЛР до уровня, соответствующего удержанию расплава в корпусе реактора средней мощности, а с другой, исключить проблему растекания расплава по большой горизонтальной поверхности и зависимость функционирования УЛР от сценария развития тяжелой аварии.

Схематично конструкция устройства показана на рис. 11.

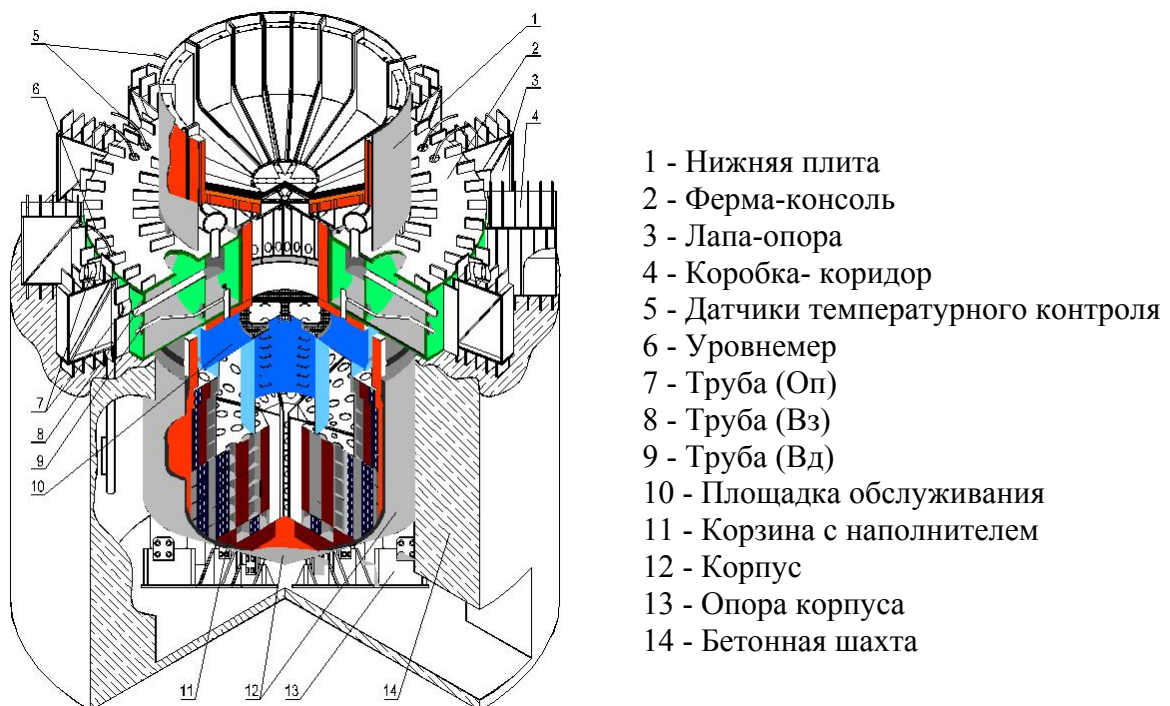


Рис. 11. Схема УЛР АЭС «Куданкулам» (Индия) с ВВЭР-1000

Локализирующим кориум барьером является водоохлаждаемый корпус УЛР (12) - аналог используемого холодного тигля для плавки кориума, расположенный в шахте реактора (14). Отметим, что это дополнительный защитный барьер, который характерен только для АЭС с ВВЭР-1000 нового поколения с повышенным уровнем безопасности. Корпус УЛР обеспечивает отвод тепла от ванны расплава через боковую поверхность и днище. Для удержания днища корпуса реактора при его отрыве, а также защиты корпуса УЛР от падения крупных фрагментов и струи расплава в верхней части устройства предусмотрена прочная железобетонная плита – плита нижняя (1), имеющая воронкообразную форму и опирающаяся на ферму – консоль бетонной шахты (2). Защита от теплового излучения с зеркала расплава расположенных выше строительных конструкций и неохлаждаемых участков корпуса УЛР осуществляется в течение непродолжительного времени специальными теплозащитными экранами, установленными на ферме-консоли, а затем – подачей воды на поверхность расплава. Вода на охлаждение корпуса поступает самотеком из

указанных выше источников запаса воды в контейнменте. Генерируемый в теплообменнике пар отводится в пространство контейнмента через каналы, размещенные над корпусом УЛР.

УЛР закрыто сверху герметичным стальным листом, образующим площадку обслуживания (10) и препятствующим поступлению воды в его внутренний объем до выхода расплава кориума из корпуса реактора для предотвращения паровых взрывов. Внутри корпуса УЛР установлена корзина (11), предназначенная для размещения жертвенного материала (ЖМ) и для предотвращения выхода расплава на стенку корпуса УЛР до завершения взаимодействия расплава с ЖМ. При тяжелой аварии АЭС после проплавления корпуса реактора расплав кориума поступает во внутренний объем УЛР, где начинается его взаимодействие с ЖМ, который, имеет ключевое значение для работоспособности и надежности УЛР.

С помощью ЖМ решаются следующие задачи:

- Восприятие термомеханических и термохимических нагрузок при падении крупных фрагментов конструктивных элементов реактора и струи расплава.

- Сглаживание неопределенностей, обусловленных различиями сценариев протекания тяжелой аварии, т.к. в отличие от накопителя EPR пребывание расплава в рассматриваемом устройстве не имеет временных ограничений.

- Снижение начальной температуры расплава, поступающего в УЛР, до безопасного уровня за счет хладоресурсов ЖМ и вследствие интегрального эндотермического эффекта физико-химических реакций.

- Существенное уменьшение плотности теплового потока на стенки корпуса УЛР благодаря увеличению поверхности теплопередачи за счет растворения ЖМ в оксидной и металлической фазах поступающего расплава кориума.

- Обеспечение инверсии металлической и оксидной фаз расплава кориума в УЛР для исключения паровых взрывов и ограничения генерации водорода при парометаллических реакциях после подачи воды на поверхность расплава.

- Окисление Zr, содержащегося в поступающем расплаве, без выделения водорода.

- Исключение вторичной критичности при любой конфигурации оксидного кориума и любом водоурановом отношении с чистой неборированной водой.

- Уменьшение выхода газов, аэрозолей и продуктов деления.

Указанные задачи определяют комплекс требований к ЖМ.

1. На этапе нахождения системы локализации расплава в режиме ожидания (до аварии) жертвенный материал должен обладать:

- долговременной механической прочностью, достаточной для надежного существования конструкции в течение 60 лет как самонесущего сооружения в условиях вибровоздействий;

- химической инертностью к атмосферным воздействиям в условиях возможного термоциклирования ± 50 около средней температуры $\sim 30^\circ\text{C}$;

- отсутствием заметной активации материала в нейтронном потоке при условиях нормальной эксплуатации.

2. На этапе взаимодействия с высокотемпературным расплавом активной зоны жертвенный материал должен обеспечить:

- интенсивное химическое взаимодействие с оксидной частью расплава активной зоны с понижением температуры ликвидус, чем способствовать высокой эффективности охлаждения системы до возможно меньших значений температур,

уменьшению собственно температуры расплава, а также понижению плотности расплава до его инверсии с металлической частью расплава, предотвращающей эффект фокусировки тепловых потоков на водоохлаждаемой поверхности теплообменников в зоне верхнего слоя расплавленной стали и создающей благоприятные условия для последующей подачи воды на поверхность расплава, а также окисление Zr, предотвращая выделение водорода при взаимодействии с паром и водой;

- разбавление тепловыделяющего расплава, содержащего делящиеся материалы и обеспечение ядерной подкритичности системы;

- уменьшение как начальной пиковой, так и долговременной температуры расплава за счет хладоресурсов собственно жертвенного материала и увеличения поверхности тепловода в соответствии с увеличением объема ванны расплава;

- отсутствие равновесного или гравитационного расслоения (ликвации) расплава, формирующегося при взаимодействии жертвенного материала с оксидной частью расплава активной зоны;

- минимальное значение количества выделяющихся газов, паров и аэрозолей, в том числе радиоактивных, при взаимодействии жертвенного материала с расплавом активной зоны и после подачи воды на поверхность расплава;

- понижение теми или иными способами количества выделяющихся в газовую фазу наиболее опасных радиоактивных компонентов;

- высокую степень устойчивости конструкции в условиях динамической механической нагрузки и термоудара до начала активного химического взаимодействия жертвенных материалов с металлической и оксидной частями расплава активной зоны, т.е. обладать высокими значениями прочности, ударной вязкости, термостойкости.

3. На заключительном этапе существования системы в случае безаварийного цикла жертвенный материал должен обеспечить:

- возможность легкого и безопасного демонтажа конструкции при выводе АЭС из эксплуатации;

- экономичную утилизацию материала.

4. На заключительном этапе существования системы после локализации расплава активной зоны жертвенный материал должен обеспечить:

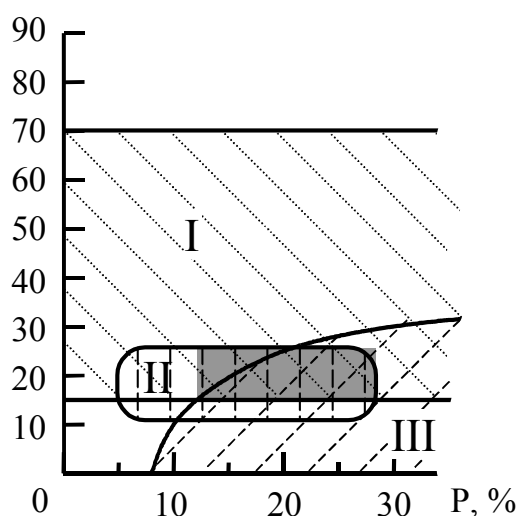
- стабильность существования образовавшегося твердого тела в течение длительного промежутка времени в условиях постоянно протекающих в нем химических и радиохимических процессов и при контакте с борированной водой и воздухом;

- низкие скорости выщелачивания продуктов деления из закристаллизованного тела.

Исходя из предъявляемых к ЖМ требований, а также с учетом технологичности и экономической эффективности, с участием специалистов ИХС РАН и РНЦ КИ осуществлена разработка ЖМ, в состав которого входят две составляющих – металлическая (сталь) СЖМ и оксидная (ОЖМ), каждая из которых предназначена для разбавления, соответственно, металлической и оксидной составляющих кориума. Разработка ОЖМ выполнена методом иерархического многокритериального теоретического анализа имеющихся в литературе данных по свойствам, химическому, элементному и изотопному составу, фазовым состояниям, микро- и макро-структуре широкого класса индивидуальных оксидов и некоторых их

соединений. Полученные результаты позволили разработать новый класс жертвенных материалов на основе системы $Fe_2O_3-Al_2O_3$ и выбрать его оптимальные по всей совокупности критериев параметры: содержание оксида алюминия – 15-25 масс.%, пористость – 20-25% (см. рис. 12).

$m_{Al_2O_3}$, масс.%



P - пористость, $m_{Al_2O_3}$ - содержание оксида алюминия. Отдельные зоны нанесены в соответствии с критериями, обусловленными: зона I - его функцией (максимальное теплопоглощение в сочетании с минимальным количеством выделяющихся газообразных продуктов при взаимодействии с высокотемпературным расплавом); зона II - уровнем его прочностных характеристик и термостойкости; зона III - технологическими возможностями изготовления соответствующего материала с достаточным уровнем термомеханических характеристик.

Рис. 12: Оптимальные диапазоны варьирования параметров ОЖМ

На основе лабораторной и опытно-промышленной отработки технологии изготовления оксидного ЖМ создана заводская технология, она внедрена на ОАО «Боровицкий комбинат огнеупоров».

Анализ полученных экспериментальных данных по синтезу жертвенного материала в системе $Fe_2O_3-Al_2O_3$ позволяет с достаточной долей уверенности утверждать, что при использовании аналогичных технологических приемов жертвенный материал на основе системы $Fe_3O_4-Al_2O_3$ может быть получен при температурах обжига не превышающих $1450^{\circ}C$, а оптимальные значения химического состава и пористости будут лежать в диапазонах: 30-35 масс.% Al_2O_3 и 25-30%, соответственно.

Параллельно с разработкой технологии изготовления оксидного ЖМ проведено экспериментальное исследование взаимодействия этого материала с оксидной и металлической составляющими расплава кориума. Эксперименты SACR 1-9 проведены для изучения механизма взаимодействия оксидной составляющей кориума с ОЖМ, влияния определяющих факторов и получения количественных характеристик, необходимых для разработки расчетных моделей.

Прежде всего, отметим те качественные результаты, которые важны для понимания и корректного прогнозирования процессов при взаимодействии расплава неокисленного кориума с оксидной частью ЖМ в условиях УЛР. Основным концептуальным результатом работы следует считать экспериментальное подтверждение функциональной эффективности используемого в УЛР жертвенного материала на основе смеси оксидов железа III и алюминия. Опыты в близких к натурным условиях показали, что взаимодействие существенно неокисленного кориума С-30 и С-70 с указанным жертвенным материалом начинается при относительно невысокой контактной температуре (примерно $1300-1400^{\circ}C$) и при наличии неокисленного циркония в расплаве идет с высокой скоростью по

автокаталитическому типу. Значительная часть энергии, выделяющейся при реакции окисления циркония, расходуется на интенсификацию самой реакции и не приводит к значительному перегреву расплава.

Не выявлено каких-либо эффектов, которые могут негативно повлиять на работоспособность и эффективность локализации расплава кориума в УЛР (процессы взрывного характера, сильные выбросы расплава, вспенивание или подъем уровня расплава и пр.). Практически весь кислород, выделяющийся при термической диссоциации гематита, связывается Zr. В целом, можно утверждать, что при работе УЛР взаимодействие расплава кориума с ЖМ не приведет к сколько-нибудь заметному дополнительному выбросу неконденсируемых и горючих газов в атмосферу контейнента.

Результаты микроанализа слитков показывают, что введенный в ЖМ в качестве поглотителя нейтронов оксид гадолиния сосуществует и сокристаллизуется с фазой на основе урана и не оттесняется в легкоплавкие эвтектики, что указывает на высокую эффективность применения этого поглотителя для предотвращения локальной критичности.

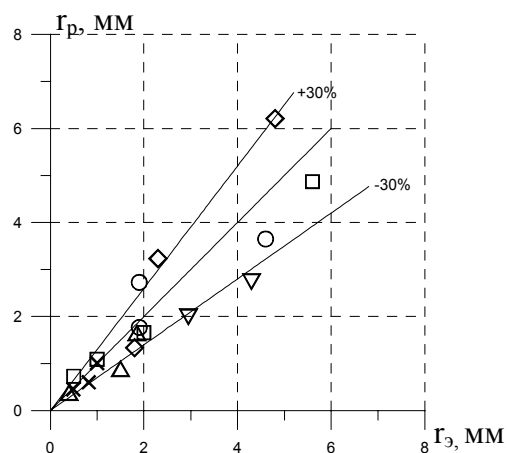
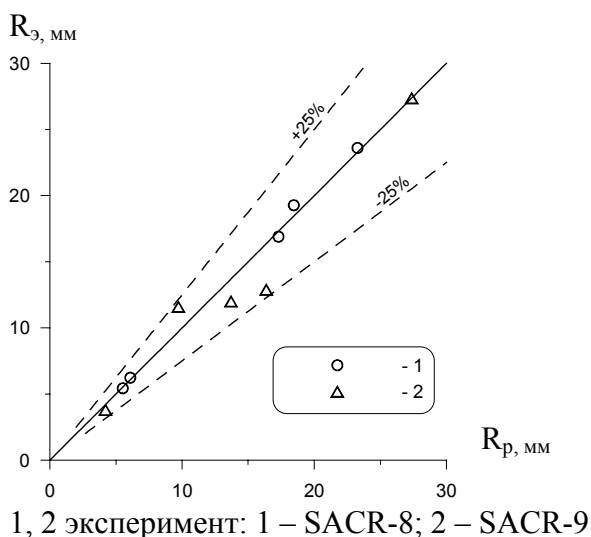
После выгорания неокисленного циркония резко меняется характер и кинетика процесса. Взаимодействие происходит по эвтектическому типу существенно медленнее, однако, как показали расчеты процессов в УЛР, это обстоятельство не является критичным.

Эксперименты серии STS проведены для исследования взаимодействия металлической составляющей кориума с ОЖМ на установке РАСПЛАВ-3. Для плавки металла (нержавеющей стали и ее сплава с цирконием) холодный тигель был изнутри покрыт огнеупорным магнезитовым бетоном. Опыты проводили как параметрическое исследование влияния состава металлического расплава и его температуры на скорость абляции ЖМ, определяемую при различной экспозиции образцов ЖМ, погружаемых в поверхностную часть металлической ванны. Всего проведено три серии экспериментов, общим числом 33.

По результатам выполненного исследования определен механизм взаимодействия ЖМ с расплавом стали. При контакте перегретого металлического расплава с холодным жертвенным материалом в короткой начальной фазе процесса реализуется чисто тепловое взаимодействие, которое из-за малой теплопроводности оксидной керамики приводит к быстрому прогреву поверхностного слоя ЖМ, в то время как глубинные слоигреваются медленно. При этом температура металла на поверхности контакта меняется мало вследствие высокой теплопроводности расплава стали. После прогрева контактирующего с металлом слоя ЖМ до температуры начала термической диссоциации Fe_2O_3 , выделяющийся кислород реагирует с цирконием (и/или хромом) с образованием на поверхности ЖМ плотной тугоплавкой защитной корки, которая блокирует развитие процесса взаимодействия, если температура металла не превышает некоторого порогового значения (назовем его температурой активации абляции ЖМ - T^*). Отметим, что температура термической диссоциации гематита ($Fe_2O_3 \rightarrow 2/3 Fe_3O_4 + 1/6 O_2$) существенно зависит от кислородного потенциала системы, который в данном случае определяется, прежде всего, концентрацией циркония в расплаве. Для воздушной атмосферы над расплавом стали эта температура близка к $1380^\circ C$, а, с увеличением содержания циркония в расплаве, она может уменьшаться на несколько сотен градусов (см. диаграмму состояния FeO- Fe_2O_3 в равновесии с газовой фазой). Можно

утверждать, что при длительной экспозиции ЖМ в расплаве металла с температурой ниже, чем T^* , в процессе медленного прогрева глубинных слоев ЖМ выделяющийся кислород приведет лишь к утолщению и упрочнению огнеупорной корки на поверхности ЖМ. При этом также будут происходить процессы спекания, порообразования, формоизменения и усадки ЖМ, активирующиеся при 1300°C . Отметим также, что в этом режиме взаимодействия тепло, выделяющееся при реакции окисления Zr (Cr), мало и практически не влияет на тепловое состояние реакционного слоя ЖМ и на кинетику взаимодействия. Устойчивость (целостность) защитной корки нарушается при достижении контактным слоем значения температуры T^* . В первом приближении можно связать эту температуру с температурой активации контактного плавления на границе ЖМ и корки ZrO_2 (Cr_2O_3), которая примерно равна температуре тройной эвтектике в системе $\text{FeO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{ZrO}_2$ (Cr_2O_3). В экспериментах температура активации абляции ЖМ (определялась по температуре расплава стали) увеличилась с 1800°C до 1840°C при уменьшении концентрации циркония в расплаве, соответственно, от 6.0 до 5.2 масс %. В фазе активного взаимодействия основными конкурирующими реакциями являются реакции окисления циркония и хрома, причем скорость последней не равна нулю даже при заметных концентрациях циркония (2-6 масс. %). Большая часть продуктов реакции - оксидов циркония и хрома, а также оксид алюминия из ЖМ, который химически не реагирует с расплавом, выводятся из зоны реакции на поверхность ванны и образуют при температуре расплава стали менее 2000°C твердую шлаковую корку. Скорость выведения продуктов из зоны реакции в сильной степени определяется теплогидродинамикой расплава.

Для расчета процессов в УЛР разработаны модели взаимодействия оксидной и металлической составляющих расплава кориума с ОЖМ, представленные в главе 4, которые удовлетворительно обобщают полученные экспериментальные данные (см. рис. 13).



Концентрации Zr в расплаве стали (масс %):

x – 0; O – 2,2; □ – 3,4; ▽ – 4,1; ◇ – 5,0; Δ – 6,2

а

б

Рис. 13. Сопоставление расчетного (R_p , r_p) и экспериментального (R_z , r_z) положения фронта взаимодействия оксидной (а) и металлической (б) составляющих расплава кориума с ОЖМ

Эти модели реализованы в составе расчетного кода, моделирующего формирование ванны расплава в УЛР тигельного типа, и использованы при расчетном обосновании УЛР АЭС с ВВЭР-1000 в Китае и Индии. Отметим, что разработанный и апробированный ОЖМ можно рекомендовать к применению и для некоторых других внекорпусных УЛР.

В пятой главе диссертации представлено исследование выхода малолетучих продуктов деления из расплава кориума, проведенное с целью уточнения баз данных и верификации расчетных кодов, используемых для прогнозирования радиационных последствий тяжелых аварий АЭС с плавлением активной зоны реакторов типа ВВЭР. В настоящее время отсутствует единая теория, описывающая механизмы испарения оксидных расплавов. Сложность испарения оксидных систем проявляется в том, что лишь немногие оксиды испаряются по одной химической схеме (конгруэнтно) и, в лучшем случае, можно говорить о доминантах процесса. Большинство имеющихся данных по испарению оксидов, в основном, получены классическим методом Кнудсена (эффузионным методом в вакууме), а также высокотемпературной масс-спектрометрией (сочетание метода Кнудсена с масс-спектрометрическим анализом продуктов испарения) и относятся к индивидуальным оксидам. Эти данные трудно распространить на многокомпонентные расплавы оксидов и, соответственно, на условия тяжелой аварии, особенно на испарение в окислительной среде. Для исследования испарения ПД из расплава кориума использовали метод потока, который относится к динамическим методам определения давления пара. Сущность метода заключается в насыщении парами исследуемого вещества газа-носителя, проходящего с постоянной скоростью над расплавом при заданной температуре последнего. Количество перенесенного вещества определяли весовым методом, физико-химическими методами анализа и с помощью радиоактивных изотопов.

Экспериментальная программа выполнена на установке "РАСПЛАВ-2". При этом использовали герметичную конструкцию индукционной печи, которая, в зависимости от конкретных целей эксперимента, была подключена к различным газо-аэрозольным системам пробоотбора. В них использовали аналитические фильтры Петрянова, купоны, каскадные импакторы и другие пробоотборные устройства. Для уменьшения транспортных потерь стенки трубок обогревали. Кроме того, на трубки были установлены электромеханические вибраторы. Матрица экспериментов по выходу малолетучих ПД представлена в табл. 5

Отметим, что выполненные опыты имеют интегральный характер, поскольку их результаты определяются совокупностью не поддающихся разделению в эксперименте процессов в жидкой ванне, на ее границе и в газовом потоке. Поэтому полученные экспериментальные данные как по скорости выхода материалов активной зоны и ПД, так и по характеристикам аэрозолей нельзя использовать непосредственно ни для сравнения с аналогичными данными, полученными на других установках, ни для реакторного применения.

Табл.5. Матрица экспериментов по выходу ПД из расплава корнума

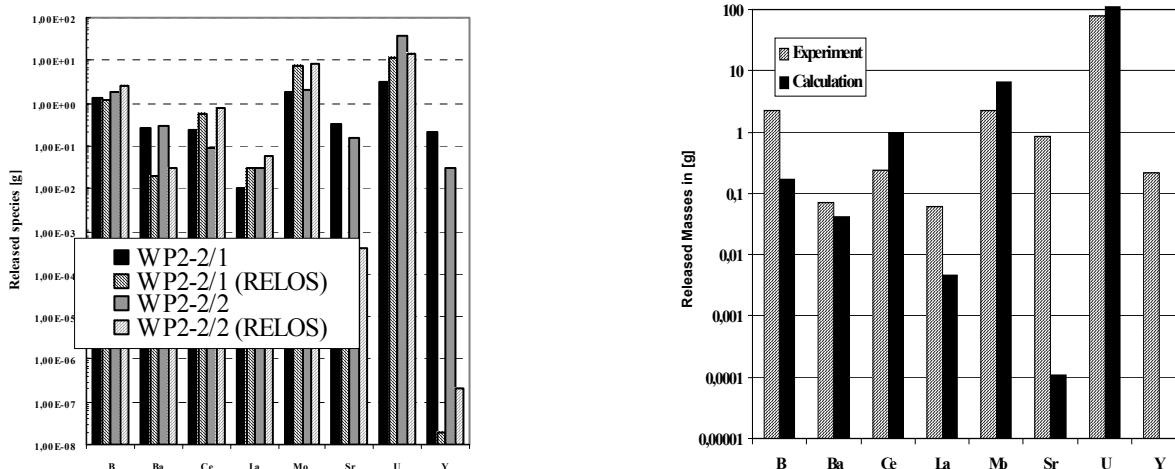
Опыт	Состав расплава по основным компонентам, масс. %				Условия в эксперименте			
	UO ₂	ZrO ₂	FeO _y	SiO ₂	ИПД (радио-метка)	Температура расплава, °C	Расход газа, l/min	Среда над расплавом
FPMP-A	46.5	20.0	32.2	-	SrO (Sr ⁸⁵)	1555- 1810	110	воздух
FPMP-B	100	-	-		-	≈2750	65	воздух
FPMP-C	71	29	-		-	2715-2780	70	азот
FPMP-D	46.5	20.8	24.9		SrO (Sr ⁸⁵), BaO (Ba ¹³³), CeO ₂ (Ce ¹⁴⁴),	1930- 2090		азот
FPMP-E					1960 -2200	воздух		
Pr1-WP2-1	71	29	-		-		2560-2630	10
Pr2-WP2-1					SrO, BaO, CeO ₂ , B ₂ O ₃		~2550	
WP2-1					SrO, BaO, CeO ₂ , B ₂ O ₃ ,		2590	10,40,70
WP2-2/1							2655	азот
WP2-2/2						2775		
WP2-3/1	44.1	18.3	27.3	10.3	La ₂ O ₃ , Y ₂ O ₃ , MoO ₃	10	воздух	
WP2-3/2								L ₁ -1760 L ₂ -1845-1945 L ₁ -1580

Поэтому в работе реализована следующая методология:

1. Тестирование и верификация расчетных интегральных кодов. Для этого в диссертации представлена подробная информация по геометрии установки, условиям в опытах и результатам измерений. Эти данные были использованы для валидации моделей, которые описывают выход ПД из ванны расплава в атмосферу 1 контура при внутрикорпусной фазе аварии или в атмосферу контейнента во внекорпусной фазе. Выполненные эксперименты были промоделированы в IRSN, Франция (Центр ядерных исследований в г. Кадараш) и в RUB, Германия (университет в г. Бохум) с использованием разработанных специализированных кодов нового поколения ELSA и RELOS. Кроме того, в NRI, Чехия (Институт ядерных исследований, Прага) отдельные эксперименты промоделированы с помощью известного кода MELCOR, который используется в большинстве расчетных исследований тяжелых аварий. Наилучшее совпадение между результатами расчета и экспериментальными данными получено для кода RELOS, см рис. 14.

Обобщая сравнение полученных результатов, отметим, что практически для всех экспериментов имеет место согласие расчетных и экспериментальных данных по порядку величины, что для такого рода расчетов является хорошим совпадением. Только для стронция и иттрия расхождения существенно выше. Эти расхождения пока не объяснены, возможной причиной является образование химических соединений с компонентами расплава, т.н. «высаливание» стронция. Отметим также, что код RELOS, по крайней мере, качественно описывает кинетику выхода ПД из расплава в соответствии с экспериментальными данными. По результатам выполненных расчетов и их сопоставления принято решение усовершенствовать код RELOS и ввести в него модуль, описывающий капельный выброс из расплава. Для

валидации этого модуля также планируется использовать результаты экспериментов серии LPP, которые приведены в диссертации.



а- эксперименты WP2-2/1 и WP2-2/2

б- эксперимент WP2-1

Рис. 14. Результаты расчетов по коду RELOS в сравнении с экспериментальными данными

Учитывая достигнутые позитивные результаты применения полученных экспериментальных данных, их можно рекомендовать для валидации соответствующих расчетных модулей создаваемых в России кодов улучшенной оценки.

2. Имея достаточно надежный код, можно по измеренным данным расчетно определить наиболее важные параметры для использования в базах данных:

- парциальные давления компонентов топливного расплава;
- коэффициенты активности отдельных оксидов в расплаве и паре;
- свойства аэрозольных частиц и пр.

Эти работы уже начаты. В частности, получены первые данные по парциальным давлениям оксидов над многокомпонентными расплавами.

3. При анализе процессов тяжелой аварии и проведении соответствующих расчетов нужно учесть следующие обнаруженные в опытах эффекты, которые могут иметь место в натуральных условиях:

- Выраженное влияние кислородного потенциала атмосферы над расплавом на скорость испарения оксидов урана и ПД. В частности, в окислительной атмосфере (воздух) по экспериментальным результатам скорость испарения расплава возрастает в 1.8 – 5.3 раза (при различных расходах газа) по сравнению с испарением в инертной среде (азот), а выходы большинства ИПД, наоборот, существенно меньше. Увеличение выхода оксидов урана является следствием окисления UO_2 (в воздушной среде до U_3O_8 , как показали результаты рентгеноструктурного анализа). Этот эффект может привести к значительному увеличению скорости образования аэрозолей при переходе аварии из внутрикорпусной во внекорпусную фазу, когда расплав из условий кислородного голодания поступает в окислительную среду контейнента. Скорости выхода бора и ИПД в воздушной среде значительно меньше скоростей их выхода в азоте. Однако, с учетом капельного выброса, эти различия сглаживаются.

- Заметное влияние скорости движения газа (особенно в окислительной атмосфере) на скорость испарения. Этот эффект указывает на необходимость связанного расчета выхода ПД из ванны расплава с расчетом естественной циркуляции среды в контейнменте, в 1 контуре и в пространстве, примыкающем к поверхности расплава.

- Определяющий эффект температуры поверхности расплава может быть по полученным экспериментальным данным количественно охарактеризован лишь в ограниченной области температур, составов расплава и скорости газового потока. Отметим, что кажущаяся энергия активации испарения выше в инертной среде по сравнению с окислительной и выше для «тугоплавких» составов расплава ($UO_2 - ZrO_2$) по сравнению с «легкоплавкими» (с добавками FeO , SiO_2, \dots).

- При определенных условиях (как то: наличие относительно холодных поверхностей, затесненная геометрия газового тракта и т.д.) возможен интенсивный рост корок вблизи поверхности расплава, образующихся из капель расплава и конденсированных паров, которые могут блокировать газоаэрозольный поток и тем самым ограничивать выброс ПД в контейнмент. Следует также отметить склонность аэрозольных частиц образовывать плотные отложения, обладающие хорошей адгезией к поверхностям металлов, что может повлиять на эффективность работы СПОТ и каталитических рекомбинаторов водорода.

- Кислородный потенциал атмосферы над расплавом оказывает влияние как на размеры первичных конденсационных аэрозолей, так и на размеры агломератов, образующихся в процессе коагуляции. В окислительной среде (в экспериментах на воздухе) размеры первичных частиц и, соответственно, агломератов меньше, чем в нейтральной среде с низким кислородным потенциалом. Увеличение расхода (скорости) газа над расплавом интенсифицирует коагуляцию, что приводит к увеличению размеров аэрозольных агломератов.

- Для исследованных составов с SiO_2 установлена возможность расслаивания кориума на две жидкости: - верхнюю (более легкую), обогащенную оксидами кремния и бора, и нижнюю, обогащенную оксидами урана и циркония. При небольших перегревах расплава может сохраняться сплошность слоя верхней жидкости. Отметим, что ситуация с расслаиванием в оксидной фазе может быть актуальна для условий взаимодействия кориума со строительными бетонами или с жертвенными материалами с высоким содержанием оксидов бора и кремния.

При исследовании выхода продуктов деления из расплава выявлен нелинейный характер зависимости скорости испарения некоторых радионуклидов, в частности, стронция от их концентрации в расплаве. На основе этого эффекта разработан и реализован в УЛР АЭС с ВВЭР-1000 новый эффективный метод снижения выхода радиоизотопов стронция из расплава кориума с помощью введенных в ОЖМ оксидов стабильных изотопов стронция.

Заключительная **шестая глава** работы содержит результаты исследования фазовых диаграмм систем на основе кориума и продуктов его взаимодействия с материалами АЭС. Исследования проводились и проводятся по проектам СІТ, ENTHALPY Европейского сообщества и по проекту МНТЦ CORPHAD. Известно, что использованию классических методов исследования фазовых диаграмм – ДТА, ДСК и др. для исследования систем на основе кориума препятствует ограниченная стойкость тигельных материалов при контакте с химически активными высокотемпературными

расплавами, что приводит к загрязнению расплава материалом тигля, а зачастую к его разрушению и невозможности проведения измерений. Для исследования фазовых диаграмм был разработан новый метод и соответствующая аппаратура для определения температур ликвидус высокотемпературных и химически активных систем при плавке в условиях холодного тигля – визуальный политермический анализ при индукционной плавке в холодном тигле (ВПА ИПХТ). Большинство результатов, представленных в главе 6, получены этим методом, часть результатов проверена с использованием классических методов в том диапазоне составов и парциальных давлений кислорода, при которых эти методы работоспособны. Сравнение полученных ВПА ИПХТ данных с результатами измерений методом ДТА и данными, полученными другими авторами, позволило определить погрешность измерения температуры ликвидус ВПА ИПХТ как величину, не превышающую погрешность измерения температуры для диапазона составов вблизи температуры эвтектики (т.е. 1% от измеренной температуры), и 50-75°C для составов, характеризующихся значительным интервалом плавкости.

Изучение фазовых диаграмм проводили в двух основных направлениях. Это исследования малоизученных бинарных (квазибинарных) и тройных диаграмм, которые содержат основные компоненты кориума: UO_2-FeO , ZrO_2-FeO и др. Прикладная цель этих исследований состояла в уточнении и оптимизации имеющихся баз данных по фазовым диаграммам, которые используются для анализа тяжелой аварии в части прогноза многокомпонентных прототипных систем.

По второму направлению исследовали отдельные характерные для внекорпусной фазы тяжелой аварии прототипные системы и определяли интервалы плавкости составов, которые имеют место при внекорпусном удержании расплава. Полученные данные использовались при анализе аварии и обосновании эффективности удержания, в частности, для реактора EPR. Отметим, что обнаруженная в экспериментах для некоторых исследованных составов ограниченная взаимная растворимость в жидкости (расслаивание) снижает эффективность применения соответствующих жертвенных материалов.

Полученные по оксидным системам результаты использованы для оптимизации баз данных по свойствам кориума, верификации термодинамических кодов, обеспечивающих расчетный прогноз фазовых диаграмм, и для анализа процессов при тяжелой аварии.

Исследования фазовых диаграмм методом ВПА ИПХТ в настоящее время интенсивно проводятся в направлении более сложных в экспериментальном плане металло-оксидных систем с куполом расслаивания, в частности, системы $U-Zr-Fe-O$, для которых эта техника может оказаться незаменимой.

Кроме того, в главе 6 представлены результаты по определению некоторых свойств расплава кориума, в частности, плотности вблизи температуры ликвидус, электропроводности и излучательной способности.

Плотность расплава определена по массе и объему ванны расплава, который рассчитан по диаметру и глубине ванны, измеренной с помощью кратковременно погружаемого до упора в дно ванны щупа. Погрешность определения составляет примерно 5% относительных.

Для определения электропроводности расплавов кориума различных составов использовалась методика, основанная на решении обратной электромагнитной задачи с использованием данных, полученных в ходе натуральных экспериментов. Указанный

метод имеет ограничения для исследования температурной зависимости электропроводности расплава в силу неизотермичных условий в ванне расплава. Поэтому этим методом была исследована концентрационная зависимость электропроводности от содержания свободного циркония в расплаве или, другими словами, от индекса окисленности кориума (С) вблизи температуры ликвидус. Для полностью окисленного состава С-100 расчетом по данным из экспериментов, характеризующихся различной геометрией индукционной системы и заметно различающихся по энергетике и режимам, была определена воспроизводимость полученных значений электропроводности: данные различаются не более чем на 15%. Погрешность определения электропроводности указанным методом составляет примерно 20 % относительных, погрешность определения индекса окисленности расплава газодьюметрическим методом – 2%. Сравнение полученных результатов с данными РНЦ КИ по программе РАСПЛАВ (см. рис. 15), показывает их хорошую сходимость для субокисленных расплавов (С<80), однако при более высоком кислородном потенциале расплава имеется значительное систематическое расхождение.

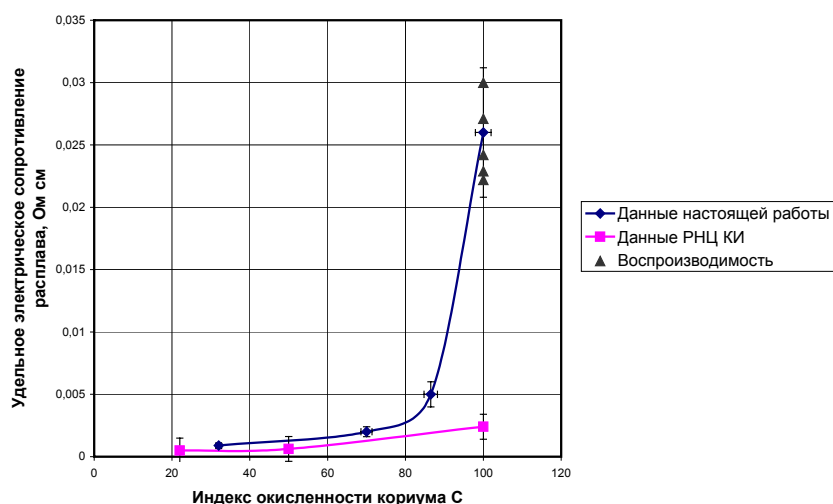


Рис. 15. Зависимость электропроводности расплава при температуре ликвидус от индекса окисленности кориума

Данные по электропроводности расплава, полученные в настоящей работе, использованы при проектировании печей ИПХТ установок Расплав-2, 2С, 3 и 4, фактические технические характеристики которых соответствуют расчетным.

Выводы

1. На основе аналитического обзора исследований, выполненных по проблеме кориума, определены приоритетные для анализа и управления тяжелой аварией процессы.
2. Рассмотрены особенности конструкций экспериментальных установок для работы с кориумом, проанализированы их технические характеристики и определены причины, ограничивающие их экспериментальные возможности.
3. Разработана оригинальная технология индукционной плавки кориума в холодном тигле, имеющая ряд преимуществ при моделировании высокотемпературных процессов в расплаве кориума, и на основе этой технологии создана и успешно эксплуатируется в течение 15 лет серия

установок мощностью от 100 до 240 кВт, которые позволяют оперировать с массами расплава до 10 кг. На основе опыта эксплуатации этих установок спроектирована и сооружается установка существенно большей мощности на 70-100 кг расплава. Разработаны и реализованы в условиях ИПХТ методики исследования физико-химических процессов в высокотемпературных расплавах и специализированная аппаратура для реализации этих методик.

4. Получены экспериментальные данные, характеризующие взаимодействие расплава кориума с конструкционными, строительными и огнеупорными материалами, с водой на поверхности ванны расплава, с жертвенным материалом; выход продуктов деления из расплава; фазовые диаграммы систем на основе кориума и продуктов его взаимодействия с материалами АЭС; определены плотность и электросопротивление расплава
5. Выявлены новые эффекты, в частности, экстракция U и Zr расплавом стали из расплава субокисленного кориума, знание и описание которых позволяет более точно прогнозировать поведение расплава, повысить адекватность расчетного обоснования локализации расплава в корпусе реактора и во внекорпусной ловушке.
6. Разработаны и верифицированы по полученным экспериментальным данным модели взаимодействия расплава кориума с корпусной сталью, с огнеупорами на основе диоксида циркония, с жертвенным материалом.
7. Разработаны отдельные элементы концепции внекорпусной локализации кориума и, в частности, оксидный жертвенный материал как базовый элемент внекорпусного УЛР.
8. Полученные результаты использованы для разработки и расчетного обоснования локализации расплава в корпусе ВВЭР-440 и 640, во внекорпусной ловушке EPR и УЛР АЭС с ВВЭР-1000, а также для верификации создаваемых в России и за рубежом кодов нового поколения, описывающих процессы при тяжелой аварии с плавлением активной зоны реактора, и для разработки новых экспериментальных установок.

Основное содержание диссертации изложено в следующих работах:

1. Петров Ю.Б., Лопух Д.Б., Печенков А.Ю., Бешта С.В. и др. О корродирующей способности расплава кориума. // Перспективные материалы, №3, 1996, с.374-378.
2. Бешта С.В., Витоль С.А., Крушинов Е.В., Грановский В.С и др. Кипение воды на поверхности расплава кориума в условиях тяжелой аварии ВВЭР.// Теплоэнергетика. т. 45. № 11. 1998, с. 11-18.
3. S.V. Bechta, S.A. Vitol, E.V. Krushiniv et al. Water boiling on the corium melt surface under VVER severe accident conditions // Proc. of SARJ meeting 1998, Nov. 4-6, 1998, Tokyo, Japan.
4. S.V. Bechta, S.A. Vitol, E.V. Krushiniv et al. Fission Product Release from Molten Pool: Ceramic Melt Tests // Proc. of SARJ meeting 1998, Nov. 4-6, 1998, Tokyo, Japan.
5. S.V. Bechta, V.B. Khabensky, E.V. Krushinov et al. Corium Melt - Zirconia Concrete Interaction: Oxide Melt Tests // Proc. OECD Workshop on Ex-Vessel Debris Coolability. Karlsruhe, Germany, 15-18 November 1999.
6. K. Froment, B. Duret, J.M. Seiler, S. Hellmann, M. Fischer, S. Bechta, D. Lopukh, A. Pechenkov and S. Vitol. Analysis of Ceramic Ablation by Oxidic Corium // Proc. OECD Workshop on Ex-Vessel Debris Coolability. Karlsruhe, Germany, 15-18 November 1999.

7. С. В. Бешта, В. Б. Хабенский, Е. В. Крушинов. Исследование взаимодействия расплава $UO_{2+x} - ZrO_2 - Fe(Cr,Ni)O_y$ с бетоном на основе ZrO_2 // Огнеупоры и техническая керамика, 2000г, №1, С. 28-32.
8. Bechta S.V., Vitol S.A., Krushinov E.V., Granovsky V.S. et all. Water boiling on the corium melt surface under VVER severe accident conditions. // Nuclear Engineering and Design (NED). v.195 (2000) 45-56.
9. D. Lopukh, S. Bechta, A. Pechenkov, S. Vitol et al. New Experimental Results on the Interaction of Molten Corium with Core Catcher Material // Proc. International Conference ICONE-8, April 2-6, 2000, Baltimore, MD USA
10. Кухтевич И.В., Безлепкин В.В., Грановский В.С., Хабенский В.Б., Асмолов В.Г., Бешта С.В., Сидоров А.С., Беркович В.М., Стрижов В.Ф., Хуа Минчан, Рогов М.Ф., Новак В.П. Концепция локализации расплава кориума на внекорпусной стадии запроектной аварии АЭС с ВВЭР-1000// Труды Научно-практического семинара "Вопросы безопасности АЭС с ВВЭР", С-Петербург, 12-14 сентября 2000 г
11. Bechta S.V., Khabensky V.B., Vitol S.A. et all. Experimental study of ceramic corium melt - steel interaction // Proc. International Seminar RASPLAV 2000, Munich, Germany, 14-15 November, 2000
12. Bechta S.V., Khabensky V.B., Vitol S.A. et all. Experimental studies of oxidic molten corium – vessel steel interaction // Nuclear Engineering and Design. 210 (2001) 193-224
13. Гусаров В.В., Хабенский В.Б., Бешта С.В., Удалов Ю.П., Грановский В.С., Альмяшев В.И. Жертвенный материал устройства локализации расплава активной зоны при запроектных авариях АЭС с ВВЭР-1000: концепция разработки, обоснование и реализация // Вопросы безопасности АЭС ВВЭР. Исследование процессов при запроектных авариях с разрушением активной зоны. Труды научно-практического семинара. СПб., 12-14 сентября 2000. Т. 1. С. 105-140.
14. Гусаров В.В., Альмяшев В.И., Бешта С.В., Хабенский В.Б., Удалов Ю.П., Грановский В.С. Жертвенные материалы системы безопасности атомных электростанций – новый класс функциональных материалов // Теплоэнергетика. 2001. №9. С.22-24.
15. Д.Б. Лопух, С. В. Бешта, В. Б. Хабенский, Е. В. Крушинов, С.А. Витоль. Экспериментальное исследование процессов, возникающих при подаче воды на расплав стали. // Теплоэнергетика. 2001. №9. С. 25-31
16. S.V. Bechta, C.G. Benson, M.S. Newland, T.V. Berlepsch, M.K. Koch, F. Funke, J. Kronenberg, M.P. Kissane, H. Manenc, B. Kujal “ Late phase source term phenomena”// Proc. of FISA 2001 Symposium “EU research in reactor safety”. November 12-15, 2001, Luxembourg
17. Асмолов В.Г., Загрязкин В.Н., Исаев И.Ф., Хабенский В.Б., Бешта С.В., Грановский В.С., Гусаров В.В., Удалов Ю.П. Выбор буферного материала ловушки для удержания расплава активной зоны ВВЭР-1000. // Атомная энергия, т.92. Вып.1, 2002. С.7-18
18. S.V. Bechta, V.B. Khabensky, S.A. Vitol, E.V. Krushinov, V.S. Granovsky, D.B. Lopukh, V.V. Gusarov, A.P. Martinov, V.V. Martinov, G. Fieg, W. Tromm, D. Bottomley, H. Tuomisto. Corrosion of vessel steel during its interaction with molten corium - Part 1: Experimental // To be published in Nuclear Engineering and Design, ref. #BDT025
19. S.V. Bechta, V.B. Khabensky, S.A. Vitol, E.V. Krushinov, V.S. Granovsky, D.B. Lopukh, V.V. Gusarov, A.P. Martinov, V.V. Martinov, G. Fieg, W. Tromm, D. Bottomley,

- H. Tuomisto. Corrosion of vessel steel during its interaction with molten corium - Part 2: Model Development // To be published in Nuclear Engineering and Design, ref. #BDT026
20. A. M. Beard, S. Bechta, C. G. Benson, T. V. Berlepsch, F. Funke, C. C. Kemp, M. P. Kissane, M. K. Koch, J. Kronenberg, B. Kujal, M. S. Newland, K.-G. Petzold, H. Plank, W. Plumecocq. Late Phase Source Term Phenomena (LPP) // Proc. of FISA 2003 Symposium "EU research in reactor safety". November 10-13, 2003, Luxembourg
21. Bechta S.V., Khabensky V.B., Granovsky V.S., Krushinov E.V., Vitol S.A.; Gusarov V.V., Almiashiev V.I.; Lopukh D.B.; W. Tromm; D. Bottomley; M. Fischer; G. Cognet, O. Kymäläinen, New experimental results on the interaction of molten corium with reactor vessel steel. // To be published in Proc. of International Congress on Advances in Nuclear Power Plants – ICAPP'04 June 13-17, 2004 Pittsburgh, PA USA, ref.# 4114
22. Патент РФ № 2070774. Способ плавки веществ повышенной огнеупорности /. Приоритет от 09.12.1994. Грановский В.С., Бешта С.В., Хабенский В.Б. и др.
23. Патент РФ № 2178924. Шихта для получения материала, обеспечивающего локализацию расплава активной зоны ядерных реакторов / Гусаров В.В., Бешта С.В., Хабенский В.Б. и др.
24. Патент РФ № 2191436. Оксидный материал ловушки расплава активной зоны ядерного реактора / Приоритет от 12.10.2001. Гусаров В.В., Бешта С.В., Хабенский В.Б. и др.
25. Патент РФ № 2206930. Способ получения керамических материалов для ловушки расплава активной зоны ядерного реактора, содержащих оксиды железа, алюминия и диоксид кремния / Приоритет от 02.04.2002. Гусаров В.В., Альмяшев В.И., Саенко И.В., Бешта С.В. и др.
26. Gusarov V.V., Khabensky V. B., Bechta S.V., Granovsky V.S. et al., *International patent pending*: "Oxide material for a molten core catcher of a nuclear reactor". WO 02/080188 A2 of 10.10.2002, priority of 02.04.2001

Лицензия ЛР № 020593 от 7.08.97

Подписано в печать 12.03.2004
Тираж 100 экз.

Объем в п.л. ____
Заказ №

Отпечатано с готового оригинал-макета,
предоставленного автором,
в типографии Издательства СПбГПУ
195251, Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29.

Отпечатано на ризографе RN-2000 FP
Поставщик оборудования — фирма “Р-ПРИНТ”
Телефон: (812) 110-65-09
Факс: (812) 315-23-04