

ИССЛЕДОВАНИЯ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА С КОНСТРУКЦИОННЫМИ МАТЕРИАЛАМИ АКТИВНОЙ ЗОНЫ В СЛУЧАЕ ЗАПРОЕКТНОЙ АВАРИИ

*В.С. Красноуцкий, В.К. Яковлев, А.П. Данилов, Е.А. Слабоспицкая, В.М. Евсеев,
Р.В. Матющенко, А.Г. Толстоуцкий*

*Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт,
Харьков, Украина*

E-mail: v.k.yakovlev@kipt.kharkov.ua; факс +38(057)335-17-09, тел. +38(057)335-60-04

Обобщены результаты исследований по синтезу в лабораторных условиях лавоподобных топливосодержащих масс (ЛТСМ) с целью уточнения температурных и временных параметров протекания аварии с расплавлением активной зоны на 4-м энергоблоке Чернобыльской АЭС. Определены температурный интервал плавления топливного материала ($UO_2 + ZrO_2$) по составу, близкому к находящемуся в активной зоне (АЗ) реактора, а также температуры образования ЛТСМ, по химическому составу соответствующих реальным ЛТСМ, которые находятся в подреакторных помещениях 4-го блока. Измерены теплопроводность и плотность образцов ЛТСМ.

ВВЕДЕНИЕ

Две крупнейшие аварии, произошедшие за последние 25 лет на промышленных атомных электростанциях: Чернобыльской в 1986 г. (Украина) и «Фукусима-1» в 2011 г. (Япония), могут иметь серьезные отрицательные последствия для развития атомной энергетики в мире. Доверие населения к АЭС как к безопасным и экологически чистым производителям электроэнергии катастрофически падает, несмотря на то, что в настоящее время и в ближайшей перспективе альтернативных источников производства электроэнергии и технологического тепла не предвидится.

Учитывая это, наряду с повышением безопасности АЭС, необходимо разобраться с процессами, которые происходят или могут происходить в активной зоне (АЗ) ядерного реактора в случаях ее перегрева в аварийных ситуациях, а также учесть последствия, к которым может привести расплавление компонентов АЗ реактора.

В ННЦ ХФТИ в рамках Программы научно-исследовательских работ по атомной науке и технике, а также Программы сотрудничества с Международным Чернобыльским центром (МЦЦ) проводились исследования по изучению поведения материалов АЗ ядерных реакторов в условиях тяжелых аварий с потерей теплоносителя.

В данной работе систематизированы результаты экспериментов по изучению поведения компонентов АЗ (тепловыделяющие и поглощающие элементы, отражатель) в случае ее расплавления и взаимодействия расплава с корпусом реактора, тепловой и биологической защитой, а также со строительными конструкциями помещений и оборудованием применительно к аварии, произошедшей на ЧАЭС.

В периодической литературе опубликован ряд работ [1-3], посвященных результатам обследования помещений разрушенного 4-го энергоблока

Чернобыльской АЭС, анализу существующих документов наблюдения за процессом протекания аварии, а также результатам изучения состава взятых проб из ЛТСМ. Полученные сведения авторы используют в разработке сценария развития аварии, расчета температурных полей до и после разрушения АЗ и приводят прогнозируемые ими результаты распределения ядерного горючего в разрушенном блоке реактора.

Обращает на себя внимание противоречивость в оценке возможных, при разрушении АЗ, температур от ~ 4000 [2] до 1150 °С [1], при которых в первом случае происходит испарение материалов АЗ, образование сферических частиц тугоплавких металлов и выброс их в атмосферу, а во втором случае силикаты полностью растворяют оболочку твэлов РБМК (труба с толщиной стенки 0,9 мм) за несколько минут.

Поэтому для разработки наиболее вероятного сценария протекания аварии необходимы прямые эксперименты по синтезу ЛТСМ с определением температурных условий образования лав и изучение взаимодействия компонентов разрушенной АЗ на начальной стадии развития аварии (расплавления АЗ).

При проведении исследований в качестве исходных компонентов шихты для синтеза ЛТСМ использовали материалы, аналогичные тем, которые принимали участие в процессе образования ЛТСМ при взаимодействии расплавленных материалов АЗ с конструкционными материалами 4-го блока. Подбор компонентов и их процентное содержание было близким к содержащимся в реальных ЛТСМ, которые обнаружены в различных помещениях блока и исследованы с применением различных методик [3].

На момент аварии в активной зоне реактора находились 145 т циркония с 1 мас.% ниобия (сплав марки Э110), 192 т диоксида урана, графит, железо (корпус и инженерные сооружения выполнены из нержавеющей стали, содержащей железо, хром, никель с небольшими добавками других элементов).

Кроме этого, тепловая и биологическая защита реактора содержала серпентинит, основу которого составляют оксид магния и бетонный корпус, в состав которого входила в основном SiO_2 .

Особенностью аварии на 4-м энергоблоке реактора РБМК-1000 Чернобыльской АЭС является то, что плавление и разрушение тепловыделяющих элементов и сборок проходили в графитовых каналах, и влияние углерода на температуру плавления топливного материала ($\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$) должно быть существенным. В публикациях такие сведения отсутствуют.

1. ИССЛЕДОВАНИЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ РАСПЛАВЛЕННОГО ТОПЛИВА С КОНСТРУКЦИОННЫМИ МАТЕРИАЛАМИ

С целью создания удобных условий для проведения экспериментальных исследований и оценки полученных результатов целесообразно было развитие процесса аварии разделить на две стадии по температурным условиям: до образования ЛТСМ, их образование и охлаждение.

К стадии «до образования ЛТСМ» относится расплавление АЗ (образование систем Zr-UO_2 , $\text{ZrO}_2\text{-UO}_2$), а именно, расплавление циркония, его окисление и одновременное взаимодействие с диоксидом урана и графитом.

К стадии «образование ЛТСМ» относится взаимодействие расплавленного материала АЗ с материалом тепловой защиты (серпентинит), бетонным корпусом реактора, строительными конструкциями помещений и оборудованием.

Проведенные ранее [4-7] эксперименты по изменению состояния материалов, входящих в состав твэлов реакторов водо-водяного типа, при условиях максимальной проектной аварии реактора и анализ литературных данных показали, что при высоких температурах (> 1000 °С) в парогазовой среде сплавы циркония быстро переходят из металлического состояния в окись. Поэтому при разрушении твэлов необходимо рассматривать в первую очередь взаимодействие в системе $\text{ZrO}_2\text{+UO}_2$.

Эксперименты по расплавлению материалов АЗ в вакууме показали, что плавление системы $\text{ZrO}_2\text{+UO}_2$ (состава ~ 62 мас.% UO_2 + ~ 38 мас.% ZrO_2) в танталовом и графитовом тиглях происходит при температурах 2600 и 2350 °С соответственно, т. е. присутствие графита снижает температуру плавления на ~ 250 °С [8-10].

В процессе проведения экспериментов и при визуальном осмотре использованной графитовой оснастки установлено, что расплавленный материал твэлов ($\text{ZrO}_2\text{+UO}_2$) хорошо смачивает графит и по внешним признакам интенсивно реагирует с углеродом с образованием карбидов циркония и урана. Установлено, что в процессе плавления материала в вакууме происходит убыль материала до 15...25 мас.%. По-видимому, в вакууме могут образовываться летучие соединения и наблюдаться

транспортные реакции, приводящие к столь значительной убыли веса материала активной зоны.

Эксперименты по плавлению смесей топливных материалов указанного состава в тиглях из графита в среде аргона свидетельствуют о том, что начало плавления происходит в области температур ~ 2370 °С в местах контакта материалов с графитом, и постепенно зона плавления распространяется по радиусу к центру тигля. Полное расплавление всего образца наблюдается при температуре 2500 °С. Эти эксперименты подтверждают, что расплавление материалов сложного состава происходит в определенном температурном интервале. При этом максимальная убыль материала при 2500 °С составила ~ 8 мас.%.

Важным фактором в образовании ЛТСМ является температура плавления взаимодействующих материалов. Проведенные эксперименты показали, что строительные материалы, идентичные по составу чернобыльским, имеют следующую температуру плавления: песок, серпентинит ~ 1500 °С, бетон ~ 1600 °С.

Эксперименты по исследованию взаимодействия расплава АЗ ($\text{ZrO}_2\text{+UO}_2$) с материалами строительных конструкций указывают на то, что в результате их взаимодействия образуется стеклообразная пористая масса различного цвета и оттенков. В частности, при взаимодействии расплава с песком образуется стеклообразная пористая масса преимущественно темно-зеленого цвета с бежевым и белым оттенком, местами с коричневыми пятнами (рис. 1, а, б). При контакте расплава материала АЗ с измельченным бетоном образуется стеклообразная пористая масса темного цвета. На сколе видны образовавшиеся мелкие (менее 0,2 мм) частицы с металлическим блеском (рис. 2, а, б).

Как правило, взаимодействие расплава с материалами (песком, измельченным бетоном) происходит на поверхности материала, и оплавившаяся его часть хорошо отделяется от остальной массы.

В результате взаимодействия расплава материала АЗ с фрагментами бетонного блока наблюдается картина, подобная предыдущему случаю. На поверхности материала дна кигля образуется стеклообразная пористая масса черного цвета; видны открытые поры правильной сферической формы с блестящей внутренней поверхностью (рис. 3, а, б). Внутри тигля обнаружены микрочастицы диаметром 0,5...1 мм сферической формы.

Отличительной особенностью взаимодействия расплава АЗ с серпентинитом является образование в местах контакта стеклообразной массы черного цвета с коричневым и серым оттенками на поверхности (рис. 4, а, б).

Следует отметить, что общей характерной особенностью для всех экспериментов является убыль массы, как расплава материала АЗ, так и исследуемых материалов. Если массу материала расплава активной зоны можно с достаточно высокой точностью контролировать, то массу

исследуемого материала (песка, бетона и др.) контролировать практически невозможно, так как при попадании в него расплава происходит испарение компонентов взаимодействующих материалов.

В процессе проведения экспериментов при визуальном осмотре оснастки и исследованных образцов обращает на себя внимание следующее:

- расплав материала АЗ (ZrO_2+UO_2) интенсивно реагирует с графитом с образованием в местах контакта сплава карбидов;

- расплав материала АЗ смачивает поверхность графитовой оснастки и, как правило, поднимается даже по вертикальной поверхности графитового тигля.

2. ИССЛЕДОВАНИЕ ПРОЦЕССА ОБРАЗОВАНИЯ ЛТСМ

В экспериментах по исследованию параметров образования ЛТСМ использовались материалы, которые участвовали в их образовании при аварии на ЧАЭС, а именно:

- порошок диоксида урана;
- порошок циркония;
- порошок диоксида циркония;



Рис. 1. Результат взаимодействия ZrO_2+UO_2 с песком



Рис. 2. Результат взаимодействия ZrO_2+UO_2 с измельченным бетоном

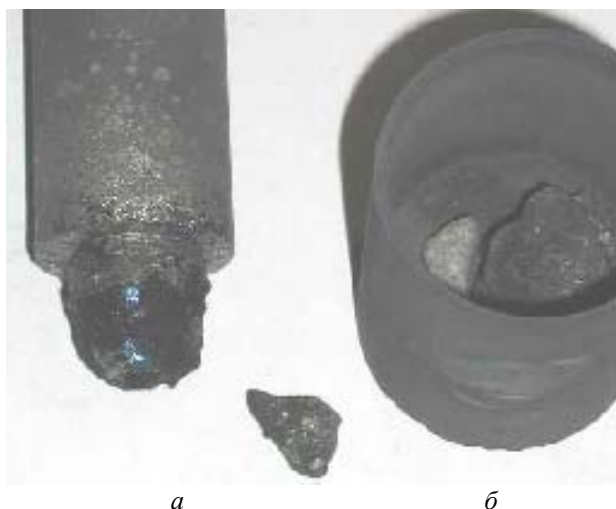


Рис. 3. Результат взаимодействия ZrO_2+UO_2 с фрагментами бетонного блока



Рис. 4. Результат взаимодействия ZrO_2+UO_2 с серпентинитом

- песок строительный;
- бетон;
- серпентинит;
- нержавеющая сталь.

В табл. 1 приведен состав материалов исходной шихты, использовавшейся при синтезе имитаторов ЛТСМ различного состава.

Синтез ЛТСМ проводили при температуре 1400...1900 °С в вакууме и воздухе, при различных скоростях нагрева исходной шихты и охлаждения образовавшейся ЛТСМ.

Эксперименты по исследованию параметров образования ЛТСМ в вакууме проводили при одинаковом температурном режиме разогрева исходной шихты до температуры плавления, но при различных скоростях охлаждения (0,5; 4,5 и 50 °С/мин) в интервале температур 1900...800 °С.

Эксперименты в атмосфере воздуха проводили при одинаковом температурном режиме разогрева, выдержке – при температуре плавления и охлаждения образцов. Скорость подъема и снижения температуры в этих экспериментах была примерно одинаковой и составляла ~ 200 °С/мин в интервале температур 800...1700 °С.

Состав материалов исходной шихты, использовавшейся при синтезе имитаторов ЛТСМ различного состава

Номер состава	Содержание компонентов, мас.%							
	UO ₂	Zr	ZrO ₂	MgO	Серпентинит	Песок	Бетон	Нерж. сталь
1	4,0	-	16,0	-	16,0	32,0	32,0	-
2	5,1	-	3,06	-	10,2	40,82	40,82	-
3	9,66	-	5,31	-	17,39	33,82	33,82	-
4	14,3	-	14,3	-	14,2	28,6	28,6	-
5	17,62	-	4,85	-	15,86	30,84	30,83	-
6	9,66	5,31	-	8,7	-	42,51	33,82	-
7	16,8	9,26	-	7,52	-	37,0	29,4	-
8	17,62	4,85	-	7,9	-	38,8	30,83	-
9	9,22	5,07	-	8,3	-	40,64	32,26	4,6
10	5,1	3,06	-	5,12	-	45,9	40,82	-
11	4,98	2,99	-	4,97	-	44,78	39,8	2,48
12	9,66	5,31	-	-	17,39	33,82	33,82	-
13	16,8	9,26	-	-	15,14	29,4	29,4	-
14	17,62	4,85	-	-	15,86	30,84	30,83	-
15	9,22	5,07	-	-	16,59	32,26	32,26	4,6
16	5,1	3,06	-	-	10,2	40,82	40,82	-
17	4,98	2,99	-	-	9,95	39,8	39,8	2,48
18	-	5,31	-	-	17,39	38,65	38,65	-

2.1. Эксперименты в вакууме

2.1.1. Влияние температуры на процесс образования ЛТСМ

Первые эксперименты были проведены в вакууме при температуре 1900 °С и времени выдержки в течение 1 ч с использованием в качестве одного из компонентов шихты окиси магния вместо серпентинита (см. табл. 1, составы №6–11).

Результаты экспериментов показали, что в случае использования шихты с добавками MgO, при температурах выше 1700 °С в течение 1 ч происходит интенсивное испарение компонентов материала. Так, при температуре ~1900 °С и выдержке 1 ч в графитовом тигле остаются только фрагменты танталовой футеровки тигля и небольшое количество пористого вещества тёмно-серого цвета (рис. 5).

Изучение поведения порошкообразных материалов в состоянии засыпки при более низких температурах показало, что начиная с температур 1400 °С происходит усадка материала, и идет процесс спекания с незначительным уменьшением веса (рис. 6).

В результате исследований установлено, что образование расплавленной ЛТСМ (см. табл. 1, составы №6–1) в вакууме при использовании в качестве одного из компонентов шихты окиси магния происходит в области температур 1500...1650 °С. Полученная керамика имеет различные цвета от шоколадно-коричневого до тёмно-серого (рис. 7). Материал пористый с различного типа включениями, хорошо смачивает графит. В процессе образования керамики

происходит испарение ингредиентов, которые в виде растекающейся капли осаждаются на графитовой крышке тигля (рис. 8) и рыхлого конденсата белого цвета – на оснастке печи.

При использовании тантала в качестве футеровки графитового тигля происходит взаимодействие расплава материала с танталом до полного разрушения футеровки в местах контакта. По-видимому, присутствие значительного количества окиси кремния (песка) в шихте при взаимодействии с другими компонентами в расплавленном состоянии и углеродом тигля способствует образованию чистого кремния и летучей монооксида кремния. Кремний взаимодействует не только с танталом, но и образует карбид кремния на поверхности графитового тигля, а моноокись кремния осаждается на холодных частях печи в форме рыхлого конденсата белого цвета [6].

Эксперименты по формированию ЛТСМ, проведенные в вакууме с исходными компонентами, в которых окись магния заменена серпентинитом (см. табл. 1, составы №1–6 и 12–18), показали, что температурный интервал образования керамики лежит на ~100 °С ниже, чем в случае использования в шихте окиси магния, и находится в пределах 1400...1500 °С (рис. 9). Характерным отличием является также наличие в керамике большого количества сферических частиц диаметром до трех миллиметров, имеющих металлический блеск. При температурах выше 1600...1650 °С происходит испарение исходных компонентов (рис. 10).



*Рис. 5. Образец состава №6
($T_{отж}$ ~ 1900 °С, 1 ч, вакуум)*



*Рис. 6. Образец состава №6
($T_{отж}$ ~ 1400 °С, 1 ч, вакуум)*



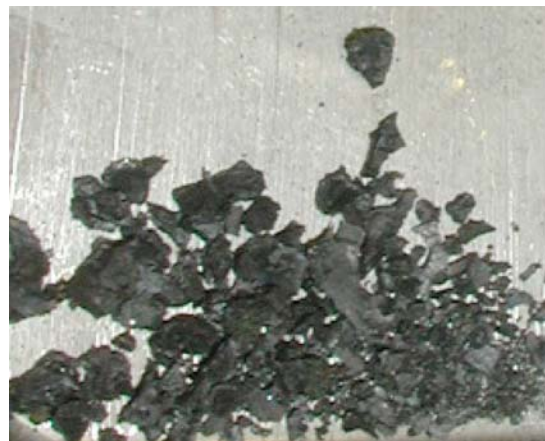
*Рис. 7. Образец состава №6
($T_{отж}$ ~ 1500 °С, 1 ч, вакуум)*



*Рис. 8. Образец состава №6
($T_{отж}$ ~ 1500 °С, 1 ч, вакуум)*



*Рис. 9. Образец состава №3
($T_{отж}$ ~ 1450 °С, 20 мин, вакуум)*



*Рис. 10. Образец состава №3
($T_{отж}$ ~ 1650 °С, 1 ч, вакуум)*



а



б



в

Рис. 11. Образец состава №4, скорость охлаждения, °С/мин: ~ 50 (а); ~ 4,5 (б); ~ 0,5 (в)

2.1.2. Влияние скорости охлаждения на образование ЛТСМ

Для изучения влияния скорости охлаждения расплава на внешний вид и структуру образующихся ТСМ приготавливали шихту одинакового состава (см. табл. 1, состав №4), которую затем отжигали в графитовых тиглях в вакууме в течение ~ 20 мин при температуре ~ 1500 °С. Следует отметить, что нагрев печи до 1500 °С во всех экспериментах, проводившихся в вакууме, осуществлялся по одной программе.

Визуальное изучение полученных образцов показало, что во всех случаях образовалась керамика коричневого цвета, однако в образце, охлажденном со скоростью ~ 50 °С/мин, она имеет блестящую стеклообразную поверхность (рис. 11, а). У образцов, которые охлаждались со скоростью ~ 0,5 и ~ 4,5 °С/мин, керамика имеет матовую поверхность шоколадно-коричневого цвета (см. рис. 11,б,в). На сколах образцов видны пустоты

неправильной формы размером до 10 мм и сферы с металлическим блеском размером до 3 мм.

Полученные результаты согласуются с предположениями о разных скоростях остывания ЛТСМ в различных помещениях при аварии на ЧАЭС.

2.1.3. Влияние времени синтеза на процесс образования ЛТСМ

Проведен анализ результатов, которые получены в процессе изучения ЛТСМ, образовавшихся при синтезе исходной шихты при температуре ~ 1500 °С в вакууме (см. табл. 1, образцы состава №4) при различных временах (от 15 мин до 20 ч). Можно констатировать следующее:

- при времени отжига ~ 20 ч происходит практически полное испарение компонентов исходной шихты (до 84 мас.%). На дне и стенках тигля после охлаждения наблюдается остаток материала расплава в виде тонкой плёнки тёмно-серого цвета прочно сцеплённой со стенкой тигля;

- наиболее интенсивное испарение (до 60 мас.%) наблюдается в первые 15 мин отжига;

- при низких ($\sim 0,5$ °C/мин) скоростях охлаждения образцов, как и в случае большего времени отжига, происходит значительное (до 80 мас.%) испарение компонентов исходной шихты, ввиду длительного нахождения образцов при высокой температуре в процессе медленного охлаждения;

- в процессе взаимодействия компонентов шихты происходит испарение продуктов реакции и конденсация их на холодной поверхности графитового экрана (как показали результаты элементного анализа конденсата, проведенные методом RBS, он состоит: из Si – 73,3; Ca – 21,03; Fe – 5,7 мас.%).

2.2. Эксперименты в атмосфере воздуха

2.2.1. Влияние температуры на формирование ЛТСМ в атмосфере воздуха

Эксперименты в атмосфере воздуха проводили с использованием шихты, содержащей в своём составе серпентинит (см. табл. 1, составы №1–6 и 12–18), при температурах 1450...1750 °C в течение 5...10 мин.

Проведенные исследования показали, что при температуре отжига 1500...1650 °C образовавшаяся ЛТСМ представляет собой глянцевую стеклообразную керамику с большим количеством включений различного цвета (серых, коричневых, чёрных, серо-голубых). Наблюдаются поры неправильной формы диаметром до 10 мм, а также сферы, имеющие характерный металлический блеск, диаметром до 2 мм (рис. 12-14).

При повышении температуры отжига до 1750 °C происходит значительное испарение ингредиентов шихты и в тигле остаётся небольшое количество керамики тёмного цвета (рис. 15). Сравнение процессов формирования керамики в вакууме и в атмосфере воздуха свидетельствует о том, что в случае использования исходной шихты с серпентинитом температурные интервалы начала её образования, практически, совпадают и находятся в диапазоне температур 1450...1500 °C, максимальная же температура, при которой ещё сохраняется керамика в атмосфере воздуха (до испарения ингредиентов), лежит в интервале 1600...1650 °C.

2.2.2. Влияние содержания диоксида урана в исходной шихте на цветовой спектр керамики ЛТСМ

С целью исследования влияния содержания диоксида урана на цветовой состав керамики были проведены эксперименты с шихтой, содержащей различные количества диоксида урана (см. табл. 1, составы №1–5, 18).

Получение керамик проводили в атмосфере воздуха при температуре ~ 1500 °C в течение 5 мин.

Изучение внешнего вида и изломов полученных образцов показало, что керамика, образовавшаяся из шихты без диоксида урана (см. табл. 1, состав №18),

имеет светло-серый цвет (рис. 16). Цвет керамики, содержащей в исходной шихте от 4 до 5 мас.% UO_2 (см. табл. 1, составы №1, 2, 10, 11, 16, 17), изменялся от светло-серого до серого (рис. 17). Керамика, содержащая в исходной шихте ~ 9 мас.% порошка диоксида урана (см. табл. 1, составы №3, 6, 12, 15), имела цветовой состав от светло-коричневого до коричневого (рис. 18). Дальнейшее увеличение содержания порошка диоксида урана в исходной шихте до $\sim 14...17$ мас.% (см. табл. 1, составы №4, 5, 7, 8) приводит к образованию керамики шоколадно-коричневого цвета (рис. 19).

Таким образом, можно сделать вывод, что при указанных режимах получения керамики её цвет определяется процентным содержанием порошка диоксида урана в исходной шихте. Пороговое значение процентного содержания диоксида урана в исходной шихте, определяющее переход цвета образующейся керамики от светло-серого до светло-коричневого, лежит в интервале концентраций 5,1...9,66 мас.% и требует уточнения.

Обобщая результаты, полученные при проведении экспериментов в атмосфере воздуха, можно констатировать следующее:

- во всех экспериментах образовалась керамика с глянцевой наружной поверхностью;

- на сколах образцов керамика матовая, наблюдаются пустоты диаметром до 15 мм и сферические частицы с металлическим блеском диаметром до 2 мм;

- при содержании диоксида урана в исходной шихте ~ 10 мас.% образовавшаяся керамика имеет цвет от светло-коричневого до янтарного, а при содержании диоксида урана ~ 5 мас.% цвет её изменяется от серо-голубого до чёрного, что хорошо согласуется с ранее полученными результатами;

- потеря веса при отжиге на воздухе не превышает 25...30 мас.% от первоначального веса исходной шихты, что меньше (более чем в 2 раза), чем при отжиге в вакууме.

2.3. Эксперименты в атмосфере аргона

При проведении экспериментов по изготовлению имитаторов ЛТСМ в вакууме и атмосфере воздуха при плавке материалов в графитовых тиглях происходит значительный унос материалов через газовую фазу. При этом определенную роль в образовании газообразных продуктов играл графит. Это явление не позволяло осуществлять длительные выдержки расплавленных материалов при высоких температурах. В связи с этим были проведены исследования по синтезу ЛТСМ в среде аргона в тиглях из графита и молибдена.

Исследование температурных параметров образования имитаторов ЛТСМ в атмосфере аргона проводили при температурах 1500...1850 °C в течение 15...3000 мин. Использовалась шихта состава №3 (см. табл. 1) [11].

Технологические параметры и результаты экспериментов по получению имитаторов ЛТСМ приведены в табл. 2.

Результаты экспериментов по исследованию температурных параметров образования имитаторов ЛТСМ в среде аргона

Номер образца	Материал тигля	Температура синтеза, °С	Время синтеза, мин	Скорость охлаждения, °С/мин (от макс. до 1100 °С)	Убыль веса, вес. %	Плотность керамики, г/см ³	Примечания
X-1-03	молибден	1650	30	60	5,2	-	–
X-2-03	то же	1550	30	60	5,4	2,72	–
X-3-03	–«–	1550	100	60	6,4	2,66	–
X-4-03	–«–	1650	150	60	0	2,8	Использовалась керамика из образца X-1-03
X-5-03	–«–	1500	15	60	5,16	3,16	–
X-6-03	графит	1500	15	60	8,41	2,92	–
X-7-03	молибден	1550	1110	60	2,4	2,6	–
X-8-03	то же	1650	120	60	4,57	2,6	–
X-9-03	графит	1650	15	200	29,56	2,83	–
X-10-03	то же	1850	10	250	98,54	-	Наблюдаются остатки керамики в виде тонкой плёнки
X-11-03	молибден	1700	1440	60	4,42	2,7	–
X-12-03	графит	1550	15	60	68,51	2,8	–
X-13-03	то же	1700	10	60	16,77	2,8	На дне тигля образовался шарик с металлическим блеском диаметром 8 мм, плотностью 6,15 г/см ³
X-14-03	молибден	1700	3000	60	18,8	2,76	–



Рис. 12. Образец состава №12
($T_{отж} \sim 1500^\circ\text{C}$, 5 мин, воздух)



Рис. 13. Образец состава №12
($T_{отж} \sim 1500^\circ\text{C}$, 5 мин, воздух)



Рис. 14. Образец состава № 14
($T_{отж}$ ~ 1550 °С, 5 мин, воздух)



Рис. 15. Образец состава № 12
($T_{отж}$ ~ 1750 °С, 5 мин, воздух)



Рис. 16. Образец состава № 18
(шихта без UO_2 , воздух)



Рис. 17. Образец состава № 17
(шихта содержит 4,98 мас.% UO_2 , воздух)



Рис. 18. Образец состава № 12
(шихта содержит 9,66 мас.% UO_2 , воздух)



Рис. 19. Образец состава № 13
(шихта содержит 16,8 мас.% UO_2 , воздух)

Анализ результатов экспериментов показывает, что при синтезе ЛТСМ в графитовых тиглях происходит значительный унос материала, выражающийся количественно убылью веса. Процесс происходит практически так же, как при плавке материалов в вакууме и атмосфере воздуха. Чем выше температура расплава и чем больше площадь контакта расплава с графитом, тем больше убыль веса.

Плавление материалов в молибденовом тигле в среде аргона также сопровождается убылью веса, но в количественном отношении она значительно меньше, чем при плавке в графитовых тиглях. Эти результаты свидетельствуют о том, что в изучаемых сложных окисных системах при высоких температурах происходят процессы, приводящие к испарению части материала.

На рис. 20 приведены кривые, характеризующие убыль веса при плавлении материалов в графитовых и молибденовых тиглях в среде аргона. Они качественно характеризуют происходящие процессы. Если рассматривать все результаты по плавке в тиглях из молибдена, то следует отметить, что основная часть убыли веса наблюдается примерно за первые 15 мин, вне зависимости от температуры расплава, т. е. образование летучих продуктов происходит на первом этапе взаимодействия всех компонентов расплавов. В дальнейшем эти процессы замедляются и проходят менее интенсивно. Об этом говорят и результаты металлографического анализа. Наблюдается общая картина: чем дольше выдержка материала в состоянии расплава, тем меньше в нем пор.

На основе результатов приведенных экспериментов можно сделать предположение о процессах, происходящих в расплавах реальных ЛТСМ. Можно предположить, что в тех объемах ЛТСМ, которые имеют высокую пористость, во время их растекания происходили интенсивные процессы взаимодействия компонентов расплавов. Те объемы ЛТСМ, которые имеют незначительное количество пор, вероятно, находились длительное время при высокой температуре, когда основные процессы взаимодействия компонентов расплавов завершились.

Обобщение результатов экспериментов по влиянию температуры и времени выдержки материалов в состоянии расплава показывает следующее. При увеличении времени нахождения материала в расплавленном состоянии он приобретает все большую однородность. При времени выдержки 1000...3000 мин металлографически не выявляются непрореагировавшие частицы UO_2 и ZrO_2 , хотя рентгенографическим анализом в расплавах фиксируется наличие кристаллических структур окислов урана и циркония.

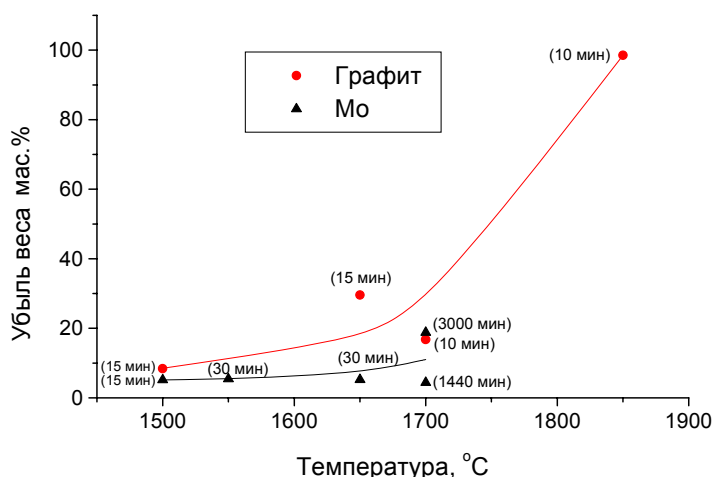


Рис. 20. Характер изменения убыли веса расплава в среде аргона в зависимости от температуры:

● – тигель из графита; ▲ – тигель из молибдена.

В скобках дано время пребывания расплава при данной температуре

3. ИССЛЕДОВАНИЕ ФИЗИЧЕСКИХ ХАРАКТЕРИСТИК ИМИТАТОРОВ ЛТСМ

3.1. Исследование теплопроводности

Для исследования теплопроводности использовали образцы в форме цилиндра (высота и диаметр – 10 мм), изготовленные из полученной керамики имитатора (см. табл. 1, состав №1).

Теплопроводность образца измерялась сравнительным методом (сравнение с эталоном) [12]. Принцип действия этого метода основан на сравнении теплопроводности образца исследуемого материала с известной теплопроводностью других образцов. Каждое измерение теплопроводности проводилось трижды в противоположно направленных тепловых потоках.

Коэффициент теплопроводности находили как среднее арифметическое этих измерений, и среднее значение составляет ~ 1,77 Вт/(м·град).

3.2. Измерение плотности

Проведено измерение плотности некоторых полученных образцов имитаторов ЛТСМ. Плотность определяли методом гидростатического взвешивания в дистиллированной воде в соответствии с ГОСТ-18898 (ИСО-2738-87).

Экспериментально полученные значения плотности для образцов (см. табл. 1, состав №1) составляют ~ 2,87 г/см³.

Для сравнения в табл. 3 приведены некоторые теплофизические характеристики использованных при проведении экспериментов материалов [13].

Таблица 3

Некоторые физические характеристики использованных материалов [13]

Материал	Плотность, г/см ³	Теплопроводность, Вт/(м·К)
Бетон в сухом состоянии на каменном щебне	2,0	1,3
Железобетон	2,4	1,6
Графит	1,6...1,75	32...38
Песок сухой	1,6	0,87
UO_2	10,97	8,2
ZrO_2	5,2...5,3	1,7

ВЫВОДЫ

1. Проведены исследования по изучению взаимодействия в процессе плавления материалов АЗ реактора РБМК с материалами строительных конструкций. Показано, что взаимодействие силикатных систем (песка строительного, бетона, серпентинита) с расплавом ZrO_2-UO_2 приводит к образованию коричневой или черной пористых стеклообразных керамик.

2. Установлено влияние углеродной среды на температуры плавления систем $Zr-UO_2$ и ZrO_2-UO_2 . Экспериментально показано, что для указанных систем температура плавления в присутствии углерода снижается на $\sim 250^\circ C$ и составляет $\sim 2350^\circ C$

3. В процессе плавления систем $Zr-UO_2$ и ZrO_2-UO_2 происходит интенсивное взаимодействие топливного материала с графитом, приводящее к большому (до 25 мас.%) потерям материала за счет уноса из зоны взаимодействия.

4. Исследовано влияние скорости охлаждения на процесс формирования ЛТСМ в вакууме. Показано, что при высоких ($\sim 50^\circ C/мин$) скоростях охлаждения образуется керамика с глянцевой поверхностью, при низких ($\sim 0,5$ и $\sim 4,5^\circ C/мин$) – с матовой, что достаточно хорошо согласуется с предположениями о разных скоростях остывания ЛТСМ в различных помещениях при аварии на ЧАЭС.

5. Изучено влияние времени отжига на процесс образования ТСМ. Показано, что при длительных отжигах в вакууме (~ 20 ч) при температуре $\sim 1500^\circ C$ происходит интенсивное (до 84 мас.%) испарение компонентов исходной шихты. Аналогичные результаты наблюдаются при низкой ($\sim 0,5^\circ C/мин$) скорости охлаждения (унос составляет до 80 мас.%).

6. Проведено изучение процесса формирования ЛТСМ в атмосфере воздуха при температуре $\sim 1500^\circ C$. Установлено следующее:

- при указанных режимах получения ЛТСМ образуется керамика с глянцевой наружной поверхностью;

- изучение внешнего вида и изломов полученных образцов показало, что керамика, образовавшаяся из шихты без диоксида урана, имеет светло-серый цвет;

- цвет керамики, содержащей в исходной шихте от 4 до 5 мас.% UO_2 , изменяется от светло-серого до серого;

- керамика, содержащая в исходной шихте ~ 9 мас.% порошка диоксида урана, имеет цветовой состав от светло-коричневого до коричневого;

- дальнейшее увеличение содержания порошка диоксида урана в исходной шихте до $\sim 14...7$ мас.% приводит к образованию керамики шоколадно-коричневого цвета;

- потеря веса при отжиге на воздухе не превышает $26...30$ мас.% от первоначального веса исходной шихты, что меньше (более чем в 2 раза), чем при отжиге в вакууме.

7. Проведено изучение процесса формирования ЛТСМ в атмосфере аргона при температуре $1500...1850^\circ C$. Установлено:

- что образование керамики происходит при температуре $\sim 1500^\circ C$ (как в вакууме, так и в воздухе);

- использование тигля из молибдена позволяет проводить синтез при длительных временах (до 50 ч), при этом убыль массы составляет $\sim 19\%$, что значительно меньше, чем при использовании графитовых тиглей (убыль массы составляет $\sim 70\%$).

8. Измерены теплофизические характеристики некоторых полученных образцов имитаторов ЛТСМ. Показано, что теплопроводность ЛТСМ находится на уровне $1,77...1,78$ Вт/(м·град), а плотность составляет $\sim 2,87$ г/см³.

9. На основе результатов проведенных экспериментов можно сделать предположение о процессах, происходящих в расплавах реальных ЛТСМ. Вероятно, что в тех объемах ЛТСМ, которые имеют высокую пористость, в процессе их растекания происходит интенсивное взаимодействие компонентов расплавов, а те ЛТСМ, имеющие малую пористость, находятся длительное время при высокой температуре, когда основные процессы взаимодействия компонентов расплавов завершились.

10. С целью уточнения сценариев и этапов развития аварии, подобных произошедшей на 4-м блоке Чернобыльской АЭС, следует продолжить исследования по уточнению роли металлического состояния циркониевого сплава, стали корпуса реактора и других компонентов АЗ в образовании ЛТСМ, а также изучить взаимодействие ЛТСМ с материалами конструкций реактора.

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. В.В. Гончар, А.В. Жидков. *Динамика высокотемпературного взаимодействия аварийного ядерного топлива с конструкционными материалами РБМК*. НТЦ «Укрытие» НАН Украины, Чернобыль.

2. А.Н. Киселев, К.П. Чечеров. Модель процесса разрушения реактора 4-го энергоблока Чернобыльской АЭС // *Атомная энергия*. 2001, т. 91, с. 425-434.

3. Э.М. Пазухин. Лавообразные топливосодержащие массы 4-го блока Чернобыльской АЭС: топография, физико-химические свойства, сценарий образования // *Радиохимия*. 1994, т. 36, в. 2, с. 97-142.

4. К.Е. Уикс, Ф.Е. Блок. *Термодинамические свойства 65 элементов, их окислов, карбидов и нитридов*. М.: «Металлургия», 1965.

5. *Высокотемпературные материалы*: Сборник XLIX / Под ред. чл.-корр. АН СССР В.П. Елютина. М.: «Металлургия», 1968.

6. Г.В. Самсонов, К.И. Портной. *Сплавы на основе тугоплавких соединений*. М.: «Оборонгиз», 1961.

7. В.С. Красноруцкий, И.А. Петельгузов, В.М. Грицина, В.К. Яковлев и др. Испытание макетов твэлов с оболочкой из сплава $ZrInb$ в парах

воды при температурах возможных аварийных перегревов в реакторе ВВЭР-1000 // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*. 2006, №4, с. 111-117.

8. В.С. Красноруцкий, В.К. Яковлев, Е.А. Слабоспицкая и др. Некоторые особенности взаимодействия расплавленного ядерного топлива с кремнийсодержащими материалами // *Труды 7-й Международной конференции Международного Чернобыльского центра, Славутич, 20-23 сентября 2005 г.*

9. В.В. Брык, А.В. Гончаров, Н.П. Дикий, И.М. Карнаухов, А.В. Мазилев, Д.Г. Мальхин, И.М. Неклюдов, Н.С. Поддубко, С.Ю. Саенко, А.Г. Толстолуцкий, Э.П. Шевякова, В.К. Яковлев. Исследования ННЦ ХФТИ в области преобразования объекта «Укрытие» в экологически безопасную систему. (Обзор) // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*. 2010, №1, с. 68-78.

10. В.С. Красноруцкий, В.К. Яковлев, А.П. Данилов, В.М. Евсеев, Р.В. Матющенко, Е.А. Слабоспицкая, Я.А. Куштым. Микроструктурный анализ лавоподобных топливосодержащих масс // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*. 2010, №1, с. 60-67.

11. В.С. Красноруцкий, В.К. Яковлев, Е.А. Слабоспицкая и др. Влияние условий образования имитаторов лавоподобных топливосодержащих масс (ЛТСМ) на некоторые их характеристики // *Труды 7-й Международной конференции Международного Чернобыльского центра, Славутич, 20-23 сентября 2005 г.*

12. J. Francl and W.D. Kingery. Бюро переводов ВИНТИ, перевод №37355/3 «Г». Теплопроводность (Часть IV). Прибор для определения теплопроводности сравнительным методом. // *Journal of the American Ceramic Society*. 1954, т. 37, ч. 2, №2, с. 80-84.

13. *Физические величины*: Справочник / Под ред. И.С. Григорьева, Е.З. Мейлихова. М.: «Энергоатомиздат», 1991.

Статья поступила в редакцию 14.04.2011 г.

ДОСЛІДЖЕННЯ ВЗАЄМОДІЇ ЯДЕРНОГО ПАЛИВА З КОНСТРУКЦІЙНИМИ МАТЕРІАЛАМИ АКТИВНОЇ ЗОНИ У РАЗІ ЗАПРОЄКТНОЇ АВАРІЇ

В.С. Красноруцкий, В.К. Яковлев, А.П. Данилов, О.О. Слабоспицкая, В.М. Евсеев, Р.В. Матющенко, О.Г. Толстолуцкий

Узагальнено результати досліджень з синтезу в лабораторних умовах лавоподібних паливовмісних мас (ЛПВМ) з метою уточнення температурних і часових параметрів протікання аварії з розплавленням активної зони на 4-му енергоблоці Чорнобильської АЕС. Визначено температурний інтервал плавлення паливного матеріалу ($UO_2 + ZrO_2$) за складом, близьким до того, що знаходиться в активній зоні реактора, а також температури утворення ЛПВМ, які за хімічним складом відповідають реальним ЛПВМ, що знаходяться в підреакторних приміщеннях 4-го блоку. Виміряно теплопровідність і щільність зразків ЛПВМ.

STUDY OF NUCLEAR FUEL INTERACTION WITH CORE CONSTRUCTION MATERIALS IN THE CASE OF THE ABOVE DESIGN ACCIDENT

V.S. Krasnorutskyy, V.K. Yakovlev, A.P. Danilov, E.A. Slabospitskaya, V.M. Evseev, R.V. Matyuschenko, A.G. Tolstolutsky

The paper summarizes the results of studies on the synthesis the lavalike fuel-containing mass (LFCM) in laboratory conditions with goal to clarify the temperature and time parameters of accident running with core meltdown on the Chernobyl Unit 4. The temperature interval of fuel material ($UO_2 + ZrO_2$) melting with composition very nearly for fuel material in the reactor core and LFCM formation temperature with artificial LFCM chemical composition and corresponding to real LFCM, which are located in rooms under reactor of Unit 4, is defined. Thermal conductivity and density of the LFCM samples was measured.