

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2025-1-104-112>  
УДК 621.039.58

## МЕТОДИКА ИССЛЕДОВАНИЯ ПРОЦЕССОВ СТАРЕНИЯ КОРИУМА

Ю. Ю. Бакланова<sup>1</sup>, О. С. Букина<sup>1,2\*</sup>, В. В. Бакланов<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Филиал «Институт атомной энергии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

<sup>2</sup> НАО «Университет имени Шакарима города Семей», Семей, Казахстан

\* E-mail для контактов: bukina@nnc.kz

На сегодняшний день исследования кориума представляют собой один из главных вопросов в рамках повышения ядерной безопасности и является одной из задач проведения успешной процедуры устранения последствий аварии с расплавлением активной зоны на АЭС. Одной из важных задач для процедуры устранения последствий аварии на АЭС является понимание физического состояния расплава активной зоны аварийного реактора (кориума) для принятия решений по его извлечению из контаймента и дальнейшему обращению с ним. Сложность оценки структуры и свойств кориума, которые претерпевают изменения в результате охлаждения водой и длительной выдержки в контайменте или ловушке расплава (процесса «старения» кориума), заключается в его высокой радиоактивности.

Кориум включает в себя элементы активной зоны (урановое топливо, циркониевая оболочка), элементы металлических конструкций, конструкционных материалов, бетона и прочее. Известно пять случаев запроектных аварий с образованием кориума: на реакторе АЭС «Three Mile Island-2» (США, 1979 г.), на Чернобыльской АЭС (Украина, 1986 г.) и три случая формирования кориума наблюдалось при аварии на АЭС «Fukushima - 1» (Япония, 2011 г.). Все эти инциденты показали актуальность как усовершенствования систем безопасности на ядерных установках, так и необходимость изучения свойств кориума для проведения работы с ним.

Ввиду высокой радиационной опасности, исследования свойств кориума проводятся на модельных образцах. Модельный кориум в филиале «Институт атомной энергии» РГП НЯЦ РК может быть получен как в лабораторных условиях, так и на экспериментальных стендах института. Свойства кориума различны и зависят от исходного состава шихты (компонентов, моделирующих активную зону и конструкционные материалы) и условий моделирования запроектной аварии (температуры плавления, принципа охлаждения расплава, наличия остаточного энерговыделения, способа удержания расплава и т.д.).

В статье приводятся результаты анализа современных достижений в области исследования кориума, а также методические рекомендации исследования процессов старения кориума, сформированные на основании опыта зарубежных специалистов (Япония, Российская Федерация) [1–4] и собственных многолетних наработок специалистов филиала «Институт атомной энергии» РГП НЯЦ РК.

Методические рекомендации, приведенные в данной статье, могут быть использованы непосредственно для исследования процесса изменения свойств кориума в различных условиях, а также для прогнозирования процесса старения на заданный срок выдержки его в контайменте реакторной установки или подреакторной ловушке расплава.

**Ключевые слова:** кориум, расплав, запроектная авария, структура, свойства, исследования.

### ВВЕДЕНИЕ

Исследования процесса изменения свойств кориума с течением времени (старения) являются основополагающими в вопросах обращения с ним при устранении последствий аварий с расплавлением активной зоны на АЭС [5].

Кориум – лавоподобный материал, образующийся во время тяжелых аварий на ядерном реакторе с расплавлением активной зоны [6, 7]. Кориум включает в себя элементы активной зоны (урановое топливо, циркониевая оболочка), элементы металлических конструкций, конструкционных материалов, бетона и прочее.

Кориум формировался за пределами научно-исследовательских лабораторий лишь пять раз: на реакторе (тип PWR) второго энергоблока АЭС «Three Mile Island» (ТМІ-2) в 1979 году (США), на реакторе РБМК-1000 (тип BWR) Чернобыльской АЭС и триж-

ды – при запроектной аварии на реакторе (тип BWR) АЭС «Fukushima-1» в 2011 году (Япония) [8]. Из пяти случаев формирования кориума только при аварии на Чернобыльской АЭС ядерная лава смогла вырваться за пределы реактора. Для случаев, когда расплав остался внутри контаймента, требуется решение разнообразных задач по определению характеристик кориума на момент извлечения. Возможность прогнозирования процесса старения кориума легководного реактора в различных условиях позволит получить данные для разработки процедур и инструментов для его извлечения, а также - для разработки процедур дальнейшего обращения с ним [5].

В филиале «Институт атомной энергии» (ИАЭ) РГП НЯЦ РК, в рамках научно-исследовательских и опытно-конструкторских работ (НИОКР) в области разработки систем пассивной безопасности для АЭС с водо-водяными реакторами (ВВР), были реализова-

ны проекты COTELS, COTELS-2, CORMIT, CORMIT-Ph2 [6, 7], «Fukushima Debris», INVECOR. Исследования проводятся с 1997 года и полученный в экспериментах модельный кориум имеет различный возраст, а наибольший составляет более 25 лет.

В настоящей статье обобщен опыт зарубежных ученых и специалистов филиала ИАЭ РГП НЯЦ РК, представлены методические рекомендации и порядок работы с кориумом в рамках материаловедческих исследований для изучения процесса изменений его свойств с течением времени. Результатом работы является список наиболее показательных характеристик кориума и алгоритм, их определения в лабораторных условиях [9].

## МЕТОДЫ

### Анализ опыта зарубежных исследований

Работы по изучению образцов кориума и расплава аварийной Чернобыльской АЭС ведутся в госкорпорации «Росатом» [8], специалисты таких компаний, как АО «НИКИЭТ» и АО «ИРМ» проводят работу по выбору сценариев извлечения и обращения с радиоактивными цеолитами, проводят первичную оценку безопасности их долгосрочного промежуточного хранения вместе с японскими коллегами [8].

Условия формирования кориума, образовавшегося в результате аварии на втором энергоблоке АЭС «Three Mile Island» (ТМІ-2) и АЭС «Fukushima Daiichi» весьма схожи [5, 10]. Данные, полученные от ТМІ-2 могут быть использованы для разработки системы различных вариантов набора характеристик кориума.

В результате аварий на ТМІ-2 и на АЭС «Fukushima Daiichi» произошло расплавление материалов активной зоны, включая топливные, конструкционные и поглощающие материалы и продукты деления (ПД), что привело к образованию кориума, процент содержания делящихся материалов в котором зависел от месторасположения отдельных его элементов в поврежденной активной зоне [10]. Для обоих случаев, одной из главных задач процедуры устранения последствий аварии являлось определение состава кориума для его эффективного извлечения из поврежденной активной зоны с дальнейшей утилизацией.

В [11] приводятся оценки аварии на ТМІ-2, включая исследование взаимодействия топлива и конструкционных материалов, анализ состава элементов кориума, дозиметрия, оценка структура поврежденной активной зоны реактора и другое. Ценными для данной работы являются данные по исследованию образцов кориума. При формировании системы вариантов модели кориума использовались данные по исследованию взаимодействия материалов АЗ реактора при сверхвысоких температурах [12], данные по граvimетрическим исследованиям образцов кориума в зависимости от места пробоотбора в активной зоне [12], а также сборные данные нескольких исследова-

ний образцов кориума с точки зрения металлургии и материаловедения из разрушенной активной зоны ТМІ-2 [13]. На основании данных о количественном содержании урана в частицах кориума, распределении отдельных частиц кориума по размеру, плотности и обогащению формируется представление о типе материала в нижней части корпуса реактора ТМІ-2. Эти данные могут быть использованы в качестве реперной точки для описания кориума, при учёте ряда факторов, отличающих данные параметры для кориума на АЭС «Fukushima Daiichi» и ТМІ-2. Для полноценного анализа параметров кориума ТМІ-2 и формирования более точного описания, необходимо учитывать различие параметров кориума в зависимости от его местоположения в поврежденной активной зоне.

Различие анализируемых параметров в зависимости от местоположения элементов кориума в активной зоне после аварии связано не только с разным уровнем температур в противоположных точках активной зоны, но и с особенностями протекания процесса формирования кориума на этапах расплавления, кристаллизации и растрескивания, что является выводами исследования [14–16].

В обзоре [5] проведен сбор характеристик и параметров элементов кориума, образовавшегося в результате аварии на АЭС «Fukushima Daiichi». На основе анализа результатов исследований образцов кориума, находящихся в открытом доступе, проведена компиляция набора характеристик и параметров, который может быть использован для дальнейшего моделирования кориума с высоким уровнем достоверности и детализации.

Из анализа результатов [17–20] сделаны следующие выводы [5]:

- около 50% элементов кориума состоят из  $UO_2$  (включая продукты деления);

- результаты 2/3 всех расчётов показывают, что около 10% элементов кориума представляет собой различные оксиды циркония, и ещё около 10% состоят из циркония в металлической форме, который был сформирован вследствие быстропротекающих и быстроизменяющихся переходных процессов;

- во всех проведенных расчётах относительное количество оксидов железа в кориуме невелико или почти ничтожно, в то время как процент содержания нержавеющей стали (SS) колеблется от 10% до 30%;

- согласно результатам исследования, в кориуме должно наблюдаться присутствие  $W_4C$ , но его количество представляет собой чрезвычайно низкое значение в процентном отношении.

Стоит отметить, что представленные результаты, полученные различными организациями, противоречат друг другу. В связи с этим, при разработке комплекса данных по кориуму необходимо учесть разногласные данные путем формирования системы различных вариантов набора характеристик кориума,

включающую в себя граничные случаи, наиболее отличающиеся друг от друга в ряде параметров.

Влияние условий хранения на характеристики модельных топливосодержащих материалов (кориума) исследовалось группой специалистов из АО «Техснабэкспорт», АО «Радиевый институт им. В. Г. Хлопина», АО «ГНЦ НИИАР» (Госкорпорация «Росатом») [5]. Были изготовлены образцы силикатсодержащих топливных обломков (на основе характеристик топливных обломков, образовавшихся после аварии на АЭС «Fukushima Daiichi») и исследовались их свойства в процессе старения в трех средах (в воздушной среде, в воде, в парах воды). Созданная в результате исследований математическая модель позволяет прогнозировать поведение материалов при извлечении, транспортировке и хранении с дискретным шагом в 10, 20, 30 и 50 лет.

Проведенные эксперименты показали [6, 21] что длительное хранение кориума под водой приводит к его частичному выщелачиванию, а также к вторичному фазообразованию в поверхностном слое. В дальнейшем, при извлечении и сушке, поверхность такого материала может превратиться в пыль. Выводы, полученные в результате проекта, позволят принять экспериментально обоснованные решения при последующем выборе технологии безопасного извлечения кориума из блоков станции.

В Радиевом институте им. Хлопина [21] исследовались твердые модельные образцы кориума, содержащие 40–70 масс.% компонентов бетона,  $(U,Zr)_xO_y$  и металлические добавки (Cr, Ni, Fe), которые были получены методом индукционной плавки в холодном тигле при температуре 2200–2500 °С. Исходная структура образцов представляла собой преимущественно аморфную матрицу на основе силиката, в которой диспергированы кристаллические твердые растворы  $(U,Zr)_xO_y$ , Fe-Cr-Ni шпинель и кристобалит ( $SiO_2$ ). Модельные образцы кориума подвергались испытаниям на выщелачивание с использованием деионизированной и азотированной воды с различными значениями pH = 4,01, 6,50 и 9,18, при температурах 25, 50, 90 и 120 °С и времени выдержки до 84 дней. Установлено, что растворение фазы на основе силиката начинается при температуре 25 °С в деионизированной и нитридной воде, образуя на поверхности вторичные фазы. И наоборот, такие элементы, как U и Zr, были обнаружены в растворе только через 54 дня выщелачивания при 120 °С.

Первоначальная характеристика включала:

- фазовый анализ (рентгеновский дифрактометр (XRD) D2 PHASER (Bruker, Германия) с  $CuK\alpha$  излучением);
- изучение морфологии, микроструктуры, а также элементного анализа (сканирующая электронная микроскопия (СЭМ) в сочетании с энергодисперсионной рентгеновской спектроскопией (ЭДС) с использованием сканирующего электронного микроскопа MIRA3 TESCAN);

- измерения плотности и пористости проводились методом гидростатического взвешивания с использованием аналитических весов OHAUS Explorer E12140;

- определение твердости по микро-Виккерсу (микротвердомер Тиниуса Олсена при нагрузке 9,8 Н, времени нагружения 10 с) на основании 10–15 измерений отпечатков индентирования;

- анализ выщелачивающих растворов (метод оптической эмиссионной спектроскопии с индуктивно-связанной плазмой ICP-EOS (Perkin Elmer), PlasmaQwont мод. PQ 9000) при минимально обнаруживаемой концентрации элементов (U, Zr, Si, Al, Fe, Ca, Ni, Cr) – 10 мкг/дм<sup>3</sup>.

#### **Характеристики кориума для определения процессов старения**

На основании анализа опыта зарубежных ученых выбраны наиболее показательные характеристики кориума, которые, могут характеризовать процессы старения:

- размер и плотность частиц кориума – показатели охрупчивания материала со временем;
- изменения элементного анализа материала по фракциям;
- изменения фазового анализа материала по фракциям;
- твердость крупных частиц кориума – твердость по Виккерсу, которая увеличивается при повышении концентрации  $UO_2$  в составе материала;
- определение активности порошковых материалов.

В зависимости от имеющихся первичных данных по кориуму (результаты материаловедческих исследований, проведенных после экспериментов 10–30 лет назад) произвести сравнение вышеуказанных характеристик.

#### **Описание объекта исследования**

Образцы кориума для исследования старения могут быть объединены, например, по следующим признакам:

- 1) по составу исходной шихты и методам охлаждения;
- 2) по составу исходной шихты и типу аварий, моделируемых в экспериментах: внутрикорпусные (использование стальной ловушки расплава, имитирующую днище реактора), внекорпусные (использование бетонной ловушки расплава) и внекорпусные с использованием дополнительных материалов (металлические элементы, жаропрочные материалы, жертвенные материалы в бетонной ловушке и пр.);
- 3) по составу исходной шихты и способу имитации энерговыделения (использование плазмотрона или индуктора в ловушке расплава).

Для разных типов исследования образцы могут представлять собой и габаритные куски кориума, и порошковый материал, и подготовленные шлифы.

**РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ****Обозначение объекта исследования**

Состав модельных расплавов соответствуют кориуму легководных реакторов и в большинстве своем имеют исходный состав шихты:  $UO_2$ , Zr,  $ZrO_2$ , SS,  $V_4C$ . В результате моделирования процессов тяжелых аварий на ВВР, в зависимости от целей проекта, исходный состав претерпевает изменения за счет варьирования таких параметров эксперимента как количество переданного расплаву тепла, остаточного энерговыделения в расплаве, способа охлаждения расплава, моделей ловушек, защитных материалов или силового корпуса, имитирующих условия удержания расплава. Получаемая в экспериментах информация, в большинстве своем, многовариантна, но в силу качественной общности решаемых задач, она имеет ряд общих признаков, определяющих возможность систематизации и обобщения результатов отдельных экспериментов и их серий.

В первую очередь, реализованные по данной тематике проекты, были разделены по типам моделирования условий протекания аварии: внутрикорпусные (COTELS-1, INVECOR, «Fukushima Debris») и внекорпусные (COTELS-2, CORMIT, CORMIT-Ph2).

В экспериментах COTELS-1 модель расплава активной зоны ближе к расплаву типа BWR. Базовый состав модельного расплава в проекте INVECOR соответствовал весовому соотношению  $UO_2/Zr_{общ.}$  как 78% к 22%, или в полностью окисленном виде  $UO_2/ZrO_{2общ.}$  – 72,4% к 27,6%. Степень окисления циркония, определяемая как мольное отношение  $ZrO_2/Zr_{общ.}$  составляло 0,32.

Плановые загрузочные составы в экспериментах COTELS-2 соответствовали кориуму запроектной аварии на втором блоке американской АЭС «Three Mile Island» (ТМІ-2). В сериях экспериментов моделировались процессы, характеризующие взаимодействие расплава кориума с бассейном теплоносителя и процессы, происходящие при выходе расплава к бетонным конструкциям реакторного здания.

Расплавы, полученные в проектах CORMIT и CORMIT-Ph2 близки к модельному кориуму, использованному в проекте «Fukushima Debris». Состав расплавляемой композиции в проекте «Fukushima Debris» наиболее соответствует составу кориума ВВР (63%  $UO_2$ , 6%  $ZrO_2$ , 22% циркония и 9% нержавеющей стали).

Без учета стали соотношение в системе состав  $UO_2-ZrO_2$  рабочего состава кориума CORMIT также соответствовало составу большей части экспериментов COTELS. Это связано с тем, что в итоговых интегральных экспериментах выполнялось сравнение условий удержания кориума в бетонной ловушке без защитного материала и с кладкой жаропрочных керамических блоков на основе диоксида циркония (CORMIT-Ph2). Мольное отношение  $ZrO_2/Zr_{общ.}$

шихты для получения расплавов составляли 0,13 для CORMIT, 1,0 и 0,13 – в COTELS.

Таким образом, объектом исследования процесса старения кориума может являться имитатор расплава активной зоны ВВР (модельный кориум), полученный в экспериментах по отработке систем пассивной безопасности реакторной установки. По типам модельный кориум можно разделить на три группы: 1) кориум, полученный при моделировании внутрикорпусных аварий на реакторной установке в разный период времени (2005, 2010, 2015 гг.); 2) кориум, полученный в экспериментах по моделированию внекорпусных аварий в разный период времени (1997, 2002, 2014 гг.); 3) кориум, полученный в экспериментах по моделированию внекорпусных аварий с использованием жаропрочных блоков (2014 и 2019 гг.). Во всех экспериментах использовалось водяное охлаждение имитатора расплава.

Основой для выбора того или иного модельного кориума будет являться наличие фактически имеющихся данных на период его получения с целью их сравнения со свойствами за время длительного хранения.

**Методика исследования характеристик кориума**

На основании изучения опыта зарубежных исследователей [1–5, 10–19] и анализа имеющихся данных по свойствам модельного кориума, была разработана методология исследований для составления прогнозной оценки механизма изменения структурно-фазового состояния кориума в результате длительной выдержки или «старения».

Для оценки текущего состояния модельного кориума необходимо выполнить ряд исследований. Процесс изучения свойств кориума осуществляется по алгоритму, приведенному в таблице 1.

Старение кориума может происходить в естественных условиях сухого хранения, а также при воздействии воды, паров воды, повышенной температуры и прочих условий.

Для определения характеристик модельного кориума, которые играют наиболее важную роль в процессе старения кориума был проведен анализ существующих методов исследования этого процесса [17–18, 20–22]. Результаты аналитического исследования показали, что для оценки структурно-фазовых изменений кориума используются:

- данные по изменению плотности и пористости, механических свойств кориума – для рекомендаций по подбору оборудования для обращения с кориумом;
- данные об активностях, элементном и фазовом составе – для рекомендаций по длительному хранению кориума;
- данные о выщелачивании кориума в процессе старения – для оценки безопасности и прогнозирования свойств.

**МЕТОДИКА ИССЛЕДОВАНИЯ ПРОЦЕССОВ СТАРЕНИЯ КОРИУМА**

*Таблица 1. Алгоритм определения характеристик кориума*

| № п/п | Описание процедуры   | Оборудование и материалы, метод  |
|-------|--|--|
| 1     | Подготовка образцов:<br>– взвешивание и маркировка образцов<br>– разделение материала для разных видов исследований (оптическая металлография, фракционирование, элементный, фазовый анализ, определение плотности и пористости и пр.).  | – аналитические весы;<br>– индивидуальные упаковки   |
| 2     | Определение плотности и пористости кориума:<br>– средней и истинной плотности;<br>– открытой и закрытой пористости образцов кориума.   | – аналитические весы;<br>– метод гидростатического взвешивания (ГОСТ 26450.1-85, ГОСТ 30629-99)  |
| 3     | Определение микротвердости   | – микротвердомеры;<br>– оптический метод (определение твердости по Виккерсу HV)  |
| 4     | Определение структуры модельного кориума:<br>– подготовка образцов для оптической металлографии;<br>– проведение оптической металлографии образцов слитка кориума  | – шлифовально-полировальный станок;<br>– шлифовальная бумага зернистостью 120 до 2000;<br>– сукно для полирования;<br>– алмазная суспензия с размером частиц 9, 6 и 1 мкм;<br>– металлографический микроскоп;<br>– метод оптической микроскопии. |
| 5     | Определение фракционного состава материала:<br>– рассев материала через сита с помощью грохота;<br>– разделение материала по фракциям от 20 мм до 50 мкм;<br>– определение массы каждой фракции;<br>– определение массы материала, оставшегося на ситах  | – вибрационный грохот;<br>– ситовой метод (набор сит с размером ячеек от 20 мм до 50 мкм);<br>– метод фракционирования   |
| 6     | Проведение элементного анализа образцов кориума (по фракциям):<br>– пробоподготовка материала каждой фракции для исследования, измельчение крупной фракции до размера частиц ≈50 мкм), смешивание порошкового материала кориума со связующим материалом, прессование таблетки<br>– элементный анализ | – связующий материал (спектромел $C_2H_{10}O_5$ );<br>– гидравлический пресс;<br>– спектрометр;<br>– метод рентгеновской флуоресценции   |
| 7     | Исследование фазового состава:<br>– пробоподготовка материала каждой фракции для исследования, измельчение крупной фракции до размера частиц ≈50 мкм);<br>– съемка и анализ дифрактограмм  | – вибрационный грохот;<br>– рентгеновский дифрактометр;<br>– метод дифрактометрии  |

*Таблица 2. Схема исследований процессов старения кориума*

| Тип исследования                | Тип старения |                       |       |              |
|---------------------------------|--------------|-----------------------|-------|--------------|
|                                 | естественное | искусственное*        |       |              |
|                                 |              | возраст / воздействие |       |              |
|                                 |              | воздушная среда       | 0 лет | 0 лет / вода |
| Фракционирование                | +            | +                     | +     | +            |
| Определение плотности частиц    | +            | +                     | +     | +            |
| Элементный анализ               | +            | +                     | +     | +            |
| Фазовый анализ                  | +            | +                     | +     | +            |
| Твердость крупных частиц        | +/-          | +/-                   | +/-   | +/-          |
| Анализ активности               | +/-          | +/-                   | +/-   | +/-          |
| Анализ выщелачивающих растворов | -            | -                     | +     | -            |
| Другие                          | +            | +                     | +     | +            |

*Примечание:*

\* – Для реализации искусственного старения можно получить модельный кориум при заданных условиях (состав шихты, температура плавления шихты и пр.) в рамках маломасштабных экспериментов на стенде ВЧГ-135 с имитацией выдержки его в воде или в среде водяного пара, результатом которого будет кориум с тем же составом, что и кориум, хранившийся в воздушной среде.

На основании выполненного анализа, предложена схема исследований, приведенная в таблице 2, которая позволит выполнить наиболее полную оценку процессов изменения свойств кориума при длительной выдержке в определенных условиях.

Метрологические аспекты исследований включают требования к оборудованию – используемое оборудование должно быть поверено или иметь сертификат соответствия, подтверждающий определяемые характеристики.

**Методика исследования процесса старения кориума в естественных условиях сухого хранения**

На первом этапе работ выполняется отбор образцов кориума, схожего по составу исходной шихты, которая применяется для получения имитатора расплава активной зоны водо-водяных реакторов – PWR или BWR. Затем кориум группируется, согласно типу моделируемой аварии: внутрикорпусная (проекты COTELS-1, INVECOR, «Fukushima Debris») или внекорпусная (проекты COTELS-2, CORMIT, CORMIT-Ph2). Предпочтения отдаются образцам модельного кориума с наиболее полным набором характеристик, полученным в период его производства, при этом соблюдается (по возможности) определенная периоди-

чность его формирования, которая может составлять 3, 5 или 10 лет, как было показано ранее.

После отбора (извлечения из хранилища) материала кориума соответствующего состава рекомендуется провести исследования согласно алгоритму, представленному в таблице 1.

Анализ изменения структурно-фазового состояния кориума одного типа проводится на основе сравнения идентичных характеристик, полученных в год его формирования и в год проведения исследований. По совокупности полученных данных, охватывающих длительный период сухого хранения, могут быть построены прогнозные оценки динамики старения материала на 20, 30 и 50 лет.

Кроме того, необходимо учитывать температуру среды при старении кориума в естественных условиях. Градиент температуры, вероятно, также вносит вклад в характеристики кориума, но вопрос влияния температуры хранения на свойства кориума в настоящей статье не рассматривается.

#### Методика исследования процесса старения кориума при выдержке в водной среде

Изменения свойств кориума при воздействии паров воды и кислорода, высоких температур и различных режимов нагрева могут быть изучены в рамках второй серии исследований – искусственного старения кориума.

Для проведения этой серии экспериментов необходимо получить кориум возрастом «0 лет». Условия получения кориума:

- соотношение материалов шихты для эксперимента должно соответствовать соотношению материалов выбранного прототипа кориума ВВР;
- температура нагрева, время выдержки также должны быть сопоставимы.

Для дальнейших исследований полученный модельный кориум делится на две части (в результате диаметрального разреза плавильного объема) и одна из частей образца изучается в соответствии с алгоритмом, представленным в таблице 1.

Вторая часть модельного кориума испытывается путем выдержки в воде, в процессе которой исследуется скорость выщелачивания элементов для оценки изменения фазового состояния материала. Создание условий для искусственного старения кориума в водной среде заключается в обеспечении более «агрессивных» условий испытаний, например, использование повышенной температуры среды и порошковых. Согласно примеру, приведенному в работе [18], предлагается проводить выдержку образцов модельного кориума в «чистой» водной среде при  $T = 50\text{ }^{\circ}\text{C}$  и нейтральном рН.

В соответствии со стандартом ASTM 1220-98 [24] образцы известного объема и геометрической площади поверхности погружаются в эталонные растворы для выщелачивания без перемешивания на определенные периоды времени при определенных температурах (рекомендуются 40, 70 и 90 °С). Отношение площади поверхности к объему (S/V) поддерживается постоянным в пределах 0,5 от 10,0 м<sup>-1</sup>. Масса и активность кориума определяется до начала эксперимента. Испытания на выщелачивание проводится в соответствии со стандартом [24].

Для поддержания постоянной температуры воды может использоваться климатическая камера, которая обеспечит данный температурный режим на заданный период времени.

Порядок проведения эксперимента по выщелачиванию представлен на рисунке 1. После эксперимента проводятся исследования элементного и фазового составов, фракционный анализ и анализ структуры материала, по результатам которых оценивается изменение характеристик кориума при длительном воздействии воды.

#### Методика исследования процесса старения кориума при выдержке в среде водяного пара

Эксперимент проводится в ёмкости с кипящей водой. Образцы должны соответствовать требованиям [24] – отношение площади поверхности к объему (S/V) в пределах 0,5 от 10,0 м<sup>-1</sup>. Схема проведения эксперимента представлена на рисунке 2.

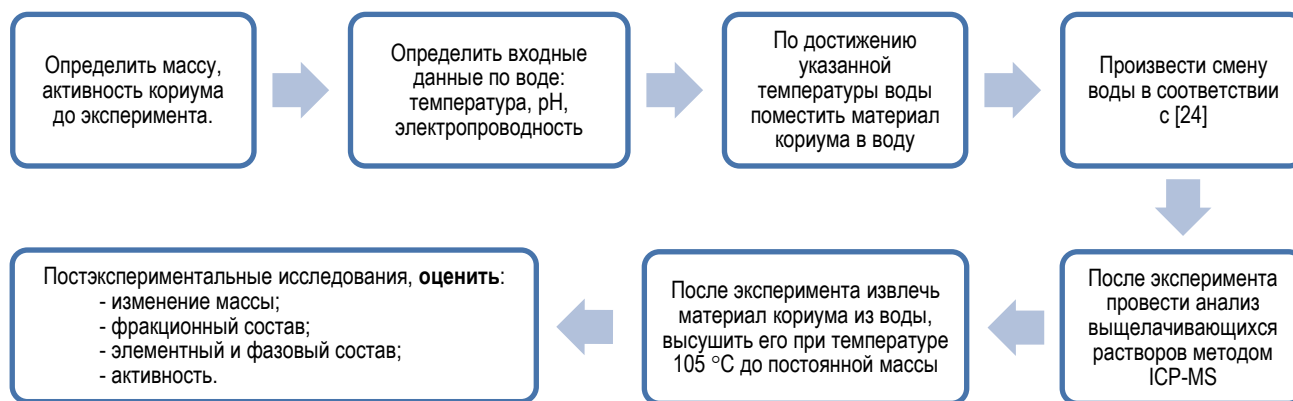


Рисунок 1. Схема проведения эксперимента по выщелачиванию кориума в условиях выдержки в воде

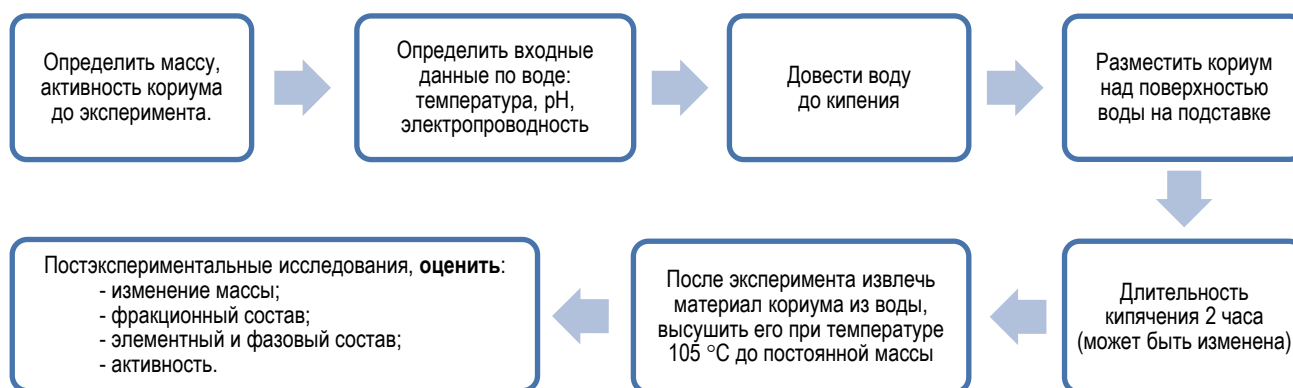


Рисунок 2. Схема проведения эксперимента по выщелачиванию кориума в парах воды

По данным, полученным в постэкспериментальных исследованиях кориума, может быть сформировано представление о динамике изменений свойств кориума в среде водяного пара. В набор данных для характеристики кориума входят сведения о количественном содержании урана в частицах кориума, распределении отдельных частиц кориума по объему образца, плотности и обогащению.

#### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате анализа научно-технической информации по теме исследования и обобщения имеющегося опыта в филиале ИАЭ РГП НЯЦ РК, была разработана методика исследования процессов изменения структурно-фазового состояния кориума.

В работе предложен общий алгоритм исследования свойств кориума, а также матрицы исследований процесса старения в естественных условиях, при длительном сухом хранении и условия создания искусственного старения в водной среде и среде водяного пара.

Определены признаки для выбора объекта исследования и базовые условия для создания модельного кориума.

В методиках предложены способ пробоподготовки, тип аналитического оборудования и метод для каждого вида исследований модельного кориума.

Структурно-фазовые изменения кориума могут быть применены при разработке способов обращения, разработке рекомендаций по длительному хранению, для оценки безопасности и прогнозирования свойств кориума.

#### Финансирование

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства энергетики Республики Казахстан (BR24792713 «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан»).

#### ЛИТЕРАТУРА / REFERENCES

1. J.R. Wolf, J.L. Rempe. TMI-2 Vessel Investigation Project Integration Report. Idaho National Engineering Laboratory, TMI V(93)EG10, October 1993.

2. Asmolv V.G. et al. RASPLAV Final Report. Attachment C Properties Studies: Methodology and Results // OECD RASPLAV Project, Russian Research Centre “Kurchatov Institute”, Moscow, 2000.
3. Barachin M. Thermodynamics of Corium: Phase diagrams, Databases // EURO COURSE 2003, Corium: Severe Accident R&D and Nuclear Power Plant Safety, Aix en Provence, France, January 27–31, 2003.
4. Nakahara, Y. Technical development on burn-up credit for spent LWR fuels JAERITECH 2000-071 / Y. Nakahara, K. Suyama, T. Suzuki. – Ibaraki: Japan Atomic Energy Research Institute, 2000. – 394 p.
5. Рыжов С.Н., Богданова Е.В., Рыжков А.А., Пугачев П.А., Тихомиров Г.В., Терновых М.Ю., Алеева Т.Б. Анализ методов и технологий оценки состава кориума, образовавшегося в результате аварии на АЭС «Fukushima Daiichi» // Глобальная Ядерная Безопасность. – 2022. – № 3. – С. 5–21. [Ryzhov S.N., Bogdanova E.V., Ryzhkov A.A., Pugachev P.A., Tikhomirov G.V., Ternovykh M.Yu., Aleeva T.B. Analiz metodov i tekhnologiy otsenki sostava koriuma, obrazovavshegosya v rezul'tate avarii na AES «Fukushima Daiichi» // Global'naya Yadernaya Bezopasnost'. – 2022. – No. 3. – P. 5–21. (In Russ.)] <https://doi.org/10.26583/gns-2022-03-01>
6. Российские учёные завершили проект по прогнозированию свойств кориума АЭС «Fukushima Daiichi» // Научно-деловой портал «Атомная энергия 2.0». [Rossiyskie uchenye zavershili proekt po prognozirovaniyu svoystv koriuma AES “Fukushima Daiichi” // Nauchno-delovoy portal “Atomnaya energiya 2.0”. (In Russ.)] URL: <https://www.atomic-energy.ru/news/2021/08/02/116094> (дата обращения: 20.07.2024).
7. Нейтронно-физическое моделирование подкритической системы с частицами кориума и водой из международного бенчмарка / А.Д. Смирнов, Е.В. Богданова, П.А. Пугачев [и др.] // Известия высших учебных заведений. Ядерная энергетика. – 2020. – № 2. – С. 135–145. [Neytronno-fizicheskoe modelirovanie podkriticheskoy sistemy s chastitsami koriuma i vodoy iz mezhdunarodnogo benchmarka / A.D. Smirnov, E.V. Bogdanova, P.A. Pugachev [i dr.] // Izvestiya vysshikh uchebnykh zavedeniy. Yadernaya energetika. – 2020. – No. 2. – P. 135–145. (In Russ.)] <https://doi.org/10.26583/npe.2020.2.12>
8. Технологические и организационные аспекты обращения с радиоактивными отходами // IAEA-TCS-27, Вена, 2005. [Tekhnologicheskie i organizatsionnye aspekty ob-

- rashcheniya s radioaktivnymi otkhodami// IAEA-TCS-27, Vena, 2005. (In Russ.)]
9. Методические рекомендации «Исследования процессов старения криума». Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК, г. Курчатова. – 2024. – 19 с. [Metodicheskie rekomendatsii «Issledovaniya protsessov stareniya kriuma». Filial IAE RGP NYaTs RK, g. Kurchatov. – 2024. – 19 p. (In Russ.)]
  10. Rogovin, M. Three Mile Island. A report to the commissioners and to the public. Nuclear regulatory commission special inquiry group / Mitchell Rogovin. – University of Michigan Library. – 1980. – 488 p.
  11. Akers, D.W. TMI-2 Examination Results from the OECD/CSNI program. / D.W. Akers, G. Bart, P. Botoomley, A. Brown, D.S. Cox, P. Hoffman, S.M. Jensen, H. Kleykamp, A.J. Manley, L.A. Neimark, M. Trotabas. – Idaho National Engineering Laboratory, Inc. – 1992. – 494 p.
  12. Reactor core materials interaction at very high temperatures / P. Hofmann, S.J. Hagen, G. Schanz, A. Skokan // Nuclear Technology. – 1989. – Vol. 87, No. 1. – P. 146–186.
  13. Akers, D.W. Lower vessel Debris Examination result. – 1989. – 18 p.
  14. TMI-2 core materials examination at CEA // International Atomic Energy Agency (IAEA) URL: [https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/\\_Public/21/040/21040489.pdf?r=1](https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/21/040/21040489.pdf?r=1) (дата обращения: 20.07.2024).
  15. Bottomley, D.W. Final report of the metallurgical examination of samples extracted from the damaged TMI-2 reactor core / D.W. Bottomley, M. Coquerelle. – Joint Research Centre. – 1990. – 16 p.
  16. In-Vessel Retention of Molten Corium: Lessons Learned and Outstanding Issues / J.L. Rempe, K.Y. Suh, F.B. Cheung, S.B. Kim // Nuclear Technology. – 2017 – Vol. 161. – No. 3. – P. 210–267.
  17. Benchmark study of the accident at the Fukushima Daiichi NPS: Best-estimate case comparison / M. Pellegrini, K. Dolganov, L. E. Herranz [et al.] // Nuclear Technology. – 2016. – Vol. 196. – No. 2. – P. 198–210. – <https://doi.org/10.13182/NT16-63>
  18. Nishihara, K. Estimation of fuel compositions in Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant JAEA-Data/Code 2012-018 / K. Nishihara, H. Iwamoto, K. Suyama. – Ibaraki: Japan Atomic Energy Agency, 2012. – 190 p.
  19. Development of Molten Core Relocation Analysis Module MCRA in the Severe Accident Analysis Code SAMPSON / H. Ujita, N. Satoh, M. Naitoh, M. Hidaka, N. Shirakawa, M. Yamagishi // Journal of Nuclear Science and Technology. – 2000. – Vol. 37. – No. 3. – P. 225–236 p.
  20. TEPCO Report. Establishing permit application of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station; unit 2. – Tokyo: TEPCO, 2003. – 509 p.
  21. NEA OECD, Benchmark Study of the Accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Summary Report. NEA/CSNI/R(2015)18. – NEA OECD, 2015. – 53 p.
  22. P. V. Slastikhina, A. S. Aloy, V. I. Almjashhev, V. B. Khabensky, N. F. Karpovich, et al. (2022) Study of the Main Properties and Leach Behavior of Simulated MCCI Products. *Enviro Sci Poll Res and Mang: ESPRM-120*.
  23. V.G. Rumynin, K.B. Rozov, A.M. Nikulenkov, L.N. Sindalovskiy, A.S. Aloy, N.F. Karpovich, P.V. Slastikhina, Analytical models for predicting the behavior of the Fukushima fuel debris during laboratory tests and long-term storage // *Journal of Nuclear Materials*. – 2022. – Vol. 568. – P. 153895. ISSN 0022-3115, <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2022.153895>
  24. ASTM C 1220 - 98 “Standard test method for static leaching of monolithic waste forms for disposal of radioactive waste” 10.07.1998. American society for testing and materials. Reprinted from the Annual Book of ASTM Standarts. – 1998.

## КОРИУМНЫҢ ЕСКІРУ ПРОЦЕСТЕРІН ЗЕРТТЕУ ӘДІСТЕМЕСІ

**Ю. Ю. Бакланова<sup>1</sup>, О. С. Букина<sup>1,2\*</sup>, В. В. Бакланов<sup>1</sup>**

<sup>1</sup> ҚР ҰЯО РМК «Атом энергиясы институты» филиалы, Курчатова, Қазақстан

<sup>2</sup> «Семей қаласының Шәкәрім атындағы университеті» КЕ АҚ, Семей, Қазақстан

\* Байланыс үшін E-mail: [bukina@nnc.kz](mailto:bukina@nnc.kz)

Бүгінгі таңда кориумды зерттеу ядролық қауіпсіздікті арттыру аясындағы басты мәселелердің бірі болып табылады және АЭС-тегі белсенді аймақты балқытумен апаттың салдарын жоюдың табысты рәсімін жүргізу міндеттерінің бірі болып табылады. АЭС-тегі аварияның салдарларын жою рәсімі үшін маңызды міндеттердің бірі оны контайменттен алу және онымен одан әрі жұмыс істеу жөнінде шешімдер қабылдау үшін авариялық реактордың (кориумның) белсенді аймағы балқымасының физикалық жай-күйін түсіну болып табылады. Кориумның құрылымы мен қасиеттерін бағалаудың күрделілігі, оны сумен салқындату және ерітіндінің контайментінде немесе тұзағында ұзақ уақыт ұстау нәтижесінде өзгеріске ұшырайды (кориумның «ескіру» процесі), оның жоғары радиоактивтілігіне байланысты.

Кориум өзіне белсенді аймақтың элементтерін (уран отыны, цирконий қабығы), металл конструкциялардың, конструкциялық материалдардың, бетонның және т.б. элементтерін қамтиды. Кориумның пайда болуымен жобадан тыс авариялардың бес жағдайы белгілі: «Three Mile Island-2» АЭС реакторында (АҚШ, 1979 ж.), Чернобыль АЭС-інде (Украина, 1986 ж.) және «Fukushima-1» АЭС-дағы (Жапония, 2011 ж.) авария кезінде кориумның қалыптасуының үш жағдайы байқалды. Бұл оқыс оқиғалардың барлығы ядролық қондырғылардағы қауіпсіздік жүйелерін жетілдірудің өзектілігін де, онымен жұмыс жүргізу үшін кориумның қасиеттерін зерделеу қажеттігін де көрсетті.

Жоғары радиациялық қауіптілікке байланысты кориумның қасиеттерін зерттеу модельдік үлгілерде жүргізіледі. ҚР ҰЯО РМК «Атом энергиясы институты» филиалындағы модельдік кориум зертханалық жағдайларда да,



институттың эксперименттік стенділерінде де алынуы мүмкін. Кориумның қасиеттері әртүрлі және шихтаның бастапқы құрамына (белсенді аймақты және конструкциялық материалдарды үлгілейтін компоненттерге) және жобадан тыс аварияны үлгілеу жағдайларына (балқу температурасы, балқыманы салқындату принципі, қалдық энергия бөлудің болуы, балқыманы ұстап тұру тәсілі және т.б.) байланысты болады.

Мақалада кориумды зерттеу саласындағы қазіргі заманғы жетістіктерді талдау нәтижелері, сондай-ақ шетелдік мамандардың тәжірибесі (Жапония, Ресей Федерациясы) [1–4] және ҚР ҰЯО РМК Атом энергиясы институты филиалы мамандарының өздерінің көп жылдық әзірлемелері негізінде қалыптасқан кориумның ескіру процестерін зерттеудің әдістемелік ұсынымдары келтіріледі.

Осы мақалада келтірілген әдістемелік ұсынымдар әртүрлі жағдайларда кориум қасиеттерінің өзгеру процесін тікелей зерттеу үшін, сондай-ақ оны реакторлық қондырғы контайментінде немесе балқыманың реакторлық тұзағында ұстау мерзімінде ескіру процесін болжау үшін пайдаланылуы мүмкін.

**Түйін сөздер:** кориум, балқыма, жобадан тыс апат, құрылым, қасиеттер, зерттеулер.

## METHODOLOGY FOR THE STUDY OF CORIUM AGING PROCESSES

**Yu. Yu. Baklanova<sup>1</sup>, O. S. Bukina<sup>1,2\*</sup>, V. V. Baklanov<sup>1</sup>**

<sup>1</sup> Branch “Institute of Atomic Energy” RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

<sup>2</sup> NP JSC “Shakarim University, Semey”, Semey, Kazakhstan,

\* E-mail for contacts: bukina@nnc.kz

To date, the corium research is one of the main issues in the framework of improving nuclear safety and is one of the tasks of conducting a successful procedure to eliminate the consequences of an accident with a core meltdown at the NPP. One of the important tasks for the procedure of eliminating the consequences of an accident at the NPP is to understand the physical state of the core melt of an emergency reactor (corium) in order to make decisions on its removal from the contents and further handling. The difficulty in assessing the structure and properties of the corium, which undergo the changes as a result of cooling with water and prolonged exposure in a melt content or trap (the process of corium “aging”), is in its high radioactivity.

Corium includes elements of the core (uranium fuel, zirconium cladding), elements of metal structures, structural materials, concrete, etc. There are five known cases of non-design accidents with the formation of corium: at the reactor of the Three Mile Island-2 NPP (USA, 1979), at the Chernobyl NPP (Ukraine, 1986) and three cases of corium formation were observed during the accident at the Fukushima -1 NPP (Japan, 2011). All these incidents have shown the relevance of improving safety systems at nuclear installations, as well as the need to study the properties of corium in order to work with it.

Due to the high radiation hazard, the studies of the corium properties are carried out on model samples. The model corium in the “Institute of Atomic Energy” Branch of RSE NNC RK can be obtained both under laboratory conditions and at the experimental benches of the Institute. The corium properties are different and depend on the initial composition of the charge (components modeling the core and structural materials) and the conditions for modeling an out-of-design accident (melting temperature, the principle of the melt cooling, the presence of residual power density, the method of retaining the melt, etc.).

The paper presents the results of the analysis of modern achievements in the field of corium study, as well as methodological recommendations for the study of corium aging processes based on the experience of foreign specialists (Japan, Russian Federation) [1–4] and own long-term developments of the specialists of the branch “Institute of Atomic Energy” RSE NNC RK.

The methodological recommendations given in this paper can be used directly to study the process of changing the corium properties under various conditions, as well as to predict the aging process for a given period of its exposure in the content of a reactor installation or a subreactor melt trap.

**Keywords:** corium, melt, out-of-design accident, structure, properties, studies.