

dc_1019_15

Atomerőművi fűtőelemek integritása üzemzavarok és balesetek során

MTA doktori értekezés

Hózer Zoltán

MTA Energiatudományi Kutatóközpont

2015

1. Bevezetés	4
1.1. A burkolat integritásának elvesztése normál üzemelés során.....	4
1.2. A burkolat integritásának elvesztése üzemzavarok és balesetek során.....	5
1.2.1. Hűtőközegvesztéses üzemzavarok	5
1.2.2. Reaktivitás üzemzavarok	6
1.2.3. Súlyos balesetek.....	7
1.3. A hazai kísérletes fűtőelem-kutatási programok motivációja.....	8
1.4. Célkitűzések	9
1.4.1. Általános célkitűzések	9
1.4.2. Konkrét célkitűzések.....	10
2. A burkolat felhasadása	11
2.1. A kísérletek fő paraméterei	11
2.2. A kísérleti berendezés és a mintadarabok előkészítése.....	13
2.3. A mérések végrehajtása	14
2.4. A felfűvódásos mérések fő eredményei.....	16
2.4.1. A hőmérséklet és a felhasadási nyomás kapcsolata	16
2.4.2. A Zircaloy-4, az E110 és az E110G burkolatok felhasadása	17
2.4.3. Az előoxidáció és az oxidáló atmoszféra hatása	18
2.4.4. A nyomásnövelés ütemének hatása.....	20
2.4.5. A hőmérséklet-emelkedés ütemének hatása.....	21
2.4.6. A felfűvódott köteg elzáródása	22
2.4.7. A távtartórács hatása	23
3. A burkolat rideg sérülése, a képlékeny-rideg átmenet	25
3.1. A kísérletek fő paraméterei	26
3.2. Kísérleti módszerek: oxidáció és mechanikai vizsgálatok	27
3.3. A mérések eredményei.....	28
3.3.1. Az oxidáció mértéke	28
3.3.2. Az E110, az E110G és a Zircaloy-4 ötvözetek jellemző viselkedése	30
3.3.3. A gyűrűtörés hőmérséklete	31
3.3.4. Az oxidáló atmoszféra összetétele	31
3.4. A kísérleti adatok kiértékelése	32
3.5. Az E110, E110G és a Zircaloy-4 ötvözetek képlékenységi határai	36
3.6. Összehasonlítás az elridegedési LOCA kritériummal	38
4. Légbetöréses súlyos balesetek.....	40
4.1. A kísérleti berendezés	41
4.2. A CODEX-AIT-1 kísérlet.....	42
4.3. A CODEX-AIT-2 kísérlet.....	44
4.4. Az eredmények értékelése	47
5. VVER fűtőelemek sérülése súlyos balesetekben.....	51
5.1. A kísérleti berendezés	52
5.2. A CODEX-B4C kísérlet.....	53
5.3. Az eredmények értékelése	55

6.	<i>A fűtőelemek integritása a 2003. évi paksi üzemzavar során.....</i>	58
6.1.	<i>Az üzemzavar fő eseményei.....</i>	58
6.2.	<i>Az üzemzavart követő elemzések és kisléptékű kísérletek</i>	60
6.3.	<i>A CODEX-CT kísérleti berendezés.....</i>	61
6.4.	<i>A CODEX-CT előkísérlet.....</i>	64
6.5.	<i>A CODEX-CT-1 kísérlet.....</i>	65
6.6.	<i>A CODEX-CT-2 kísérlet.....</i>	67
6.7.	<i>A CODEX-CT kísérletek fő eredményei.....</i>	69
6.7.1.	<i>A gőzpárna kialakulása</i>	69
6.7.2.	<i>A fűtőelemek felfűvódása és felhasadása</i>	69
6.7.3.	<i>A maximális hőmérséklet</i>	70
6.7.4.	<i>A cirkónium komponensek oxidációja</i>	71
6.7.5.	<i>Hidrogénfejlődés.....</i>	71
6.7.6.	<i>Az oxidált fűtőelemek vizes elárasztása</i>	72
6.7.7.	<i>A cirkónium komponensek elridegedése</i>	74
6.8.	<i>A kazetták felütközésének vizsgálata</i>	76
6.8.1.	<i>A kísérleti berendezés</i>	76
6.8.2.	<i>A felütközéses kísérlet végrehajtása</i>	77
6.8.3.	<i>Következtetések</i>	79
7.	<i>A sérült fűtőelemek átmeneti tárolása</i>	81
7.1.	<i>A buborékolás hatásának vizsgálata</i>	82
7.2.	<i>A konvekció hatásának vizsgálata</i>	83
7.2.1.	<i>Előkísérlet</i>	83
7.2.2.	<i>Nagyléptékű kísérletek</i>	84
7.3.	<i>A buborékolás és konvekció együttes vizsgálata</i>	85
8.	<i>Összefoglalás, tézispontok</i>	87
1.	<i>tezispont (a dolgozat 2. fejezete alapján)</i>	87
2.	<i>tezispont (a dolgozat 3. fejezete alapján)</i>	87
3.	<i>tezispont (a dolgozat 4. fejezete alapján)</i>	88
4.	<i>tezispont (a dolgozat 5. fejezete alapján)</i>	88
5.	<i>tezispont (a dolgozat 6. fejezete alapján)</i>	88
6.	<i>tezispont (a dolgozat 7. fejezete alapján)</i>	88
9.	<i>Az eredmények hasznosulása</i>	89
10.	<i>Rövidítések és jelölések.....</i>	91
11.	<i>Köszönetnyilvánítás</i>	92
12.	<i>Irodalomjegyzék.....</i>	93
12.1.	<i>Az értekezésben hivatkozott nem saját közlemények</i>	93
12.2.	<i>Az értekezésben hivatkozott saját közlemények.....</i>	98

1. Bevezetés

A jelenleg üzemelő atomerőművek többségében a hasadóanyagot tartalmazó kerámia tablettákat cirkónium burkolatban helyezik el [1]. Az egyes reaktortípusok fűtőelemei között számos eltérés van mind a geometriai elrendezést, mind az anyagokat illetően:

- A legelterjedtebb – és a paksi atomerőműben is használatos – üzemanyag-tabletták urán-dioxidból készülnek, amelyekben a hasadóanyag az urán 235-ös tömegszámú izotópja (^{235}U). A tabletták mérete, peremézése különböző az egyes gyártók fűtőelemeiben. Néhány esetben a tablettákat belső furattal vagy a tabletták alján és tetején kialakított lencseszerű mélyedéssel látják el. A hasadóanyag-tartalom a vízűtésű reaktorokban általában 5% alatt van és bizonyos fűtőelemek kiégő mérget is tartalmaznak.
- A cirkónium burkolat nagy előnye, hogy kis neutronbefogási hatás-keresztmetszete mellett jelentős mechanikai szilárdsággal, korrózió- és sugárállósággal rendelkezik. Az első cirkónium ötvözeteket a 1950-es évek elején az amerikai atommeghajtású tengeralattjárók reaktoraihoz fejlesztették ki. A burkolat paramétereinek optimalizálására az ötvözetekben megjelenik az ón, a nióbium, a vas, az oxigén és a króm. A nyugati tervezésű reaktorokban eredetileg ón tartalmú, Zircaloy néven ismert ötvözeteket vezettek be, míg az orosz reaktorokhoz nióbium tartalmú ötvözeteket hoztak létre. Az ötvözetek továbbfejlesztésével jelenleg is foglalkoznak a fűtőelemgyártók, mivel a fűtőelemek egyre hosszabb időt töltenek a reaktorban, nagyobb kiégést érnek el, sok reaktorban magasabb teljesítményen üzemelnek, mint korábban és ennek a fokozott terhelésnek a burkolat is meg kell, hogy feleljen.

A cirkónium burkolatba zárt kerámia tablettákból álló fűtőelemek teljesítik a szigorú atomenergetikai előírásokban megadott követelményeket. Az optimális anyagok kiválasztásával, a fűtőelemek, üzemanyag-kazetták gondos tervezésével és kezelésével elérhető, hogy a fűtőelemek a reaktorban töltött több éves használat során megőrizték épségüket, és a tervezési üzemzavarok során se lépjenek fel bennük megengedhetetlen változások.

1.1. A burkolat integritásának elvesztése normál üzemelés során

A maghasadások során keletkező hasadási termékek többsége benn marad a tablettában a jelenleg üzemelő atomreaktorokra jellemző viszonyok mellett, azaz a tabletták jelentős visszatartó hatással rendelkeznek. A fűtőelemek burkolata olyan védelmi gátat képez, ami megakadályozza a tablettából kikerülő izotópok kijutását a primerköri hűtőközegbe.

Ha megsérül a burkolat, akkor a fűtőelemrúd gázterében, illetve a tabletták és a burkolat közötti résben található illékony és gázformájú radioaktív izotópok könnyen kijuthatnak a hűtővízbe. Ha a burkolat úgy vált inhermetikussá, hogy a hűtőközeg közvetlenül érintkezik a tabletták felszínével, akkor kevésbé illékony hasadási termékek és UO_2 szemcsék is kimosódhatnak a fűtőelemből.

Az üzemelési tapasztalatok szerint a fűtőelemek sokféle mechanizmussal válhatnak inhermetikussá normál üzemelés alatt. A statisztikák szerint százezer fűtőelemből egy veszíti el az integritását normál üzemvitel mellett [2]. A primerköri

víztisztító rendszerek segítségével a szivárgó fűtőelemekből kikerülő radioaktív izotópokat az ioncserélő gyantákon gyűjtik össze [S1], így a környezetre nem jelent veszélyt az inhermetikus fűtőelemek jelenléte.

1.2. A burkolat integritásának elvesztése üzemzavarok és balesetek során

Az atomerőművek tervezésekor definiálják az atomerőmű tervezési alapját, így azon üzemzavarok körét is, amelyek elhárítására az atomerőmű biztonsági rendszereinek képeseknek kell lenniük. Ennek során figyelembe vesznek olyan, nagyon kis valószínűségű eseményeket is, amelyek bekövetkezése után az erőmű további üzemelése nem feltétlenül folytatható. A tervezési üzemzavarok során fellépő folyamatok nem vezethetnek a radioaktív anyagok olyan mértékű kibocsátásához, ami egészség-károsodást okozhatna a környező lakosság, vagy az erőműben dolgozó személyzet körében. A fűtőelempálcák ugyan gáztömörtelenné válhatnak, de a kazettákban nem léphetnek fel olyan degradációs folyamatok, amelyek veszélyeztetnék a zóna hűthetőségét, vagy akadályoznák a szabályozórudak, szabályozókötegek mozgását. Ennek érdekében a fűtőelemekre biztonsági kritériumokat vezettek be, amelyek teljesülését igazolni kell az erőműre végzett biztonsági elemzésekben [3].

A tervezési alapon túli üzemzavarokból – még a tervezési üzemzavaroknál is jóval kisebb valószínűséggel – súlyos balesetek alakulhatnak ki, amelyeket a fűtőelemek nagymértékű sérülése jellemez. A jelenleg működő erőművek jelentős részében az építés után valószínűsítették meg azokat a biztonságnövelő intézkedéseket, amelyek minimalizálják a súlyos baleseti helyzetekben várható környezeti kibocsátást. Az új, harmadik generációs erőművekben számos új műszaki megoldást alkalmaznak annak érdekében, hogy a súlyos reaktorbaleseteknek se legyen környezeti hatásuk [3].

Az üzemzavarok és balesetek kezdeti eseményeit gyakran a primerkör integritásának elvesztése okozza. A primerköri csővezeték törése vagy egy szelep nyitva maradása egy nagyon fontos védelmi gát elvesztését jelenti. Ha az üzemzavar során a fűtőelemek sérülése is fellép, akkor már csak egy védelmi gát – a konténment, illetve a jelenlegi paksi blokkokon a hermetikus helyiségek – áll rendelkezésre a környezeti kibocsátás elkerülésére. Ezért a fűtőelemek integritásának elvesztése ezekben az esetekben különös jelentőséggel bír.

1.2.1. Hűtőközegvesztéses üzemzavarok

A hűtőközeg elvesztésével járó üzemzavarok (LOCA) során az atomreaktor fűtőelemei felmelegednek és a hűtőközeg nyomása lecsökken. Ezek a hatások az atomerőművekben használt cirkónium burkolat mechanikai, szerkezeti és kémiai változásaihoz vezethetnek [4].

A fűtőelem rudak integritása a magas hőmérsékletű LOCA körülményei között megszűnhet, mivel megtörténhet a burkolat képlékeny sérülése az üzemzavar során végbemenő felfúvódás és felhasadás miatt. A képlékeny deformációt a fűtőelem pálcák és a hűtővíz nyomása közötti különbség hozza létre. Egy felfúvódott rúd felhasadása akkor megy végbe, amikor a helyi alakváltozás és feszültség kritikus

értéket ér el. A felfűvódás legfontosabb következményei a radioaktív anyagok kibocsátása a meghibásodott fűtőelem rudakból és az áramlási keresztmetszet csökkenése a fűtőelem között. Az elzáródás mértéke elérheti a 70-80 %-ot, de a fűtőelemek még ebben az esetben is hűthetőek maradnak [5]. A LOCA üzemzavarok elemzése során jelenleg a legtöbb országban számolnak a képlékeny sérülésből származó következményekkel.

Tervezési üzemzavarok során nem, de baleseti helyzetben, azaz a biztonsági rendszerek elégtelen működése esetén a burkolat két súlyos tönkremeneteli lehetőségével kell számolni:

- Ha a fűtőelempálca burkolatának hőmérséklete meghaladja az 1200 °C-ot, akkor az exoterm cirkónium-vízgőz reakció ($\text{Zr} + 2\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{ZrO}_2 + 2\text{H}_2$) annyira intenzívvé válik, hogy a burkolat hőmérséklete nagyon gyorsan nő és a fűtőelem megállíthatatlanul tönkremegy. Az atomerőmű biztonsági vészhűtő rendszerének biztosítania kell, hogy ezt a hőmérsékletet tervezési üzemzavarok során a fűtőelemek burkolata ne érje el.
- A burkolat rideg törése következhet be, ha a gőzben több percen át történő magas hőmérsékletű oxidáció után a forró fűtőelem rudakat hideg vízzel hűtik le. A termikus és mechanikai feszültségek a rideg burkolatban repedések képződéséhez és azok terjedéséhez, és a fűtőelem rudak darabokra való széteséséhez vezethetnek. Ebben az esetben a fűtőelem darabok végső geometriai elrendeződése olyan sokféle lehet, hogy azt nem lehet előre jelezni, így nem garantálható a hűthető geometria [6]. A fűtőelemek rideg sérülése tervezési üzemzavarok következtében nem engedhető meg, ezért az erőművek vészhűtő rendszereit úgy tervezik meg, hogy azok kellő időben működésbe lépjenek, és így a burkolat nem kerülhet olyan oxidációs állapotba, ahol a rideg sérülés veszélye fennáll.

A fűtőelemek lehetséges degradációjára LOCA körülmények között már a 1960-as években felhívta a figyelmet több, Zircaloy ötvözetekkel végzett laboratóriumi mérés [6]. A fűtőelemekben végbemenő kedvezőtlen változásokat néhány kutatóreaktoros kísérlet is megerősítette (TREAT [4], LOFT [7], PHEBUS [8], PBF [4], FR-2 [9], MIR [10][11]). A megfigyelések alapján előbb az USA-ban, majd a többi atomerőművet üzemeltető országban is bevezették azokat a kritériumokat, amelyek betartásával biztosítható az aktív zóna hűtése egy üzemzavar után. A kritériumok előírják, hogy a cirkónium ötvözetből készült burkolat hőmérséklete ne haladja meg az 1200 °C-ot és a burkolat ne oxidálódjon el olyan mértékben, hogy az üzemzavar utáni lehűtés során a burkolat tönkremehessen.

1.2.2. Reaktivitás üzemzavarok

A reaktivitás üzemzavarokat (RIA) jellemző hirtelen teljesítmény-növekedés következtében a burkolat épségét több folyamat is veszélyezteti. A belső gáznyomás növekedése a fűtőelem képlékeny burkolatának felfűvódásához és felhasadásához vezethet. A tabletta és burkolat között létrejött mechanikai kölcsönhatás a rideg burkolat felrepedését is eredményezheti. Kísérleti körülmények között el lehet érni olyan magas teljesítményt is, ahol megolvadhat a burkolat, vagy akár a tabletta is. Az oxidáció miatt elridegedett burkolat vizes elárasztása során fellépő rideg törések a fűtőelem fragmentációját eredményezhetik. Az erőművi reaktorokat úgy tervezik,

hogy a RIA üzemzavarok lehetséges kezdeti eseményei ne vezethessenek a fűtőelemek súlyos sérülésével járó teljesítménycsúcsokhoz [12].

A fűtőelemek sérülésének körülményeit olyan kutatóreaktorokban lehet előállítani, amelyekben gyors teljesítménycsúcsot lehet létrehozni. Az amerikai CDC és SPERT [13], a francia CABRI [12] és a japán NSRR [14] reaktorokban friss és erőműben besugárzott fűtőelem szegmensekkel végeztek kísérleteket. VVER fűtőelemekkel ez első méréseket az IGR és a GIDRA [15] kutatóreaktorokban hajtották végre. Jelenleg a BGR [16] reaktoron folynak kísérletek nagy kiégésű és új típusú burkolattal ellátott VVER fűtőelem mintadarabokkal. A mérési eredmények szerint a fűtőelemek sérülésének kialakulását egyrészt az energiabevitel mértéke, másrészt a mintadarab állapota (kiégése, a burkolat hidrogéntartalma és korróziójának mértéke) határozza meg. A kísérletek alapján bevezetett kritériumok a megengedhető üzemanyag entalpia megadásával korlátozzák a fűtőelemekben felszabaduló energia mennyiségét [3].

1.2.3. Súlyos balesetek

Súlyos balesetekben az aktív zóna tartósan hűtés nélkül maradhat. A zóna felmelegedése egyrészt a fűtőelemek nagymértékű sérüléséhez vezethet, másrészt a magas hőmérséklet miatt fokozott aktivitás-kibocsátás lép fel. A súlyos baleseti forgatókönyvek szerint a fűtőelemek rendkívül változatosan veszíthetik el integritásukat [17]. A magas hőmérsékleten a zóna szerkezeti elemei megolvadhatnak, eutektikumképződés léphet fel, a mechanikai terhelés hatására eltörhetnek az oxidálódott fűtőelemek és törmelék képződhet. A kémiai reakciók eredményeként változik a zónában található anyagok összetétele, illetve olyan anyagok is megjelenhetnek (mint például a hidrogén), amelyek eredetileg nem voltak a reaktorban. A zóna sérülése általában nem is a fűtőelemek, hanem az alacsonyabb olvadáspontú szabályozó rudak sérülésével kezdődik és fontos szerepe van a hőelvitelnek, a hűtőközeg összetételének és forgalmának is. A degradációs folyamatok eredményeként a zóna geometriai elrendezése is megváltozik.

1979-ben az amerikai TMI-2 erőműben baleseti körülmények között súlyos zónasérülés történt, az üzemanyag jelentős része megolvadt [18]. A baleset után számos kisléptékű és integrális kísérleti program indult különböző országokban a súlyos baleseti folyamatok vizsgálatára. Kutatóreaktorban hajtották végre a francia PHEBUS [8] kísérleteket, Németországban pedig elektromosan fűtött kötegekkel szimulálták a fűtőelemek tönkremenetelét a CORA [18] és a QUENCH [20] berendezésen. A kísérletek is rámutattak, hogy súlyos baleseti körülmények között nagyon sok folyamat léphet fel egy időben és a zónasérülés jelenségeit számos különböző tényező befolyásolhatja [21].

Az első súlyos baleseti elemzések elsősorban a reaktorban, vízgőzben lejátszódó degradációs folyamatokkal foglalkoztak [22]. Az utóbbi években előtérbe kerültek a leállított reaktorban, illetve a reaktoron kívül lejátszódó balesetek is. Az elemzések rámutattak, hogy a fűtőelemek integritása jóval a reaktor leállása után is csak akkor őrizhető meg, ha a maradványhő elvitele megoldott [23][S2].

1.3. A hazai kísérletes fűtőelem-kutatási programok motivációja

A paksi atomerőmű reaktoraiban orosz gyártmányú fűtőelemet használunk a blokkok indítása óta. A fűtőelemekre vonatkozó – az üzemeltetéshez és a biztonsági elemzések elvégzéséhez szükséges – ismereteket az orosz partnerek adták át. A kilencvenes évek elején került sor az erőmű biztonságának nemzetközileg elismert módszerekkel történő, szisztematikus újraértékelésére [24]. Ezekkel az elemzésekkel egy időben merült fel az igény arra, hogy a hazai szakemberek részletesebb ismeretekkel rendelkezzenek a fűtőelemek jellemzőiről, viselkedéséről és azokról a mechanizmusokról, melyek a fűtőelemek integritásának elvesztéséhez vezethetnek. Az AEKI-ben megkezdődött a fűtőelemviselkedési kódok bevezetése és elindultak kísérleti programok is.

A kísérletek megkezdését az tette lehetővé, hogy az AEKI-ben 1972-1990 között reaktorfizikai méréseket végeztek VVER fűtőelemekkel a ZR-6 szubkritikus reaktoron [25]. A reaktorfizikai kísérletekben a fűtőelemek nagyon kismértékű besugárzást kaptak, így nem volt annak akadálya, hogy azokkal további kísérleteket lehessen végezni. A későbbi mérésekhez szükséges anyagokat a paksi atomerőmű szakembereinek közreműködésével sikerült beszerezniük, közvetlenül a fűtőelem-gyárból.

Az AEKI-ben végzett kísérletekben kezdetektől fogva fontos szerepet kapott a fűtőelemek magas hőmérsékletű – üzemzavari és baleseti helyzetekre jellemző – viselkedésének vizsgálata. A mérések első sorozatában az orosz E110 és a nyugati Zircaloy-4 burkolatok összehasonítására került sor olyan kísérleti módszerekkel, amelyekkel a Zircaloy-4 burkolatot külföldön (elsősorban Németországban) már vizsgálták. A hazai mérések egyik fontos eredménye volt a VVER reaktor aktív zónájában található anyagok közötti kölcsönhatások jellemző paramétereinek meghatározása [26].

A besugárzott fűtőelemek vizsgálatához olyan melegkamrás eszközök szükségesek, amelyekkel Magyarországon nem rendelkezünk. A Budapesti Kutatóreaktorban jelenleg is folyik cirkónium burkolatok besugárzása, de a hazai kutatásokban elsősorban olyan folyamatokat vizsgálunk, amelyeknél a kiégés és besugárzás hatása elhanyagolható. A kiégett fűtőelemekre, illetve a RIA körülményekre vonatkozó ismeretekhez külföldi együttműködések keretében jutunk hozzá.

A fűtőelemekre vonatkozó követelmények teljesülését az üzemanyag-szállító igazolja számításokkal és kísérletekkel. Az orosz szállító által bemutatott kísérletek egy részét itthon is megismételtük, valamint számos kiegészítő mérésre is sor került azzal a céllal, hogy a hazai szakértők is részletesen megismerjék a kísérleti módszereket és azok kiértékelését. A hazai mérések azért is fontosak voltak, mert így a szállítótól független eredményekre támaszkodva lehetett megerősíteni a követelmények teljesülését. A mérési eredményekből összeállított adatbázisok lehetővé tették a fűtőelemes modellek hazai továbbfejlesztését is, valamint a kódokban található Zircaloy-4 modellek lecserélését E110 specifikus korrelációkra.

A 2003. évi paksi üzemzavar során fellépett fűtőelem-sérülésekkel kapcsolatban számos olyan kérdés merült fel, amelyek megválaszolásához kísérletekre volt szükség [27][28].

A hazai kutatásoknak egy újabb lendületet adott, hogy a paksi atomerőmű üzemanyagát szállító orosz üzemanyaggyártó 2005-től megkezdte a fémszivacsos

technológia bevezetését a fűtőelem-burkolatok gyártásában az addig használatos elektrolitikus eljárás helyett [29]. Az így készült burkolat összetétele csak kismértékben különbözik az eddigitől (E110) és a szállító szerint üzemi tulajdonságaiban nincs jelentős eltérés a két anyag között. Előzetes orosz mérések jelezték, hogy üzemzavari (LOCA) körülmények között az új, E110G jelű burkolat kevésbé ridegedik el, mint a jelenleg használt ötvözet. Az új burkolat magyarországi bevezetéséhez a hazai szakemberek fontosnak tartották az E110G magas hőmérsékletű viselkedésének részletes megismerését, illetve a gyártó által szolgáltatott információk független ellenőrzését.

1.4. Célkitűzések

1.4.1. Általános célkitűzések

A dolgozatban bemutatásra kerülő fűtőelemes kísérleti kutatásoknak két általános célja volt:

- A **fűtőelemes biztonsági kritériumok** számszerű értékeit általában kísérleti úton határozzák meg. Az üzemzavari állapotokra vonatkozó kritériumok megalapozásához extrém körülmények között kellett méréseket végezni. A kísérletek tervezésekor és végrehajtásakor törekedni kellett arra, hogy a mérések amennyire csak lehet reprezentatívak legyenek a reaktor-körülményekre.
- A fűtőelemekben lejátszódó folyamatok szimulációjára számítógépes kódokat hoztak létre. A kódokban található **numerikus modellek** egyrészt elméleti megfontolásokra támaszkodnak, másrészt kísérleti eredményeken alapulnak.

A fűtőelemek üzemzavari viselkedésének modellezésére hazánkban az amerikai fejlesztésű FRAPTRAN [30] és a Karlsruhe-i JRC ITU intézet szakemberei által létrehozott TRANSURANUS [31] kódokat használjuk. A két kód hazai használhatóságát korlátozta, hogy a bennük található modelleket a nyugati PWR erőművek anyagaival végzett kísérletek eredményei alapján fejlesztették ki. A VVER erőművek fűtőelemei a PWR fűtőelemektől mind méretükben mind anyagukban eltérnek. A VVER fűtőelemek megbízható modellezéséhez kísérleti eredményekre volt szükség. A VVER kísérletek alapján vagy be lehetett látni, hogy a FRAPTRAN és TRANSURANUS modellek megfelelőek VVER alkalmazásokra is, vagy ha nem voltak megfelelőek, akkor kísérleti adatokat kellett előállítani a VVER specifikus modellek létrehozásához.

A súlyos balesetek számítógépes szimulációjára külön súlyos baleseti kódokat fejlesztettek ki. Magyarországon használták ilyen célra például a MELCOR [32], MAAP [33], ICARE/CATHARE [34] és az ASTEC [35] kódokat. Ezekkel a programokkal a fűtőelemek tönkremenetelének korai fázisát nem írják le olyan részletesen, mint az előbb említett FRAPTRAN, vagy TRANSURANUS kódokkal. Ezért ezeknek a kódoknak a hazai alkalmazásához nem volt szükség VVER specifikus modelleket megalapozó fűtőelemes mérések végrehajtására. Ugyanakkor a kódok teljesítőképességének ellenőrzéséhez, validációjához szükségesek voltak a hazai súlyos baleseti kísérletek.

1.4.2. Konkrét célkitűzések

A dolgozatban hat önálló kutatási témát mutatok be, amelyek konkrét célkitűzései az alábbiak voltak:

1. Meg kellett határozni, hogy milyen tényezők befolyásolják a VVER fűtőelem-burkolatok felhasadását magas hőmérsékleten. Összehasonlító vizsgálatokat kellett végezni az E110 és a Zircaloy-4 ötvözetekkel. Meg kellett vizsgálni, hogy a továbbfejlesztett E110G ötvözet felhasadásának körülményei különböznek-e az E110 ötvözettől.
2. Meg kellett határozni, hogy szobahőmérsékletű mechanikai tesztek alapján milyen oxidációs idő és hőmérséklet tartományokban lép fel az oxidált Zircaloy-4, E110 és E110G ötvözeteknél a képlékeny-rideg átmenet. Meg kellett vizsgálni, hogy a képlékeny-rideg átmenetre végzett mérések megalapozhatják-e a fűtőelem-burkolat maximális oxidációjára vonatkozó kritériumot.
3. Integrális kísérletek végrehajtásával meg kellett határozni, hogy légbetöréses súlyos baleseti folyamatok során milyen jelenségek kísérik a fűtőelemek degradációját, illetve milyen intenzitás jellemzi a tönkremenetelt.
4. VVER specifikus kísérletekkel fel kellett mérni, hogy milyen lépésekből áll a fűtőelem-kötegek tönkremenetele bór-karbid tartalmú szabályozórúd jelenlétében. Külön kérdésként merült fel, hogy képződhet-e metán a bór-karbid vízgőzös oxidációja során súlyos baleseti körülmények között.
5. A 2003. évi paksi üzemzavar során történt fűtőelem-sérüléseket kísérő jelenségek részleteinek megismerésére olyan kísérleteket kellett végrehajtani, amelyek fő paraméterei reprezentatívak voltak a tisztítótartályban létrejött körülményekre. Értékelni kellett a légtelenítő szelep állapotának szerepét és meg kellett vizsgálni a kazetták függőleges elmozdulásának lehetőségét.
6. Inaktív körülmények között végrehajtott mérésekkel igazolni kellett, hogy a sérült fűtőelemek nedves tárolására kifejlesztett tokokból nem távoznak a vízben oldott hasadási termékek, miközben a radiolízis során keletkező gázok ki tudnak jutni a tokból.

A dolgozatban a felsorolt hat témakör közül először a burkolat képlékeny sérülésével (2. fejezet) foglalkozom – ez az üzemzavarok során, időrendben az első mechanizmus, ami a fűtőelemek integritásának elvesztéséhez vezethet. Az üzemzavari körülmények között a cirkónium magas hőmérsékletű oxidációja elridegíti a burkolatot, ami egy hosszabb folyamat végén rideg sérülést (3. fejezet) eredményezhet. Ha az üzemzavar későbbi szakaszában nem állnak rendelkezésre a zóna hűtésére a vészhűtőrendszerek, akkor a fűtőelemek degradációját további folyamatok is befolyásolják. A reaktoron belüli súlyos baleseti folyamatok megismerésére végzett integrális kísérleteket a dolgozat 4. és 5. fejezetében mutatom be. Végül a reaktoron kívül, az üzemanyag kazetták tisztítására használt tartályban történt, súlyos üzemanyag sérüléssel kísért üzemzavar lefolyásával (6. fejezet) és a sérült fűtőelemek átmeneti tárolásának optimális megvalósításával foglalkozom (7. fejezet).

2. A burkolat felhasadása

A fűtőelem-burkolat felfűvódását és felhasadását először a kutatóreaktorokban végzett (angol kifejezéssel *in-pile*) integrális kísérletekben figyelték meg. Az FR-2 [9], az ESSOR [36] és a PBF reaktorokban [37] friss és besugárzott fűtőelemek viselkedését vizsgálták üzemzavari körülmények között. A több fűtőelemből álló kötegekkel végrehajtott PHEBUS-215P [8] és NRU-MT3 [38] mérésekben megfigyelték azt is, hogy a felfűvódás hatására jelentős mértékű elzáródás jött létre a fűtőelemek közötti áramlási csatornában. A kutatóreaktoros tapasztalatok jelezték, hogy nagyon fontos a felhasadás megbízható előrejelzése. Továbbá a mérések rámutattak arra is, hogy a nukleáris környezet nem játszik fontos szerepet a felhasadásban [9]. Így a burkolat felfűvódásának és felhasadásának jellemzői jól megismerhetők reaktoron kívül (*out-of-pile*), elektromos fűtéssel végzett mérések alapján is.

A felfűvódásos folyamatokat befolyásoló jelenségek vizsgálatához, illetve a numerikus modellek fejlesztésének megalapozásához több laboratóriumban is végeztek kísérleteket. Érdemes kiemelni a REBEKA [38] és FABIOLA [36] méréseket Németországban, az EDGAR [8] programot Franciaországban, a *Multirod Burst Test* [37] sorozatot az USA-ban, valamint a japán JAERI [37] kísérleteit. A nagyszámú kísérleti adat alapján meghatározhatóvá váltak a felhasadás tipikus paraméterei. A burkolat felhasadását befolyásoló tényezők között legfontosabbnak a hőmérséklet, a nyomáskülönbség és az oxidáló atmoszféra bizonyult. A kötegekkel végzett mérésekben megfigyelték azt is, hogy a burkolat felfűvódását jelentősen korlátozhatják a szomszédos rudak. A mérési adatok alapján numerikus modelleket fejlesztettek ki a tranziens fűtőelem-viselkedési kódokhoz az üzemzavari állapotok előrejelzésére a Zircaloy burkolattal ellátott fűtőelemekre [37][8][39][40].

A Zircaloy ötvözetekre kifejlesztett modellek azonban nem alkalmazhatóak közvetlenül az orosz tervezésű VVER fűtőelemek leírására. A VVER fűtőelemek E110 burkolatában a fázisátmenet korábban lép fel, mint a Zircaloy-4 és Zircaloy-2 ötvözetekben. A fázisátmeneti tartományban a cirkónium mechanikai jellemzői drasztikusan megváltoznak [41][42] és ezért várható volt, hogy ennek hatása lesz a felhasadás körülményeire is. Az E110 ötvözetrel azonban sokkal kevesebb kísérletet végeztek, mint a Zircaloy ötvözetekkel. Egy mérési sorozatot végeztek az orosz burkolattal Németországban [43] és néhány orosz mérést is publikáltak [44][45].

A VVER specifikus modellek kifejlesztéséhez a legtöbb mérésből álló felfűvódásos kísérletsorozatot Magyarországon végeztük el. A mérésekben eredeti, orosz gyártmányú E110 és E110G ötvözetekből készített csöveket használtunk, de referencia mérésként sor került néhány Zircaloy-4 mérésre is.

2.1. A kísérletek fő paraméterei

A burkolat felfűvódását és felhasadását több mérési programban is vizsgáltuk (1. táblázat). A különböző ötvözetekkel végrehajtott kísérletekben elsősorban arra kerestük a választ, hogy milyen körülmények vezetnek a burkolat felhasadásához, de több mérésben vizsgáltuk azt is, hogy milyen mértékű elzáródást okoz a felfűvódás, illetve néhány speciális körülmény (távtartórács jelenléte vagy az oxidáló atomszféra) milyen hatással van a képlékeny alakváltozásra.

dc_1019_15

- I. Az első sorozatban 50 mm hosszú, E110 ötvözetből készített, egy rúdból álló mintákon, izotermikus körülmények között, 650 °C és 1200 °C közötti hőmérsékleteken, 0,007 bar/s és 0,166 bar/s közötti nyomásnövelési sebességekkel hajtottunk végre 54 mérést. A burkolat normál üzemi korróziós állapotának modellezésére néhány minta külső felületén oxidréteget hoztunk létre a mérés előtt [S3].
- II. Az általunk használt mérési eljárás ellenőrzésére, valamint az E110 és Zircaloy-4 mérések összehasonlításának megalapozásához Zircaloy-4 ötvözetből készített, egy rúdból álló mintákon, izotermikus körülmények között 31 mérést hajtottunk végre, 700 °C és 1200 °C közötti hőmérsékleteken, 0,005 bar/s és 0,26 bar/s közötti nyomásnövelési sebességgel [S3].
- III. A VVER kazetta elzáródását E110 ötvözetből készült, 7 rúdból álló kötegekkel végrehajtott kísérletekben vizsgáltuk. A 9 köteget 1 °C/s hőmérsékletnövelési sebességgel fűtöttük fel, a belső gáznyomásuk 3 bar és 30 bar között volt, a felhasadásuk 800–1200 °C között következett be. A mérések egy részében argon atmoszférát alkalmaztunk, míg a többi kísérletre vízgőzös környezetben került sor [S3].
- IV. 150 mm hosszú, E110 ötvözetből készült mintákkal egyrészt a korábbiaknál gyorsabb felfűvődést vizsgáltunk izotermikus 0,6 bar/s és 6,5 bar/s közötti nyomásnövelési sebességekkel, 800 °C és 1200 °C közötti hőmérsékleteken, másrészt a hőmérsékletnövelés sebességének a hatását vizsgáltuk 6,4 °C/s és 13,5 °C/s hőmérsékletnövelési sebességgel. Ebben a sorozatban 11 izotermikus mérés és 12 tranziens mérés történt [S3].
- V. A távtartórács hatásának vizsgálatát 100 mm hosszú, E110 ötvözetből álló mintákkal és kötegekkel végeztük el. A hat különálló rúddal és a két darab hét rúdból álló köteggel izotermikus körülmények között, 900 °C és 1000 °C hőmérsékleteken, 0,01 bar/s nyomásnövelési sebességgel hajtottunk végre kísérleteket [S4].
- VI. Az E110G burkolattal 27 izotermikus mérést végeztünk 0,007 bar/s és 7 bar/s közötti nyomásnövelési sebességgel, 700 °C és 1200 °C közötti hőmérsékleteken. A minták egy részét előoxidáltuk a felfűvődésos kísérlet előtt [S5].

A fenti méréseken túl integrális mérésekben is vizsgáltuk a burkolat felhasadását a CODEX-CT program keretében (6. fejezet).

Mérési sorozat	I.	II.	III.	IV.	V.	VI.
A mérések végrehajtásának éve	1995-1996	1995-1996	1998-1999	2000	2005	2010-2011
A mintadarabok száma	54	31	9	23	8	27
Ötvözet	E110	Zircaloy-4	E110	E110	E110	E110G
Egy rúdból álló mintadarabok száma	54	31	-		6	27
Hét rúdból álló mintadarabok száma	-	-	9		2	-
A mintadarabok hossza (mm)	50	50	150	150	100	50-150
Lineáris nyomásnöveléssel végzett mérések száma	54	31	-	11	8	

Mérési sorozat	I.	II.	III.	IV.	V.	VI.
A nyomásnövelés sebessége (bar/s)	0,007-0,166	0,005-0,26	-	0,6-6,5	0,01	0,007-7,0
Hőmérsékletkövető nyomásnöveléssel végzett mérések száma	-	-	9	12	-	-
Izotermikus körülmények között végzett mérések száma	54	31	-	11	8	27
A felhasadás hőmérséklete (°C)	650-1200	700-1200	800-1200	800-1200	900-1000	700-1200
Tranziens hőmérsékletnöveléssel végzett mérések száma	-	-	9	12	-	-
A hőmérsékletnövelés sebessége (°C/s)	-	-	1,0	6,4-13,5	-	-
Argon atmoszférában felfúvódott mintadarabok száma	54	31	5	20	5	27
Vízgőz atmoszférában felfúvódott mintadarabok száma	-	-	4	3	3	-
Előoxidált minták száma	21	-	-	-	-	4
Távtartóráccsal ellátott mintadarabok száma	-	-	-	-	6	

1. táblázat: A felhasadásos mérések fő jellemzői

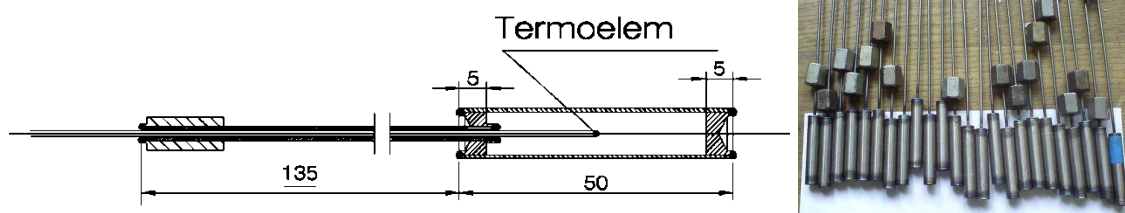
2.2. A kísérleti berendezés és a mintadarabok előkészítése

A felfúvódásos méréseket elektromosan fűtött csőkemencékben hajtottuk végre. A mintadarabot a kemence középső, egyenletes hőmérsékletű részében helyeztük el. A kemence belsejében elhelyezett béléscsőön keresztül argont áramoltattunk a kísérletek többségében. Az oxidáló közeg hatásának vizsgálatára végzett méréseket vízgőz atmoszférában hajtottunk végre.

A kemence hőmérsékletét állandó értéken tartottuk az izotermikus mérések során, illetve előre megadott forgatókönyv szerint változtattuk a tranziens mérések alatt. A hőmérséklet mérésére termoelemeket használtunk.

A Zircaloy-4 minták külső átmérője 10,75 mm, belső átmérője 9,3 mm volt. Az E110 és E110G burkolatok jellemző külső átmérője 9,1 mm volt. A fűtőelem gyárból származó különböző szállítmányok között kisebb eltérések voltak, így a belső átmérő jellemző értéke 7,7–7,8 mm volt.

A mérésekhez 5-15 cm hosszú csöveket vágunk le a burkolatból. A cső egyik végét cirkónium záródugóval láttuk el. A másik végébe olyan dugót helyeztünk el, amelyen egy vékony cirkónium csövet vezettünk át. A vékony cső csatlakozott a nyomásszabályozó rendszerhez. Egy jellemző elrendezés rajzát és néhány kész mintadarabot mutat az 1. ábra.



1. ábra: A mintadarab rajza és fényképfelvétel néhány mérésre előkészített mintadarabról

Az előoxidált mintadarabok előállításához először a burkolatcsöveket mind a két végükön dugóval láttuk el és lehegesztettük. Erre azért volt szükség, hogy a vizsgált mintáknak csak a külső felületén képződjön oxidréteg. Az előoxidációt 900 °C-os vízgőzben hajtottuk végre. Végül az oxidált minták mindkét végét levágtuk és az oxidálatlan mintákhoz hasonló mintadarabot állítottunk elő, amely egyik végén egy dugóval le volt hegesztve, a másik végén pedig a nyomásnöveléshez szükséges, vékony cirkóniumcső csatlakozott hozzá. Az oxidáció kívánt mértékét úgy állítottuk be, hogy az oxidációs mérésekből származó tapasztalatok alapján meghatároztuk az adott oxidréteg-vastagság eléréséhez szükséges időt. Ehhez rendelkezésünkre állt az adott hőmérsékleten a tömegnövekedés az oxidációs idő függvényében. Az oxidréteg számításánál – korábbi metallográfiai vizsgálatok eredményeire támaszkodva – feltételeztük, hogy a felvett oxigén 20%-a diffundált be a cirkónium fémbe és növelte az α -réteg oxigéntartalmát, a többi oxigén pedig az oxidban maradt. Ennek alapján meghatározható volt az adott tömegnövekedéshez tartozó oxidréteg-vastagság.

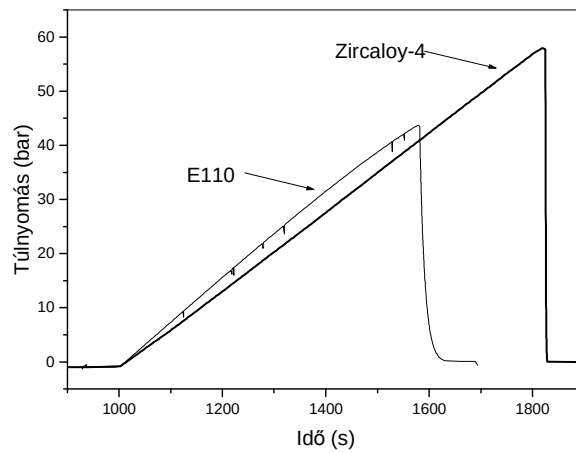
A távtartórács hatásának vizsgálatához a csöveket olyan 10 mm magas távtartórácsokkal láttuk el, amelyek geometriája megfelelt a VVER-440 kazettákban használt rácsoknak. A kísérletekben használt rácsok anyaga rozsdamentes acél volt.

2.3. A mérések végrehajtása

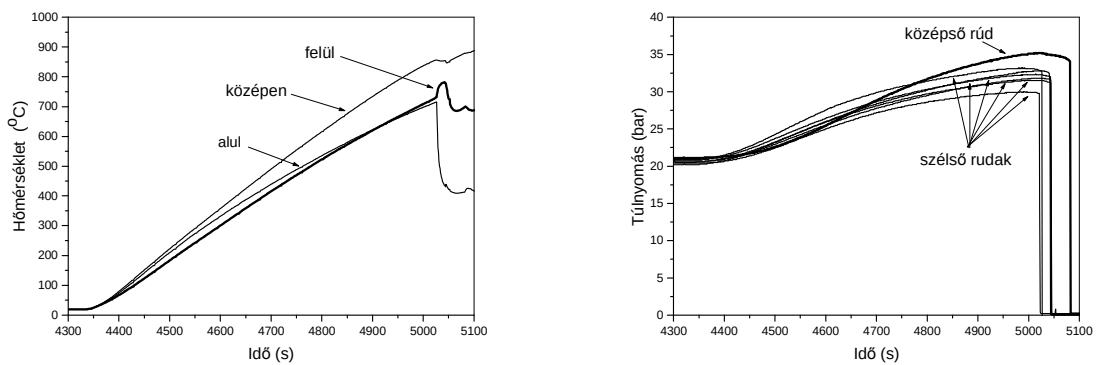
Az izotermikus méréseket úgy hajtottuk végre, hogy közben a burkolat belső nyomását állandó sebességgel növeltük. A lineáris nyomásnövelést azért választottuk, hogy megkönnyítse a mért adatok kiértékelését és a modellparaméterek meghatározását. A kísérlet elején az összeszerelt mintadarabot betettük a kemencébe. A kemence hőmérsékletét folyamatosan növeltük a kívánt értékig, majd megvártuk, hogy stabil állapot alakuljon ki. Ezután kezdődött a nyomásnövelés az előre meghatározott sebességgel. A burkolat felhasadását a nyomásgörbe hirtelen letörése jelezte (2. ábra). A mérés a berendezés lehűtésével és a mintadarab eltávolításával ért véget.

A tranziens mérésekben nem szabályoztuk külön a mintadarabok belső nyomását, hanem a csöveket hideg állapotban a szükséges kezdeti nyomásra gázzal feltöltöttük és lezártuk. A nyomásváltozás dinamikáját – az adott kísérleti elrendezésre jellemzően – a gáztérforगत hőmérsékletének változása adta meg. A mérések egy részében megfigyelhető volt, hogy a felfúvódás – azaz térfogatnövekedés – hatására a nyomás csökkent akkor is, ha a hőmérséklet még tovább emelkedett (3. ábra). Az oxidáló atmoszféra hatását vizsgáló

kísérletekben a kemence belsejébe állandó sebességgel vízgőz-argon keveréket áramoltattunk.



2. ábra: Zircaloy-4 és E110 burkolat felhasadása 800 °C-on



3. ábra: Hőmérséklet- és nyomásváltozás egy 7 rúdból álló E110 köteg felfúvódása és felhasadása során



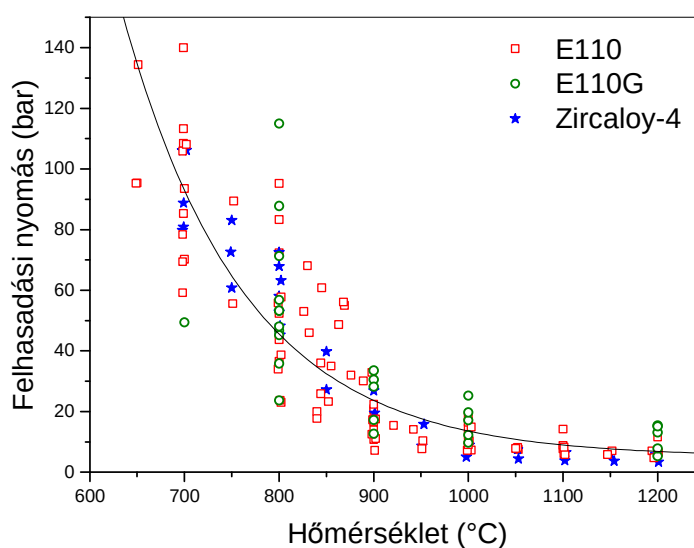
4. ábra: 700 °C-on (baloldali két kép) 800 °C-on (középső két kép) és 900 °C-on (jobboldali két kép) felhasadt E110G mintadarabokról készült fényképek

A felhasadt burkolatok állapota jelentős eltéréseket mutatott. A 4. ábrán bemutatott három E110G mintáról készült két-két fényképfelvétel látható. A felvételek szemből, illetve 90°-os elforgatással oldalról mutatják a felhasadt mintadarabokat. A baloldali, 700 °C-on felhasadt mintánál nagyon jelentős deformáció előzte meg a sérülést. A középső minta 800 °C-on hasadt fel és még nagyobb méretű felfúvódás keletkezett. A jobboldali mintadarabon, a 900 °C-os hőkezelés hatására anyagszerkezeti átalakulások léptek fel és a deformáció mértéke jóval kisebb volt, mint az alacsonyabb hőmérsékletű mintákon. A 4. ábra alapján belátható, hogy a burkolat felhasadása nem köthető egyszerűen valamilyen mértékű deformációhoz, hiszen a három bemutatott minta felfúvódása között szemmel látható különbségek vannak.

2.4. A felfúvódásos mérések fő eredményei

2.4.1. A hőmérséklet és a felhasadási nyomás kapcsolata

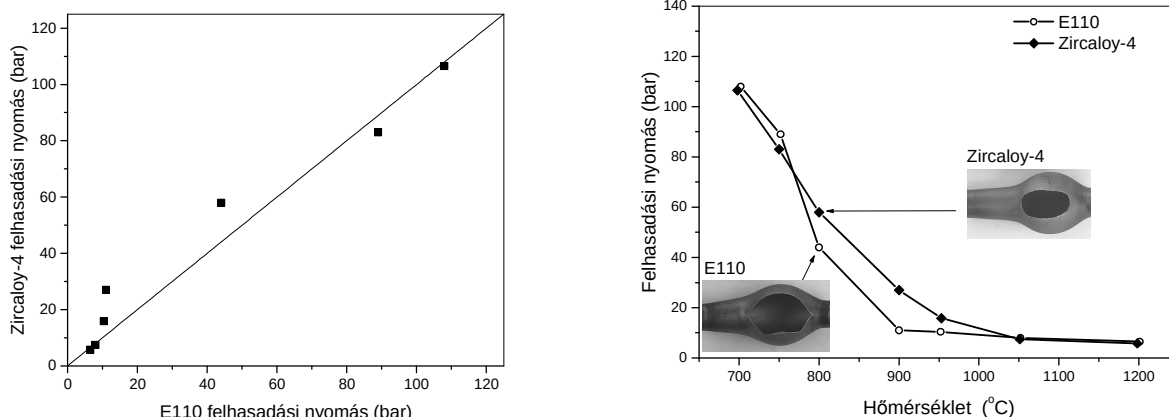
A fűtőelemek burkolatának képlékeny felhasadását elsősorban a külső és belső nyomások különbsége, illetve a hőmérséklet határozza meg. Az elvégzett kísérletek jól mutatják, hogy a hőmérséklet növelésével a felhasadási nyomás (azaz a belső és külső nyomások különbsége) folyamatosan csökken. A vizsgált mintadarabok jellemző felhasadási nyomása 700 °C hőmérsékleten 100 bar nagyságrendű volt, míg 1000 °C fölött már 10 bar-nál kisebb nyomáskülönbség is elegendő volt a burkolat felhasadásához. Az 5. ábrán látható adatok nagymértékű szórása jelezte, hogy a hőmérsékleten és a nyomáskülönbségen kívül számos egyéb tényezőnek is fontos szerepe lehet a felhasadásban. Ezekről a tényezőkről a következő fejezetekben lesz szó.



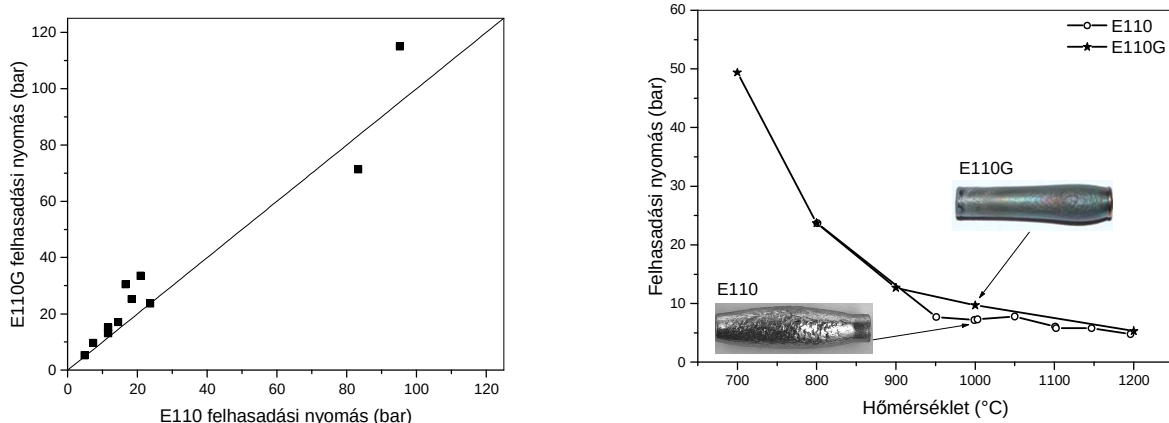
5. ábra: Az összes E110, E110G és Zircaloy-4 minta felhasadási nyomása a hőmérséklet függvényében

2.4.2. A Zircaloy-4, az E110 és az E110G burkolatok felhasadása

A Zircaloy-4, az E110 és az E110G ötvözetekkel végrehajtott izotermikus felfúvódásos mérések azt mutatták, hogy hasonló nyomásnövelési sebesség esetén a felhasadási nyomások nagyon hasonlóak voltak alacsony (700–750 °C) és magas (1050–1200 °C) hőmérsékleteken (6. ábra). A szinte számszerűen azonos felhasadási nyomásokat az magyarázza, hogy a Zircaloy-4 ötvözetnek ugyan nagyobb a mechanikai szilárdsága, de a vizsgált csövek átmérője is nagyobb volt, mint az E110 és E110G mintáké. Így a két tényező egymást kompenzáló hatása miatt kaptunk ennyire hasonló értékeket. A 800–1000 °C tartományban a Zircaloy-4 minták magasabb nyomáson hasadtak fel. Ez az effektus azzal függ össze, hogy a Zircaloy-4 ötvözetben a β fázis megjelenése magasabb hőmérsékletre köthető, mint az E110 ötvözetnél.



6. ábra: Az E110 és Zircaloy-4 minták felhasadási nyomásának összehasonlítása



7. ábra: Az új (E110G) és a régi (E110) minták felhasadási nyomásának összehasonlítása

Az E110G burkolat valamivel magasabb nyomáson hasadt fel, mint a közel azonos körülmények között vizsgált, E110 ötvözetből készült mintadarabok. A 7. ábra jobb oldali grafikonja mutatja a 0,007 bar/s nyomásnövelési sebességgel végzett méréseket a hőmérséklet függvényében. Annak ellenére, hogy a relatív különbség nem nagy, az 1. táblázat I. és VI. oszlopaiban megadott, E110 és E110G

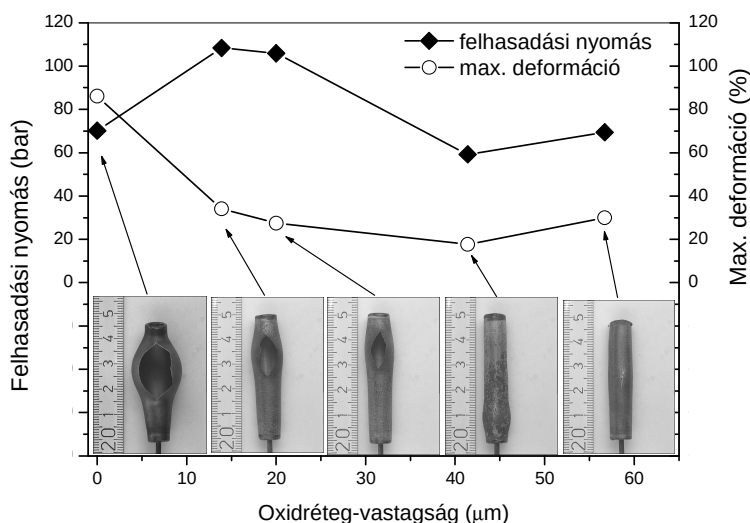
mintákkal végzett kísérletsorozatok – azonos hőmérsékleten és hasonló nyomásnövelési sebességgel végrehajtott méréseinek – eredményei között, az eltérés nem tekinthető mérési hibának, hiszen szisztematikus eltérésről van szó. Egy kivétellel, minden összehasonlítható mérési pontban magasabb felhasadási nyomást mértünk az E110G, mint az E110 burkolattal (7. ábra baloldali grafikonja).

2.4.3. Az előoxidáció és az oxidáló atmoszféra hatása

Magas hőmérsékletű üzemzavari állapotokban a forró gőz és a cirkónium burkolat között kémiai reakció megy végbe, a burkolaton oxidréteg képződik. A kemény oxidréteg, valamint a fém által elnyelt oxigén és hidrogén megváltoztatja a cirkónium burkolat mechanikai tulajdonságait, és ennek hatása lehet a felfúvódásos folyamatra is.

Az oxidáció hatását kétféleképpen lehet figyelembe venni a felfúvódásos kísérletekben: vagy előoxidáljuk a mintadarabot felfúvódásos terhelése előtt, vagy magát a felfúvódásos kísérletet hajtjuk végre vízgőz atmoszférában. A mérésekben mindkét megoldást alkalmaztuk.

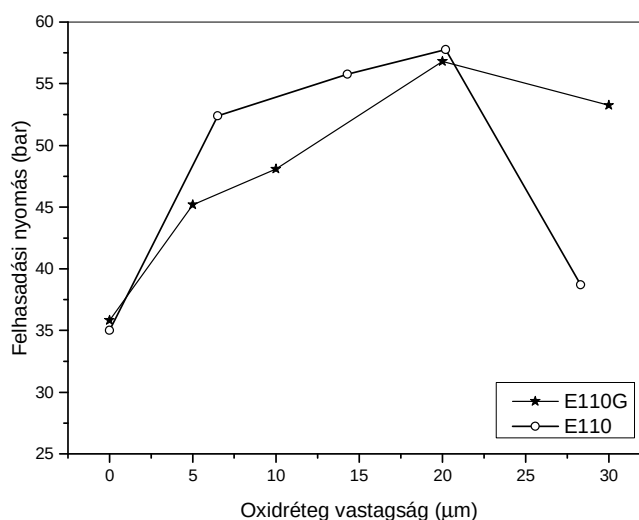
Az előoxidált mintadarabokkal végzett méréseknek megvan az az előnyük, hogy az oxidáció mértéke ismert a mérés előtt, továbbá az inert atmoszférában végrehajtott felfúvódásos szakaszban nem történik további oxidáció.



8. ábra: Oxidált E110 minták felhasadási nyomása és deformációja (700 °C, 0,03 bar/s nyomásnövelési sebesség)

A mérési eredmények rámutattak, hogy az előoxidációnak nagyon jelentős hatása van a burkolat mechanikai szilárdságára. A 8. ábrán öt olyan mintadarab látható, amelyek 700 °C-on, 0,03 bar/s nyomásnövelési sebességgel végzett mérésekben hasadtak fel különböző mértékű előoxidáció után. Az oxidálatlan minta 70 bar nyomáskülönbségnél hasadt fel, míg a 10-20 μm vastag oxidréteggel rendelkező minták felhasadására 100 bar fölött került sor. A nagyobb mértékű oxidáció már nem vezet magasabb felhasadási nyomáshoz, hanem a fűtőelem burkolatának sérülése alacsonyabb nyomáson következik be. Az oxidréteg növekedésével csökken a burkolat képlékenysége, amit jól jelez a deformáció mértékének a csökkenése is.

Az előoxidált burkolatok felfúvódásakor a külső, rideg oxidréteg általában felrepedezett. Az előoxidált minták esetében az E110G burkolatnál is azt tapasztaltuk, hogy az oxidréteg megjelenése az ötvözet felkeményedéséhez vezet. Ennek hatására néhány mikrométeres oxidréteg-vastagság 10–20 bar-ral növelte a felhasadási nyomást az oxidálatlan mintákhoz képest. Az E110 ötvözethez hasonlóan az E110G esetén is az látható, hogy a felhasadási nyomás 20 μm vastagságnál maximumot ér el, majd a további oxidáció a felhasadási nyomás csökkenését idézi elő. Ez a maximális nyomásérték a két ötvözet esetében nagyon hasonló volt (9. ábra).



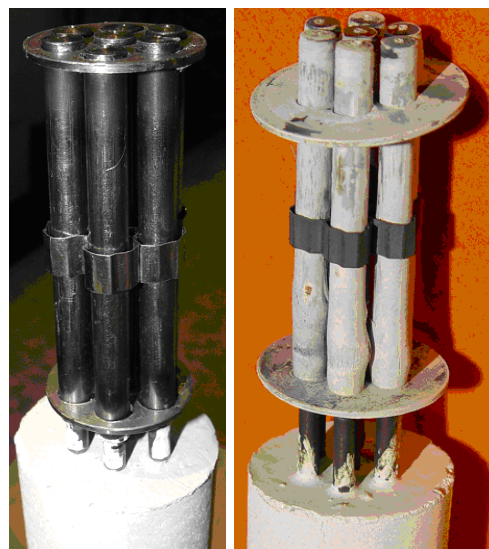
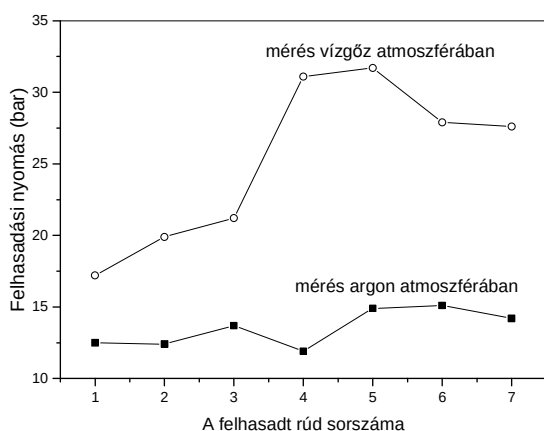
9. ábra: Előoxidált E110G mintáról készült közeli felvétel a felhasadás után (bal) és felhasadási nyomás az előoxidált E110G és E110 burkolatokkal, 800 °C-on, 0,025 bar/s nyomásnövelési sebességgel végzett felfúvódásos kísérletekben az oxidréteg vastagságának függvényében (jobb).

A burkolat felkeményedését azokban a kísérletekben is tapasztaltuk, ahol a burkolat oxidációja és felfúvódása egy időben történt (1. táblázat V. oszlopában jelzett mérések). A 10. ábrán két, távtartóráccsal ellátott köteggel, hasonló körülmények között (1000 °C és 0,1 bar/s) végzett mérés eredményeit mutatom be. Az egyes rudak nyomásának növelése ebben az esetben szekvenciálisan történt: az adott rúd nyomását azután kezdtük el növelni, hogy az előző rúd felhasadt.

- Az argon atmoszférában végrehajtott referencia mérésben a felhasadások 12,4 bar és 15,1 bar között léptek fel (10. ábra), ami az ilyen típusú kísérletekben a mérési bizonytalanságnak felel meg.
- Vízgőz atmoszférában a folyamatos oxidáció miatt jelentős eltérést tapasztaltunk a rudak sérülési nyomásában: az első rúd viszonylag alacsony nyomáson sérült (17,2 bar), de a későbbi rudaknál az elridegedés hatására nőtt a sérülési nyomás (31,7 bar). Végül az utolsó rudaknál (5600 és 6000 s oxidációs idő után) már olyan rideg volt a burkolat, hogy a sérülés ismét alacsonyabb nyomásnál (27,6 bar) lépett fel.

A 10. ábra grafikonján jól látható, hogy a vízgőzben végrehajtott mérésben jóval magasabb felhasadási nyomások léptek fel, mint az argon atmoszférában végrehajtott mérés esetén. Az oxidáció hatására a felfúvódás, és így a köteg

elzáródásának mértéke is csökkent az argon atmoszférában végrehajtott méréshez képest.



10. ábra: Sérülési nyomás a 7 rúdból álló, távtartóráccsal ellátott kötegekkel végzett kísérletekben, valamint az argonban és vízgőzben hőkezelt mintákról készített fényképfelvételek

2.4.4. A nyomásnövelés ütemének hatása

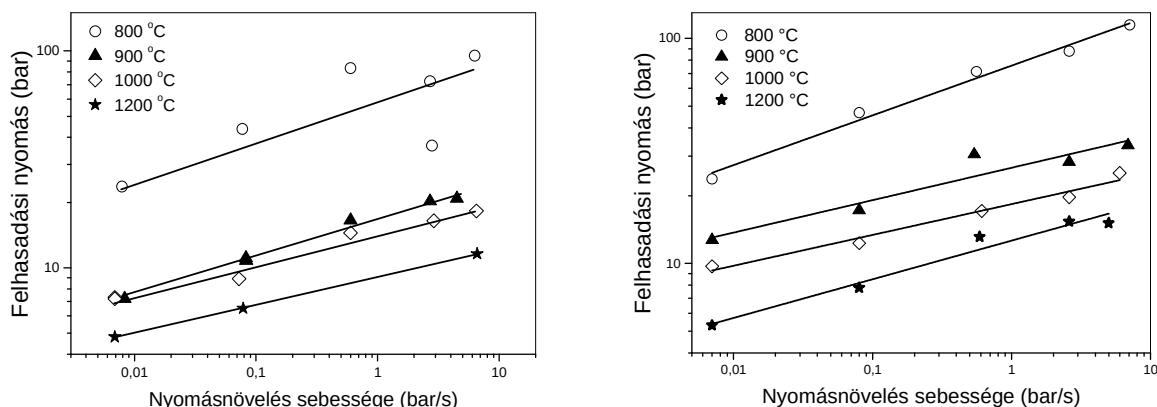
Különböző üzemzavari események esetén jelentős eltérések várhatóak a primerköri nyomás csökkenésének ütemében. A primerköri csővezeték 200%-os (kétoldali kifolyással járó) törése esetén a hűtőközeg lefúvatásával nagyon gyorsan csökken, míg kisebb átmérőjű csövek törése esetén sokkal lassúbb a nyomásvesztés. A nyomáscsökkenés mértékével ezért mindenképpen számolni kell az üzemzavarok előrejelzésekor és a modellek kidolgozásához kísérleti adatok szükségesek.

A hazai felfúvódásos mérésekben az egyik legfontosabb paraméternek a nyomásnövelés sebességét tartottuk, ennek értéke több nagyságrendet is változott az egyes esetekben.

A kísérletek rámutattak, hogy a lassú nyomásnövelés hatására viszonylag alacsony nyomáson hasadt fel a burkolat. A gyors nyomásnövelés viszont magas felhasadási nyomást eredményezett. Például a 800 °C-on 0,0079 bar/s nyomásnövelési sebességgel végrehajtott mérésben az E110 burkolat 23,7 bar nyomáson sérült meg, míg ugyanezen a hőmérsékleten a minta 6,3 bar/s-os nyomásnövelési sebesség esetén 95,2 bar túlnyomásnál hasadt fel. A gyors terhelés esetén a burkolat nem tudja követni képlékeny alakváltozással a nyomáskülönbség változását, ezért jön létre sokkal magasabb nyomás.

A mérések nem csak jelezték, hogy a cirkónium ötvözetek érzékenyek az alakítási sebességre, hanem a mért adatok alapján lehetővé vált olyan numerikus modellek kifejlesztése, amelyek figyelembe tudják venni a nyomásnövelés sebességét is. A megfigyelések összhangban vannak azzal a jól ismert ténnyel is, hogy az alakítási sebesség növelésével növekednek a fémek szilárdsági jellemzői.

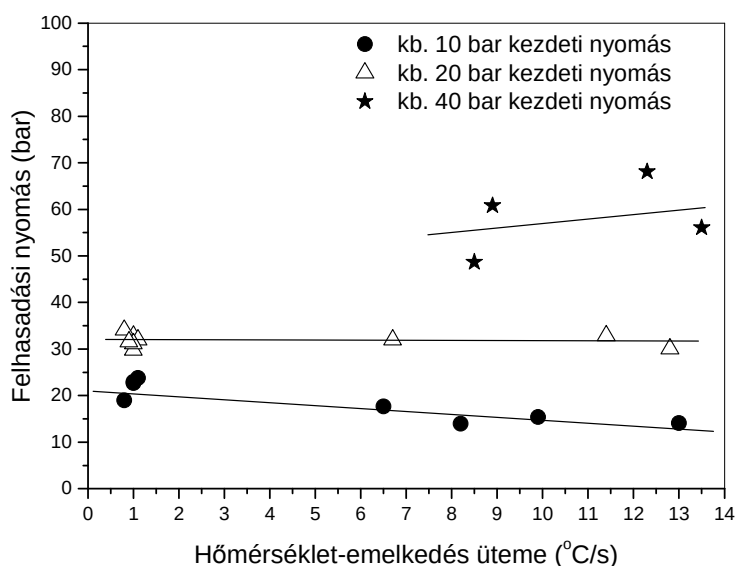
A 11. ábrán látható mérési pontok is jelzik, hogy az E110G ötvözet – a 2.4.2. fejezetben leírtakkal összhangban – valamivel magasabb nyomáson hasadt fel, mint az E110.



11. ábra: Felhasadási nyomás a különböző nyomásnövelési sebességekkel végzett mérésekben E110 (bal) és E110G (jobb)

2.4.5. A hőmérséklet-emelkedés ütemének hatása

A hőmérséklet-emelkedés hatását is vizsgáltuk néhány kísérletben (az 1. táblázat II. és IV. oszlopa), mivel az üzemzavarok során ez a paraméter is különböző értékekkel jellemezhető. Az E110 burkolattal végzett mérések a 1-13,5 °C/s hőmérsékletnövelési sebességet fedték le. Az eredmények szerint ennek a paraméternek a fenti hőmérséklettartományban nincs jelentős hatása a burkolat felhasadására. A 12. ábrán a 10, 20 és 40 bar kezdeti nyomással feltöltött mintadarabok felhasadási nyomása látható a hőmérsékletnövelés sebességének függvényében. A hasonló kezdeti nyomással feltöltött minták felhasadási nyomása nem különbözött számottevően a különböző hőmérséklet-növelési sebességekkel végzett mérésekben.

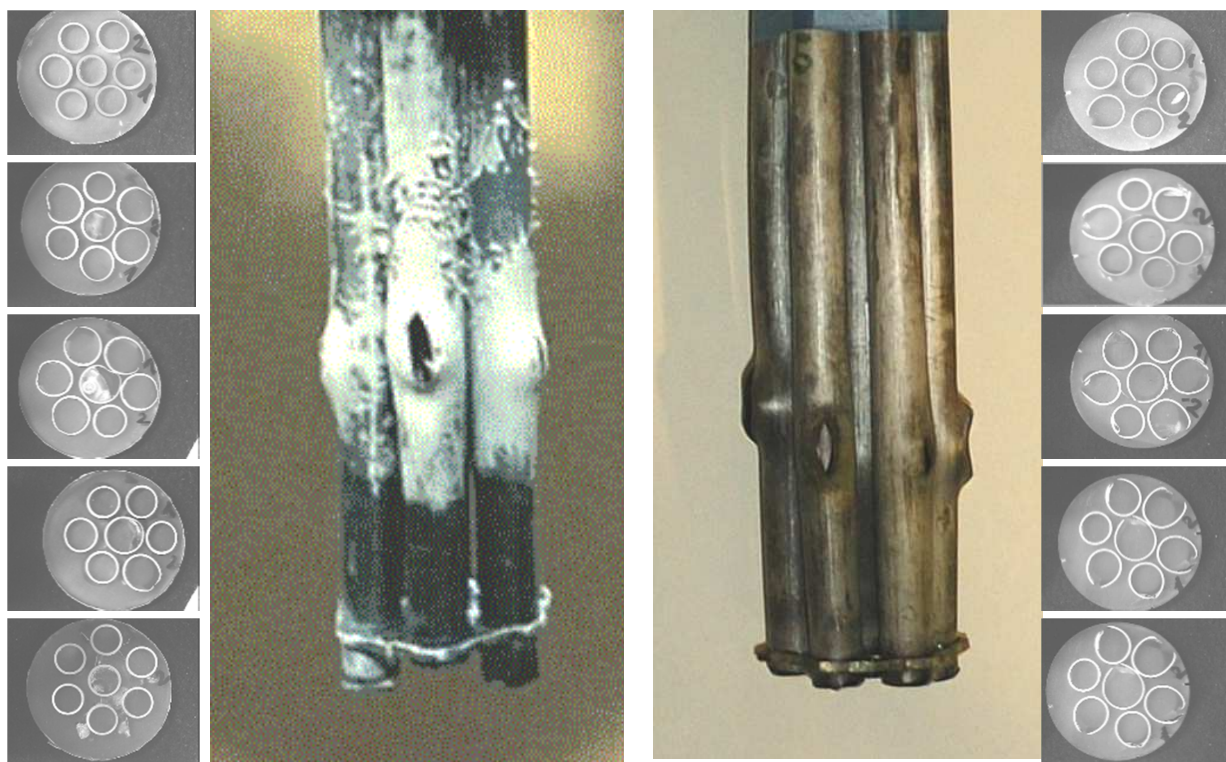


12. ábra: E110 minták felhasadási nyomás a különböző hőmérsékletnövelési sebességekkel végzett mérésekben

2.4.6. A felfúvódott köteg elzáródása

Az egy rúddal végzett felfúvódásos kísérletekben, a felhasadt burkolat deformációját jellemző kerületi nyúlás mértéke elérte a 80–90%-ot is. Ezzel a kerülettel a burkolat eredeti 65 mm^2 -es keresztmetszete 200 mm^2 -re nő. Ha figyelembe vesszük, hogy az egy fűtőelemre jutó hűtőközeg áramlási keresztmetszet a VVER-440 kazettákban kb. 64 mm^2 , akkor arra a következtetésre lehetne jutni, hogy az említett mértékű deformáció az áramlási csatorna teljes mértékű elzáródásához vezethet. A valóságban 80–90%-os elzáródás egy kazetta belsejében nem jöhet létre, mivel 34%-os deformációnál a fűtőelemek már összeérnek és a szomszédos rudak között mechanikai kölcsönhatás jön létre, ami korlátozza a további felfúvódást.

A VVER kazetta – a fűtőelemek felfúvódása miatt bekövetkező – elzáródásának vizsgálatára végzett kísérletsorozatban, a 7 rúdból álló kötegekben a fűtőelemek felfúvódása és felhasadása mindig a legmelegebb szakaszon, azonos magasságban következett be. Így a minták keresztmetszetének vizsgálatával meg tudtuk határozni a felfúvódás, illetve a köteg elzáródásának mértékét.



13. ábra: Vízgőzben (bal) és argonban (jobb) vizsgált E110 kötegek képe a felhasadás után.

Az elzáródás tipikus értéke 40–50% volt (a 100%-os érték felel meg a hűtőcsatornák nominális keresztmetszetének). A legnagyobb mértékű elzáródást (76%-ot) abban az esetben kaptunk, amikor a mérést argon atmoszférában végeztük el és a rudak kezdeti nyomása a legmagasabb volt (30 bar). Argon atmoszférában a cirkónium burkolat nem oxidálódott, így a felhasadásig képlékeny maradt. A vízgőzös

oxidáció hatására a cirkónium ötvözet képlékenysége csökkent, így kisebb deformáció jött létre a felhasadásig.

Az orosz PARAMETER kísérleti berendezésben is vizsgálták – a magyar kísérletekkel gyakorlatilag egy időben – a VVER köteg elzáródását egy 19 rúdból álló kötegben és ők is azt tapasztalták, hogy 80%-nál nagyobb mértékű elzáródás nem jött létre [45][46].

VVER geometriában a felfúvódott kötegek hűthetőségét egy másik kísérletsorozatban, elektromosan fűtött, 19 rúdból álló köteggel végzett mérésekkel igazoltuk. A kísérleti kötegen a felfúvódást a burkolatra felhelyezett speciális hüvelyekkel szimuláltuk. A gőzben felfűtött köteget hideg vízzel árasztottuk el. A felfúvódást szimuláló szűkítők hatására a hűtővíz nehezebben jutott át a pálcák között, de ez csak bizonyos ideig tartó késést okozott. A VVER geometriai elrendezésű köteg a legnagyobb (86%) elzáródás esetén is hűthető maradt [S7].

2.4.7. A távtartórács hatása

A távtartóráccsal szerelt felfúvódásos mintákkal végzett mérések eredményeiből több fontos következtetést is le lehetett vonni.

Ha a fűtőelem felfúvódásos sérülése a távtartórács környékén jön létre, akkor a burkolat felhasadása később és esetleg nagyobb nyomáson történik, mint ha a felfúvódás a fűtőelemrúd más helyén jönne létre. A 14. ábrán csak egy felfúvódás látható, ez a távtartórács alatt jött létre. Itt következett be a sérülés is. Míg a távtartórács nélküli referencia minta 1000 °C-on és 0,01 bar/s nyomásnövelési sebességgel 8,6 bar túlnyomásnál hasadt fel, addig ez a minta ugyanilyen paraméterekkel végzett mérésben 18,8 bar nyomásig őrizte meg integritását.



14. ábra: A távtartórács alatt felhasadt E110 mintadarab metszete

A távtartórács lokálisan akár meg is tudja akadályozni a burkolat felfúvódásos sérülését. A 15. ábrán jól látható, hogy a rács környékén induló deformáció nem vezetett sérüléshez (valószínűleg itt kezdődött a felfúvódás). A felhasadás végül a rácsból távolabb, egy másik felfúvódott szakaszon következett be.



15. ábra: Kettős felfúvódás egy távtartóráccsal szerelt E110 mintán

dc_1019_15

A távtartórács alatt a burkolat kevésbé tud oxidálódni, mint azon kívül. Ezért az oxidációból származó ridegedés a rácsnál kisebb mértékű lehet, mint a rudak egyéb felületén.

A kísérletek alapján belátható, hogy a felfúvódásos sérülés könnyebben jön létre a fűtőelem azon szakaszán, ahol nincs távtartórács. Ezért a biztonsági elemzésekben jelenleg is használt metodika – ami nem számol a távtartórács szerepével a fűtőelemek felfúvódásának számításakor – megfelelően konzervatívnak tekinthető.

3. A burkolat rideg sérülése, a képlékeny-rideg átmenet

A Zircaloy burkolattal kísérleteket végző amerikai kutatók már az 1960-as években megfigyelték, hogy a cirkónium ötvözetben a vízgőzös oxidáció hatására olyan szerkezeti és kémiai változások mennek végbe, amelyek elridegítik az eredetileg képlékeny fémet [48]. A burkolat a kísérletekben sok esetben eltört és ezzel felhívta a figyelmet arra, hogy a reaktorban is számítani lehet a cirkónium ötvözet rideg sérülésére. Így a burkolat sérülése jóval az ötvözet olvadáspontja alatt is felléphet – ez azért fontos, mert egyes anyagoknál (pl. rozsdamentes acél) csak az olvadáspont közelében kell számolni a szerkezeti anyagok tönkremenetelével.

A cirkónium magas hőmérsékleten történő elridegését tapasztalták a TREAT és SPERT-CDC kutatóreaktorokban végzett RIA kísérletekben is [12]. A mérések rámutattak, hogy üzemzavari állapotokra jellemző magas hőmérsékletű vízgőzös oxidáció során a cirkónium burkolat elveszítheti képlékenységét. Mechanikai vagy termikus terhelés hatására a fémben repedések keletkezhetnek és ez elvezethet a burkolat felrepedéséhez, töréséhez [49].

A rideg sérülés elkerülésére a biztonsági kritériumok korlátozzák a maximálisan megengedhető burkolat hőmérsékletet (angol terminológia szerint *Peak Cladding Temperature* – PCT) és az oxidáció mértékét (*Equivalent Cladding Reacted* – ECR). Ezeket a kritériumokat először 1973-ban az USA-ban fogadták el [5], és értékükre 1200 °C PCT-t és 17% ECR-t adtak meg. A kritériumokat oxidált Zircaloy-4 burkolatok gyűrűtöréses vizsgálatai alapján állapították meg [50]. Később hasonló LOCA kritériumokat vezettek be sok más országban is különböző Zr ötvözetekre.

Az oxidációs kritérium megalapozásához különböző országokban különböző kísérleti eljárásokat használnak:

- A gyűrűtöréses eredményekből következtetni lehet arra, hogy milyen mértékű oxidációnál lép fel a burkolatban a képlékeny-rideg átmenet, amit számos országban a LOCA elridegési kritérium megalapozásának tekintenek. A módszer egyszerű, az eredmények jól reprodukálhatóak és a mérés során felvett diagramokból eléggé egyértelműen meg lehet határozni a mintadarab állapotát. A viszonylag egyszerű eljárással sok mérést lehet végezni szerény ráfordítás mellett is, így a fontos paraméter tartományok jól lefedhetőek. Az eljárás erősen konzervatív, hiszen nem foglalkozik azzal, hogy milyen terhelések léphetnek fel a LOCA üzemzavar során, hanem egyszerűen nem engedi meg azokat az állapotokat, ahol a rideg sérülés bekövetkezhet.
- Más országokban olyan integrális mérésekből származtatják a kritériumot, amelyekben modellezik a LOCA esemény során várható összes fontos jelenséget. Erre az eljárásra jellemző, hogy képlékenységgel már nem rendelkező oxidált minták is épnek minősülhetnek, ha az elárasztással járó terhelések során nem sérülnek meg. Ilyen módszerekkel alapozták meg Japánban az ECR kritériumot és a Magyarországon használt orosz E110 burkolatra is így határozta meg az orosz szállító az oxidáció megengedhető mértékét. Az eljárás egyik érzékeny kérdése, hogy mikor tekintik a burkolatot sérültnek. A burkolat eltörhet az oxidáció során vagy az azt követő lehűtés alatt, de a berendezés szétszerelésekor vagy a minta vizsgálata közben is. A burkolaton néha csak kisebb repedések keletkeznek, máskor pedig darabokra esik szét. Az eljárás meglehetősen összetett és az eredmények kiértékelése sem teljesen egzak.

Több kísérlet jelentős különbségeket mutatott az oxidált Zr ötvözetek mechanikai tulajdonságai között [10][51][52][53][54]. Egységes módszerek kidolgozására több javaslat is született az utóbbi években, évtizedekben, de széleskörű bevezetésük nem történt meg [53][55][56][57].

Magyar szempontból fontos volt, hogy a nálunk használatos orosz fűtőelemek burkolatát megvizsgáljuk olyan módszerekkel is, amelyeket az eredeti amerikai kritériumok bevezetéséhez használtak. Ez lehetővé tette a Zircaloy-4 közvetlen összehasonlítását az orosz E110 és E110G burkolatokkal.

A hazai mérési adatok fontos információkat szolgáltatottak a Zr burkolat elridegedéséről, oxidációjáról és hidrogénfelvételéről. A nálunk alkalmazott kiértékelési eljárásoknak, módszereknek kedvező nemzetközi visszhangjuk is volt [49].

3.1. A kísérletek fő paraméterei

Gyűrűtöréses méréseket nyolc sorozatban végeztünk E110, Zircaloy-4 és E110G burkolatokkal (2. táblázat).

Mérési sorozat	I.	II.	III.	IV.	V.	VI.	VII.	VIII.
Ötvözet	E110	Zircaloy-4	E110	Zircaloy-4	E110G	E110	E110G	E110
A mérések végrehajtásának éve	2000		2010		2010-2011			
Mintadarabok száma	24	24	9	9	36	35	12	12
Az oxidáció hőmérséklete (°C)	900-1200		1100-1200		600-1200		900-1100	
Vízgőz atmoszférában oxidált mintadarabok száma	24	24	9	9	36	35	-	-
Hidrogéndús vízgőz atmoszférában oxidált mintadarabok száma	-	-	-	-	-	-	12	12
Szobahőmérsékleten végzett gyűrűroppantásos mérések száma	24	24	9	9	30	29	12	12
135 °C-on végzett gyűrűroppantásos mérések száma	-	-	-	-	6	6	-	-

2. táblázat: A gyűrűroppantásos mérések áttekintő táblázata

Az egyes mérési sorozatok fő jellemzői a következők voltak:

- I. E110 ötvözetrel hajtottuk végre az első sorozatot. 24 darab mintát vízgőz atmoszférában oxidáltunk 900 °C és 1200 °C közötti hőmérsékleteken [S9],
- II. Zircaloy-4 ötvözetrel referenciaméréseket hajtottunk végre, a 24 mintadarabot vízgőz atmoszférában oxidáltuk 900 °C és 1200 °C között [S9],

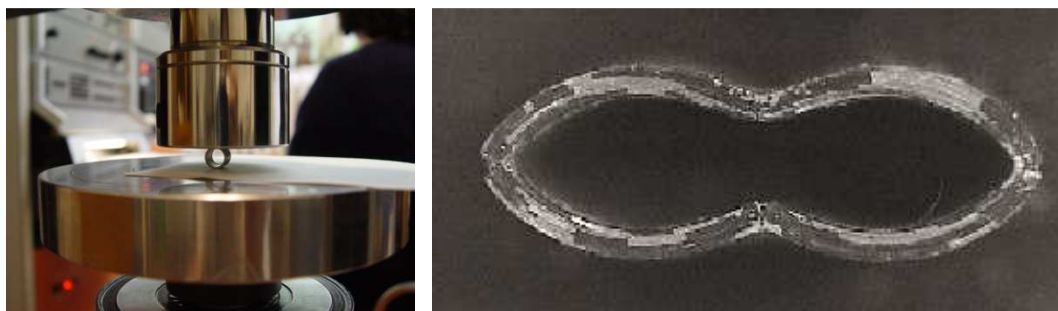
- III. külön mérési sorozatra került sor az E110 ötvözet elridegedésének vizsgálatára az 1200 °C-os maximális hőmérséklet közelében 9 mintadarabbal,
- IV. összehasonlító mérések történtek Zircaloy-4 ötvözzel az 1200 °C-os maximális hőmérséklet közelében 9 mintadarabbal,
- V. az E110G ötvözet megjelenése után, tiszta vízgőzben 600 °C és 1200 °C között oxidált, 36 darab mintát teszteltünk, a gyűrűtöréses vizsgálatok egy részét 135 °C hőmérsékleten hajtottuk végre [S5],
- VI. újabb szállítmányból származó E110 mintákkal újabb sorozatot hajtottunk végre, a 35 darab minta oxidációja 600 °C és 1200 °C között történt, a gyűrűtöréses vizsgálatok egy részét 135 °C hőmérsékleten hajtottuk végre [S5],
- VII. 12 darab E110G mintát 900 °C és 1100 °C között, hidrogéndús vízgőzben történt oxidáció után vetettünk alá gyűrűtöréses tesztnek [S5],
- VIII. 12 darab E110 mintát 900 °C és 1100 °C között, hidrogéndús vízgőzben történt oxidáció után vetettünk alá gyűrűtöréses tesztnek [S5].

3.2. Kísérleti módszerek: oxidáció és mechanikai vizsgálatok

A cirkónium ötvözetek oxidáció hatására történő elridegedésének vizsgálatára végzett mérésekben eredeti burkolatcsőből levágott 8 mm hosszú gyűrűket használtunk. A mintadarabokat áramló vízgőz atmoszférában, magas hőmérsékleten oxidáltuk. Az oxidációhoz függőleges és vízszintes elrendezésű csökemencéket használtunk kvarc béléscsővekkel. A vízszintes kemencében egy kisméretű kvarccsónakban helyeztük el a mintadarabokat, míg a függőleges kemencében a mintadarabok fel voltak függesztve. A kemencék belső részén – ahol az oxidáció történt – egyenletes hőmérséklet eloszlást lehet létrehozni 1-2 °C pontossággal. A kemencéhez csatlakozó gőzfejlesztőt úgy állítottuk be, hogy a kemence belsejében ne tudjon kialakulni gőzszegény állapot, azaz az oxidáló közeg hiánya miatt ne lassuljon le az oxidáció sebessége. A minták tömegét az oxidáció előtt és után 0,01 mg pontossággal megmértük. A cirkónium mintadarabok oxidációjának mértékét az ECR mennyiséggel jellemezzük, ami megadja, hogy a fém eredeti tömegének (pontosabban a burkolat eredeti vastagságának) hány százaléka oxidálódott, feltételezve, hogy az oxidáció során kizárólag cirkónium-dioxid keletkezett.

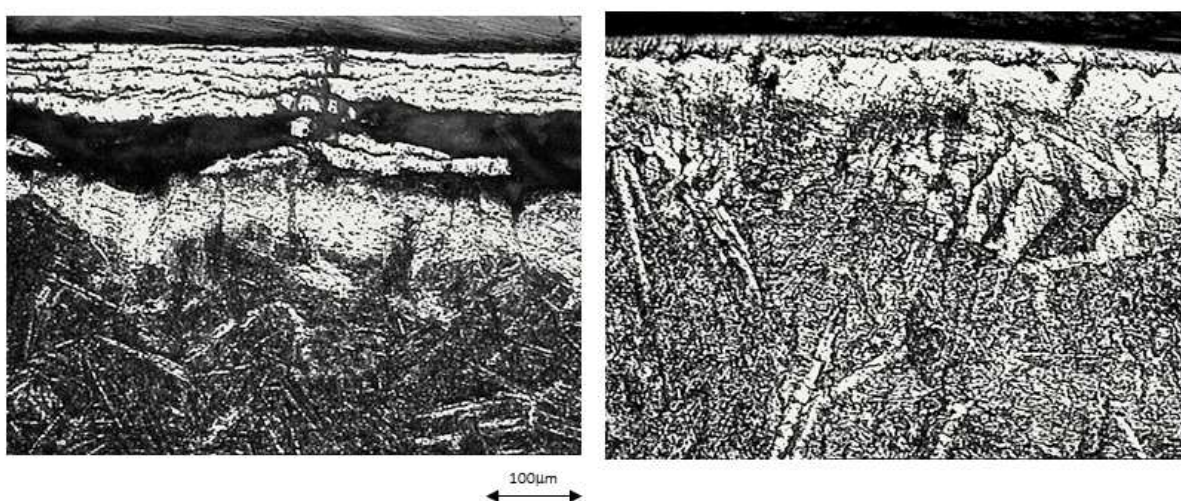
Az oxidált minták mechanikai vizsgálata közvetlen információkat szolgáltat az ötvözet elridegedésének mértékéről. Az oxidált mintákkal radiális gyűrűtöréses vizsgálatokat végeztünk egy INSTRON 1195 típusú univerzális szakítógépen. Két párhuzamos nyomólap között nyomtuk a gyűrűket az első repedés megjelenéséig. A vizsgálat során a keresztfej sebessége állandó, 0,5 mm/min vagy 2 mm/min volt (a keresztfej sebessége tapasztalataink szerint nem befolyásolta az eredményeket). A mérés során felvett erő-elmozdulás diagramokat az adatgyűjtő rögzítette. A mechanikai tesztek többségét szobahőmérsékleten hajtottuk végre.

A hazai mérési sorozatokban néhány mintát 135 °C-on roppantottunk el annak érdekében, hogy a kapott adatokból látható legyen a két hőmérsékleten végzett mérések közötti különbség. A 135 °C-os méréseknél a szakítógéphez egy speciális elektromos fűtőmodult kellett csatlakoztatni, ami lehetővé tette szobahőmérsékletnél magasabb hőmérsékletek beállítását is.



16. ábra: 8 mm-es gyűrű roppantása szobahőmérsékleten (bal) és a mintadarab képe a mechanikai teszt után (jobb)

A gyűrűtörés után forró extrakciós eljárással meghatároztuk a mintadarabokban abszorbeált hidrogén mennyiségét. A minták anyagszerkezetét optikai mikroszkópos és elektronmikroszkópos módszerek segítségével jellemeztük.



17. ábra: 1000 °C-on 3600 s ideig oxidált E110 (bal) és E110G (jobb) burkolat metszetéről készített metallográfiai felvétel

3.3. A mérések eredményei

A mérések eredményei közül, az oxidált burkolat állapotáról a legfontosabb információt a gyűrűtöréses mérések erő-elmozdulás diagramjai jelentik. Az alábbiakban néhány illusztrációval szeretném jelezni, hogy milyen effektusok léptek fel ezekben a mérésekben. A diagramok kiértékelésének módszereivel, illetve az összes mérési pontból levonható következtetésekkel a 3.3 és 3.4 fejezetekben foglalkozom.

3.3.1. Az oxidáció mértéke

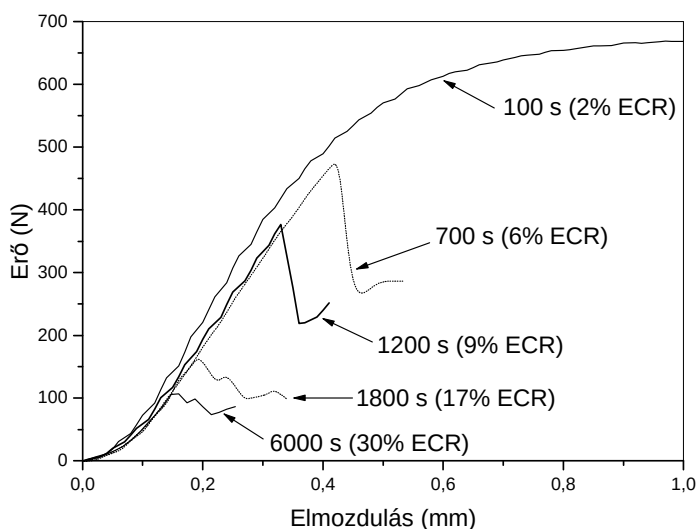
A LOCA üzemzavarok során a hőmérséklet általában meghaladja a cirkónium ötvözetek fázisátmeneti tartományát. Az eredetileg hexagonális szoros illeszkedésű α -fázisból 600-900 °C között térközepes köbös β -fázis jön létre. A vízgőzös oxidáció

következtében a burkolat felületén oxidréteg képződik és az oxigén egy része bediffundál a fémbe. Az oxidréteg alatt, a magas oxigéntartalom hatására a β -réteg visszaalakul és oxigéndús α -réteg képződik. A magas hőmérsékletű oxidációt követő lehűtés során a burkolat belsejében képződött β -réteg α -fázisba történő visszaalakulását az ún. Widmanstätten-féle szerkezet megjelenése kíséri. Így a szobahőmérsékletű vizsgálatokban is jól megállapítható, hogy a burkolat melyik része volt korábban β -fázisban [4]. A burkolat képlékeny részét a középső, korábbi β -réteg adja, amelynek vastagsága az oxid- és az oxigéndús α -rétegek fejlődésével csökken. A képlékenységet tovább ronthatja az oxidációt kísérő hidrogénfelvétel is, mivel a korábbi β -réteg képlékenysége a hidrogéntartalom növekedésével romlik. A cirkónium burkolat elridegedését általában az oxidáció mértékével szokták közvetlen kapcsolatba hozni. Ezért vezették be az erre vonatkozó LOCA oxidációs kritériumot [6].

A mérési adatok szerint az oxidálatlan burkolat olyan mértékben képlékeny, hogy a gyűrűtöréses tesztekben gyakorlatilag teljesen össze lehet lapítani.

Az oxidációs hatás jól megfigyelhető a 18. ábrán, ahol öt, különböző mértékben oxidált E110 mintadarab erő-elmozdulás diagramja látható. Mind az öt mintadarabot 1000 °C-on oxidáltuk, a mechanikai vizsgálatok pedig szobahőmérsékleten történtek.

100 másodperces oxidáció (2% ECR) után a burkolat még képlékeny alakváltozást mutatott a gyűrűtöréses vizsgálat során. Az ennél hosszabb oxidációs idők után a burkolat már rideg törést szenvedett. Az egyre nagyobb mértékű oxidációval egyre csökkent a burkolat teherbíró-képessége, amit a maximális erő jelez a görbékben.



18. ábra: 1000 °C-on különböző ideig oxidált E110 minták gyűrűroppantásos vizsgálatának diagramjai

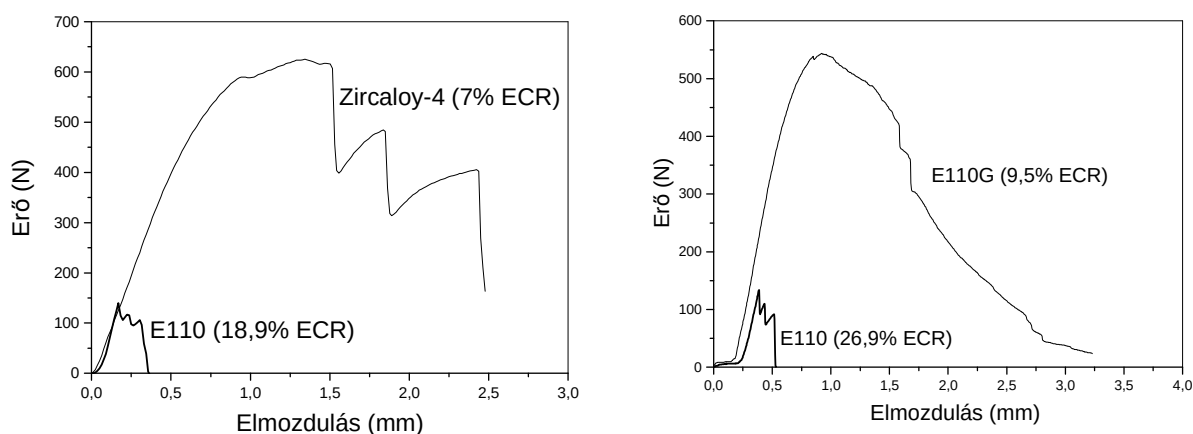
Ilyen jellegű hatás valamennyi vizsgált burkolattípusnál megfigyelhető volt és az egyes burkolatok között is jelentős különbségek voltak. Alacsony hőmérsékleteken (600–700 °C) nem értük el a rideg állapotot több órás oxidációval sem. 1100–1200 °C hőmérsékleteken viszont néhány perc után elvesztette a képlékenységet a burkolat.

3.3.2. Az E110, az E110G és a Zircaloy-4 ötvözetek jellemző viselkedése

Az első összehasonlító vizsgálatokat a Zircaloy-4 és E110 burkolattal végeztük. Az E110 burkolat elridegedése jellemzően kisebb mértékű oxidációnál lépett fel, mint a Zircaloy-4 esetében. Néhány hőmérséklet és oxidációs idő tartományban különösen nagyok voltak a különbségek. A 19. ábrán látható, hogy 900 °C-on 1100 s-ig oxidált Zircaloy-4 és E110 burkolatok között mind a maximális terhelést, mind a görbék jellegét tekintve szembetűnő különbség van. A Zircaloy-4 minta 600 N erő fölött előbb képlékeny alakváltozást szenvedett és csak 1,5 mm elmozdulás után tört el. Az E110 burkolat ezzel szemben valamivel 100 N fölött rideg törést szenvedett. Az eltérő viselkedésnek elsősorban az az oka, hogy az E110 mintadarab oxidációjának mértéke (18,9%) jelentős meghaladta a Zircaloy-4 mintadarabét (7%).

Az E110G burkolat érkezése után az E110 ötvözzel végzett összehasonlító vizsgálatok ugyancsak minőségi különbséget mutattak. A tiszta vízgőzben 1000 °C-on egy óráig oxidált E110G burkolat még jelentős képlékenységgel rendelkezett és 500 N-nál nagyobb terhelést is kibírt. A vele együtt oxidált E110 minta kb. 100 N erőnél törött el a szobahőmérsékleten végzett gyűrűroppantás során (19. ábra). Az E110 és E110G mintadarabok közötti különbséget is elsősorban a különböző mértékű oxidáció magyarázza. Az E110 oxidációjának mértéke 26,9%, míg az E110G ötvözeté 9,5% volt.

Az E110 burkolat oxidációja során rétegesen felhasadt oxidrétegek jönnek létre (17. ábra), ami megkönnyíti a hidrogén bejutását a fémbe. Az E110 nagymértékű elridegedésének másik oka a jelentős mértékű hidrogénfelvétel. A 19. ábra baloldali grafikonján szereplő E110 mintadarab hidrogéntartalma 2990 ppm, míg a jobboldali grafikonon látható E110 burkolaté 3990 ppm volt, miközben a két grafikonon látható E110 és Zircaloy-4 mintákban a hidrogéntartalom a 100 ppm-s mérési határ alatt maradt.



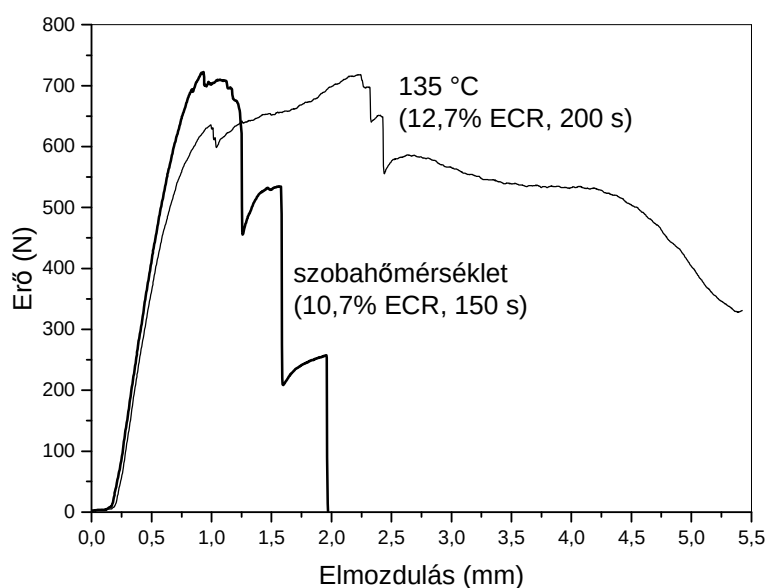
19. ábra: Tiszta vízgőzben 900 °C-on 1100 s-ig oxidált Zircaloy-4 és E110 mintákkal (bal) és 1000 °C-on, 3600 s-ig oxidált E110 és E110G mintákkal (jobb) szobahőmérsékleten végzett gyűrűtörési mérések erő-elmozdulás görbéi

3.3.3. A gyűrűtörés hőmérséklete

Az oxidációs kritérium megalapozásához az USA-ban végzett kísérletekben az oxidált cirkónium gyűrűket 135 °C-on roppantották el. Ennek az eredeti indoka az volt, hogy a feltételezett LOCA üzemzavar során a hűtőközeg nyomása a reaktorban 3 bar-ra csökken, amihez 135 °C telítési hőmérséklet tartozik. Azóta is számos laboratóriumban ezen a hőmérsékleten végzik a LOCA kritériumok megalapozásához szánt kísérleteket. A fémek képlékenysége a hőmérséklet növekedésével javul, azaz magas hőmérsékleten a burkolatot kevésbé rideg viselkedés jellemzi. Így a szobahőmérsékleten végzett mérések konzervatív megközelítést jelentek. A 135 °C-nál alacsonyabb hőmérsékletű mérések alapján következtetni lehet arra is, hogy a lehűtést követő műveletek során milyen állapotban lesz a fűtőelemek burkolata. A hazai mérések többségét szobahőmérsékleten hajtottuk végre, de néhány mérésre sor került 135 °C-on is.

A szobahőmérsékleten és 135 °C-on roppantott minták összevetése alapján a szobahőmérsékleten felvett görbék jelentősen ridegebb viselkedést jeleztek. Erre mutat egy példát a 20. ábra, ahol 1200 °C-on oxidált minták görbéi láthatóak. A rövidebb ideig oxidált mintánál a rideg letörés jóval előbb jelentkezett, mint a hosszabb ideig oxidált, de 135 °C-on roppantott mintánál.

Ez a megfigyelés összhangban van azzal, hogy a szobahőmérsékletű mérések konzervatívnak tekintendők a 135 °C-os teszteléshez képest.



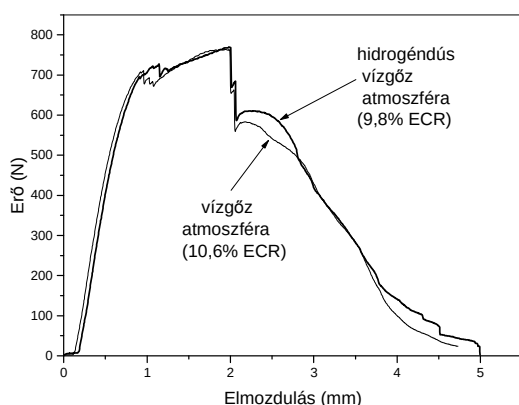
20. ábra: Tiszta vízgőzben, 1200 °C-on, 150 és 200 másodpercig oxidált E110G minták, 135 °C-on és szobahőmérsékleten felvett erő-elmozdulás görbéi

3.3.4. Az oxidáló atmoszféra összetétele

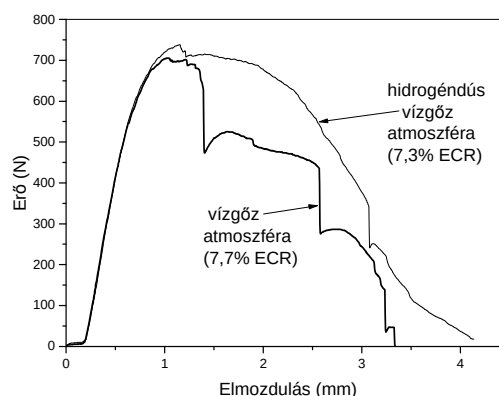
Az E110 és E110G ötvözetekkel több párhuzamos mérést is végeztünk tiszta vízgőzben és hidrogéndús vízgőz atmoszférában. A két ötvözet különböző módon viselkedett:

- Az ugyanannyi ideig és ugyanolyan hőmérsékleten, tiszta vízgőzben és hidrogéndús vízgőzben oxidált E110G minták nagyon hasonló viselkedést mutattak: a szakítógépes vizsgálat során felvett görbék szinte teljesen megegyeztek egymással (21. ábra). A hidrogén jelenléte szemmel láthatóan nem fokozta az E110G burkolat elridegését. A 21. ábrán látható mintadarabok oxidációjának mértéke 9,8% és 10,6% volt, hidrogéntartalmuk nem érte el a 100 ppm-et.
- Az oxidált E110 minták között bizonyos különbségek láthatóak. Az 1100 °C-on 400 másodpercig oxidált minták maximális terhelése közel ugyanaz volt a gyűrűtörés során, de a tiszta vízgőzben oxidált minta esetében határozottabb letöréseket látunk (22. ábra). Mindkét minta esetében létrejött a képlékeny plató a rugalmas alakváltozás után, így mind a két minta képlékenynek tekintendő. A 22. ábrán látható mindarabok oxidációjának mértéke 7,3% és 7,7% volt, a hidrogéntartalom ezeknél a mintáknál sem érte el a 100 ppm-et.

Ezekből a megfigyelésekből arra lehet következtetni, hogy a hidrogén felhalmozódása az atmoszférában az üzemzavar során nem vezet nagyobb mértékű elridegedéshez, mint ha a cirkónium oxidációja tiszta vízgőzben játszódik le. A fém hidrogénfelvétele a hidrogéndús atmoszférában fokozódhat, de ezzel párhuzamosan az oxidáció intenzitása csökken. A két folyamat kompenzálja egymást, ezért nem tapasztaltunk fokozott elridegést a hidrogéndús atmoszférában.



21. ábra: Hidrogéndús és tiszta vízgőzben 1100 °C-on, 400 másodpercig oxidált E110G minták szobahőmérsékleten felvett erő-elmozdulás görbéi



22. ábra: Hidrogéndús és tiszta vízgőzben 1100 °C-on, 400 másodpercig oxidált E110 minták szobahőmérsékleten felvett erő-elmozdulás görbéi

3.4. A kísérleti adatok kiértékelése

A cirkónium burkolattal végzett gyűrűtöréses vizsgálat nagyon hasonló a porkohászati gyártmányok radiális törőszilárdságának meghatározására elfogadott szabványos eljáráshoz [58]. A fűtőelemek burkolatához használt csövek méretei adottak és az elridegési vizsgálatok célja, hogy erre a geometriára értékeljék az oxidáció hatását. A 0,65-0,70 mm vastag cirkónium csövekkel végzett vizsgálatok nem tekinthetők szabványosnak, mivel a próbatestekre előírt legalább 2 mm-es falvastagsággal nem volt értelme méréseket végezni. A vizsgálati berendezésre és a

vizsgálati eljárásra vonatkozó szabványos követelményeknek megfeleltek a gyűrűtöréses mérések.

A gyűrűtöréses vizsgálat során erő-elmozdulás görbéket vesznek fel, amelyek alapján értékelni lehet a minták mechanikai viselkedésének jellemzőit. A vizsgált anyag terhelés alatti viselkedését általában jól jellemzi a felvett görbe alakja:

- ha a rugalmas alakváltozás után képlékeny plató jelenik meg, akkor az anyag nem törik el, hanem képlékeny alakváltozás jön létre,
- ha a rugalmas alakváltozás után a görbe letörik, akkor a burkolat részleges vagy teljes vastagságú átrepedése lépett fel rideg állapotban.

A görbék alakja alapján általában el lehet dönteni, hogy egy adott minta rideg vagy képlékeny viselkedést mutatott a terhelés során.

A 23. ábrán látható görbesereg az E110 minták gyűrűtöréses vizsgálata során felvett erő-elmozdulás diagramokat mutatja. A görbék jól azonosíthatóan besorolhatóak a „rideg” és „képlékeny” kategóriákba.

Egy kísérletsorozat kiértékelésével – az egyes minták besorolása alapján – meg lehet határozni a képlékeny-rideg átmenet jellemző körülményeit. Ez azért fontos a cirkónium burkolat szempontjából, mert ha az oxidált anyag a képlékeny tartományban marad, akkor ki lehet zárni a rideg sérülést. Érdemes megjegyezni, hogy a rideg anyag is jelentős teherbíró képességgel rendelkezhet, tehát nem sérül meg feltétlenül kis terheléseknél. Ugyanakkor a LOCA kritérium származtatásánál – konzervatív módon – ki lehet zárni a megengedhető tartományból a rideg állapotokat.

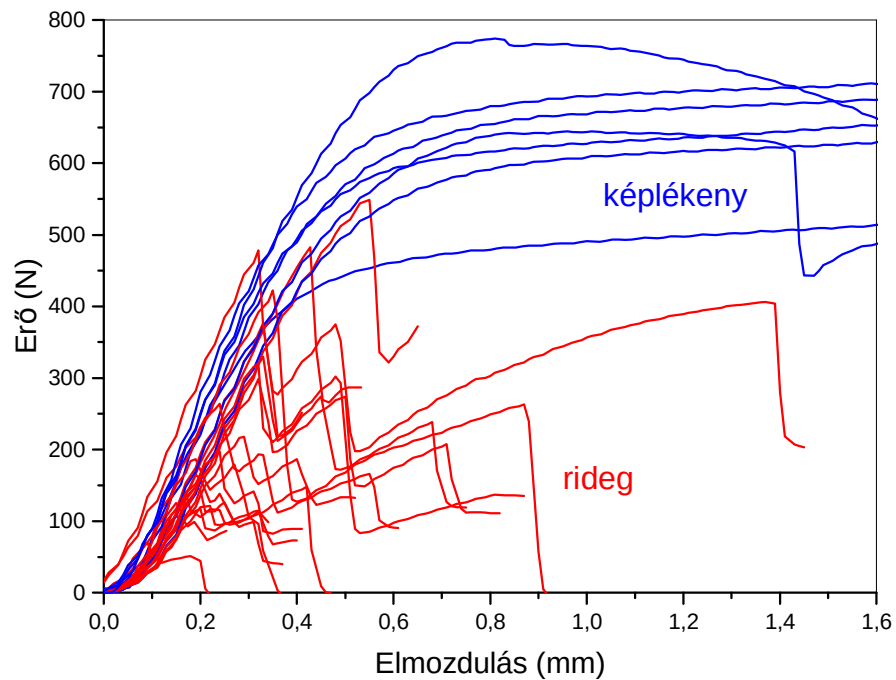
A görbe alakján túl, fontosak az adott mérésre jellemző – a görbéről leolvasható vagy a görbe alapján számítható – egyéb paraméterek is. Ezeket a paramétereket a 24. ábrával illusztrálom. Az erő-elmozdulás görbék kiértékelése sok tekintetben megegyezik a fémek szakítóvizsgálatára előírt szabványos eljárásokkal [59].

- A maximális terhelés mutatja, hogy milyen erőnél ment tönkre a mintadarab. A képlékeny mintákat általában nagy maximális terhelés jellemzi, de a kismértékben elridegedett mintáknál is kaphatunk a képlékenyhez hasonló, vagy akár azt meghaladó maximális terhelést is. A nagyon rideg minták már kis terhelésnél eltörnek.
- Az elmozdulás a sérülésig elsősorban azt mutatja, hogy milyen mértékű méretváltozást szenvedett a mintadarab a tönkremenetelig, de magában foglalja azt a kezdeti fázist is, amikor a mintadarab és a szakítógép felülete között kialakul a kontaktus. Ez a paraméter akkor használható az anyag jellemzésére, ha a kezdeti fázis nagyon hasonló egy mérési sorozaton belül. Az elmozdulásból relatív elmozdulást lehet származtatni, amely egyszerűen – százalékos értékek bevezetésével – használható az anyag jellemzésére.
- A maradó alakváltozásnak az az előnye az elmozdulással szemben, hogy nem tartalmazza az erő-elmozdulás görbe rugalmas alakváltozáshoz tartozó szakaszát és a görbe azon első részét, amely a szakítógép és a minta közötti kontaktus kialakulásához kapcsolódik: a diagramnak csak a képlékeny részét foglalja magába. A relatív maradó alakváltozást megkapjuk, ha a 24. ábrán jelölt maradó alakváltozást elosztjuk a minta eredeti, gyűrűroppantás előtti külső átmérőjével.
- A sérülési energia a görbének az átrepedést jelző letörésig terjedő szakaszának az integrálja. A letörési pont sok esetben megegyezik a maximális erővel. Ez a paraméter arról ad információt, hogy mekkora energiára van szükség ahhoz,

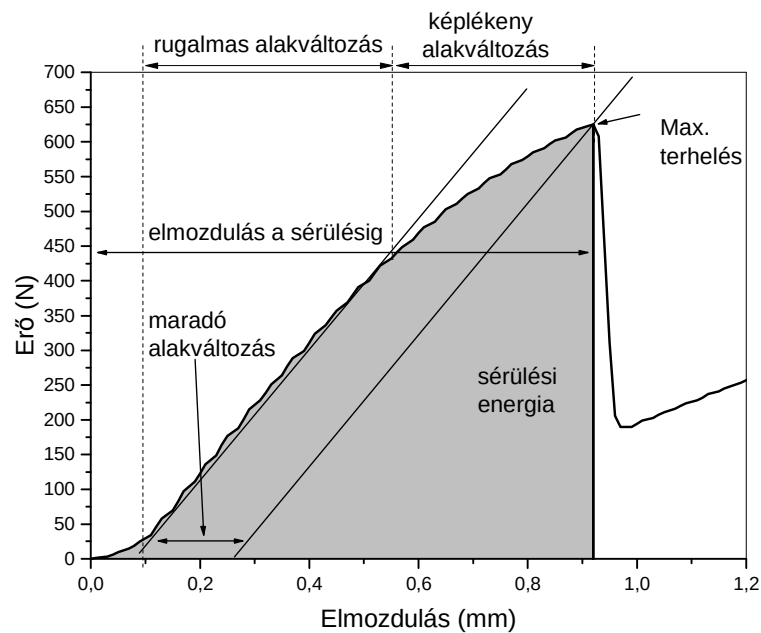
dc_1019_15

hogy a burkolat eltörjön. (Hasonló paramétert használnak a reaktortartály-acél sugárzás által okozott elridegedésének jellemzésére is [60].)

- A különböző hosszúságú minták összehasonlíthatóságának érdekében vezettük be a fajlagos sérülési energiát, ami a törésig mért teljes energiának a gyűrű egységnyi hosszára vonatkozó hányada.



23. ábra: Különböző mértékben oxidált E110 minták gyűrűtöréses vizsgálatának erő-elmozdulás diagramjai

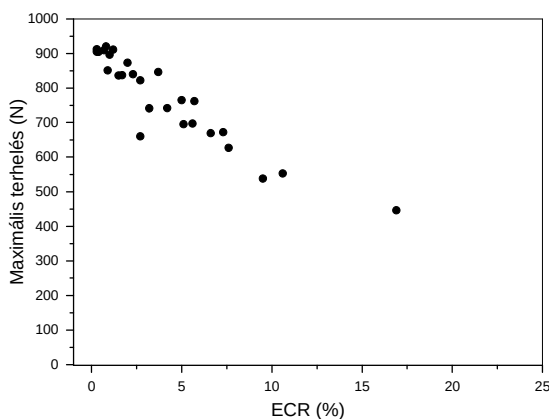


24. ábra: A törési jellemzők meghatározása az erő-elmozdulás görbe alapján

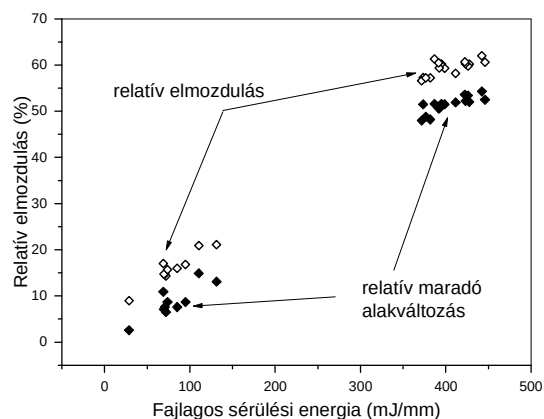
Az erő-elmozdulás görbék néhány esetben bonyolultabbak a 24. ábrán jelzett esethnél: több kisebb letöréssel is rendelkezhetnek, amelyek pl. az oxidréteg sérülését, lepattanását jelentik és nem feltétlenül a burkolat teljes vastagságának az átrepedését. Ezért a maximális erő kb. 30%-nál kisebb letöréshez általában nem szokták hozzárendelni a minta sérülését, azaz csak az annál nagyobb letörésnél adják meg az előzőekben említett paramétereket.

A relatív elmozdulás, a maradó alakváltozás és a sérülési energia hasonló jelleget mutatott az oxidált cirkónium gyűrűkre. Ez nyilvánvaló, hiszen ez a három paraméter nem független egymástól. Különböző országokban és laboratóriumokban nem egyformán értékelik ki az erő-elmozdulás görbéket [55][11][56][57]. Egy egységes eljárás kidolgozása többször felmerült, de még nem fogadtak el szabványos eljárást. Az MTA EK-ban elsősorban a fajlagos sérülési energiát használjuk az oxidált cirkónium ötvözetek mechanikai teherbíró képességének jellemzésére.

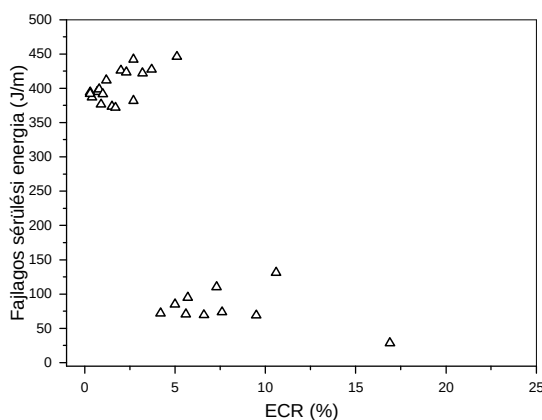
A maximális terhelés értéke az oxidáció növekedésével jelentősen csökkent a gyűrűroppantásos mérésekben. A vízgőzben oxidált E110G minták roppantására jellemző maximális terheléseket a 25. ábrán tüntettem fel.



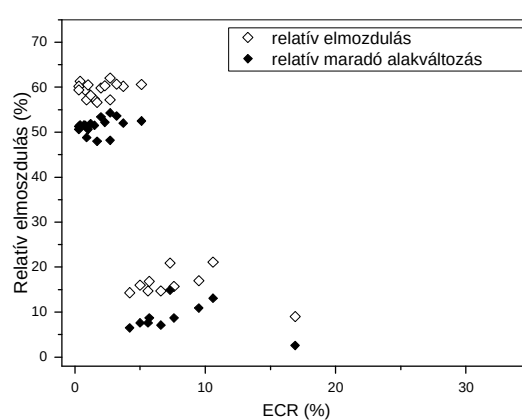
25. ábra: Maximális terhelés a vízgőzben oxidált E110G minták roppantásakor szobahőmérsékleten



26. ábra: A relatív elmozdulás és a relatív maradó alakváltozás a fajlagos sérülési energia függvényében



27. ábra: Fajlagos sérülési energia a vízgőzben oxidált E110G minták roppantásakor szobahőmérsékleten



28. ábra: Relatív elmozdulás és a relatív maradó alakváltozás a vízgőzben oxidált E110G minták roppantásakor szobahőmérsékleten

A relatív megnyúlás és a relatív maradó alakváltozás közel egyenesen arányos a fajlagos sérülési energiával, ami jól mutatja a három különböző paraméter közötti szoros kapcsolatot (26. ábra).

A fajlagos sérülési energia, a relatív megnyúlás és a relatív maradó alakváltozás ugyancsak csökken az oxidáció mértékének növekedésével (27. és 28. ábra). Az utóbbi két paraméter között kisebb eltolódás van: a relatív elmozdulás minden esetben nagyobb, mint a relatív maradó képlékenységi. A 27. és 28. ábrán a pontok jellemzően két csoportban vannak: egy felső csoportot képeznek azok a minták, amelyek képlékenységi maradtak a gyűrű teljes összenyomásáig, az alsó csoportban pedig azok a minták vannak, amelyek eltörtek a mechanikai terhelés következtében.

A teljesen képlékeny viselkedést 400–500 J/m nagyságú fajlagos sérülési energia és 50% körüli relatív maradó alakváltozás jellemzi. A 100-150 J/m fajlagos sérülési energiával és 10–20% relatív maradó alakváltozással jellemzett minták még nem tekinthetők ridegnek, mivel a rugalmas alakváltozást náluk még egy képlékeny szakasz követi a minta törése előtt. A teljesen rideg mintákat néhány J/m fajlagos sérülési energia és egy-két % relatív maradó alakváltozás jellemzi. Tehát az oxidált cirkóniumra jellemző képlékeny-rideg átmenetet a 27. és 28. ábrák alsó pontthalmazaiból kell megállapítani.

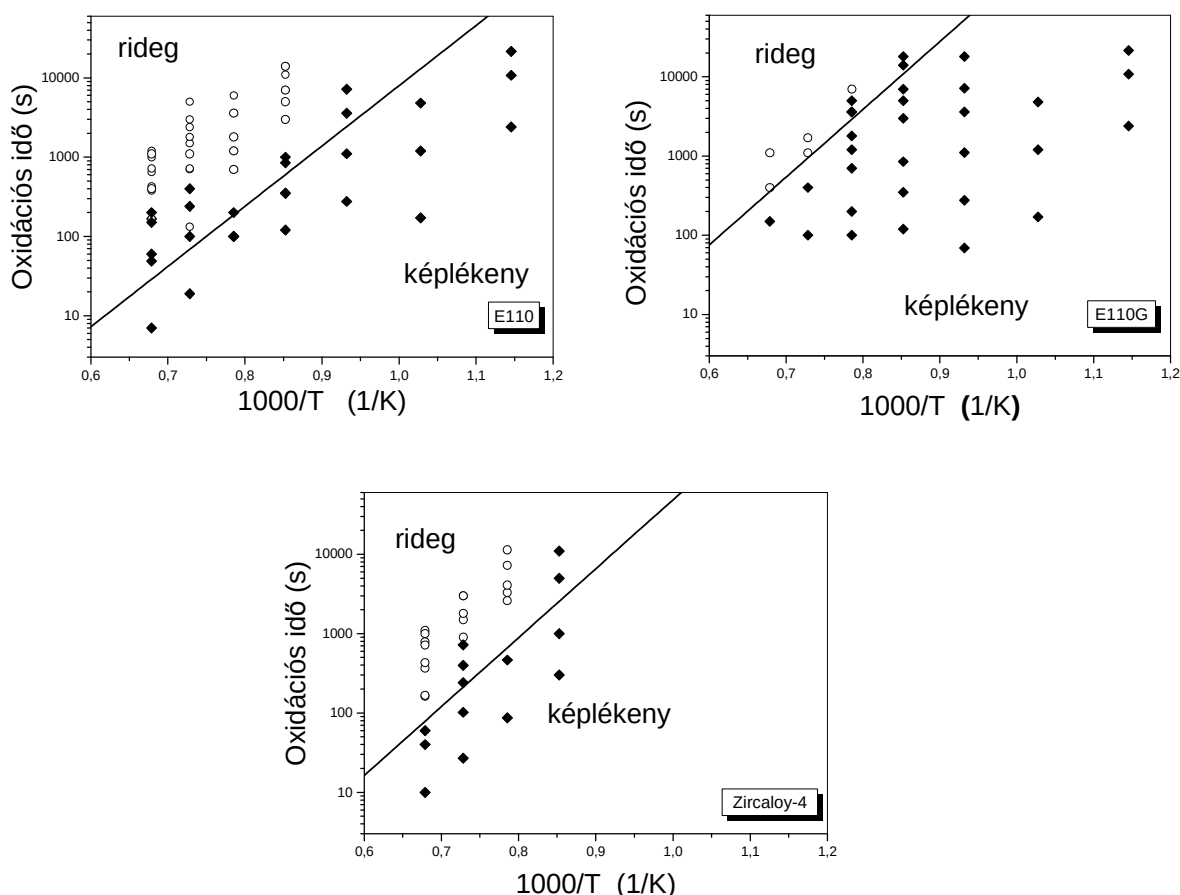
A végrehajtott kísérletekből származó mérési pontokat szemlélve világos volt, hogy a ≈ 10 J/m-es érték rideg mintákat jelez, míg a 200-300 J/m-es értékek a képlékeny tartományban vannak. A mért adatok kiértékelése azt mutatta, hogy a vizsgált ötvözetek képlékeny-rideg átmenetének meghatározására az 50 J/m-es küszöbérték jól használható. A rideg oxidált minták ennél kisebb energiánál, míg a képlékenységi ennél nagyobb energiánál törtek el.

3.5. Az E110, E110G és a Zircaloy-4 ötvözetek képlékenységi határai

Az 50 J/m képlékeny-rideg átmenetet jelző értéket használva és figyelembe véve a görbék alakját, a kísérleti pontokat két csoportba sorolhatjuk az alábbiak szerint:

- Képlékeny minták (a fajlagos sérülési energia > 50 J/m, illetve képlékeny platóval rendelkező minták)
- Rideg minták (a fajlagos sérülési energia < 50 J/m, illetve képlékeny platóval nem rendelkező minták).

A minták besorolása után az E110, az E110G és a Zircaloy-4 minták gyűrűtöréses vizsgálatának adatait a 29. ábrán tüntettem fel az oxidációs idő és az oxidációs hőmérséklet reciprokának függvényében. Ezután meghatároztam azt az alsó burkoló görbét, ami konzervatív módon megadja a képlékeny-rideg átmenetre az oxidációs idő és az oxidációs hőmérséklet kapcsolatát. A görbe alatt csak képlékeny mintáknak megfelelő pontok találhatóak, míg fölötté van az összes rideg pont és néhány képlékeny is. Ha egy adott hőmérsékleten az oxidáció időtartama rövidebb, mint a korlát, akkor nem várható rideg sérülés. Az ábrákon látható egyenes vonalakat egyszerű exponenciális függvényekkel le lehet írni. Az exponenciális függvény felhasználásával az elridegedés mértéke nem csak állandó hőmérsékleten, hanem tranziens körülmények között is megbecsülhető [S9].



29. ábra: Oxidált E110, E110G és Zircaloy-4 ötvözetek képlékeny-rideg átmenete gyűrűtörési mérési adatok alapján

A három ötvözetre az alábbi három függvény jelentette az alsó burkológörbékét:

E110G ötvözet:

$$t = \frac{1}{1800} e^{19700/T} \quad (1)$$

E110 ötvözet:

$$t = \frac{1}{5000} e^{17500/T} \quad (2)$$

Zircaloy-4 ötvözet:

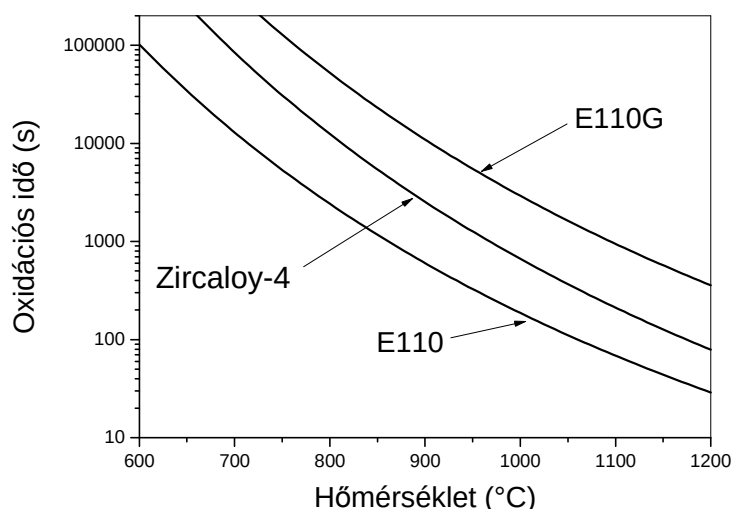
$$t = \frac{1}{10000} e^{20000/T} \quad (3)$$

ahol t – az oxidációs idő (s),

T – a hőmérséklet (K).

A három burkolat eredményeinek összehasonlítása (30. ábra) azt mutatja, hogy a Zircaloy-4 és az E110G hosszabb ideig megőrzi a képlékenységet egy adott hőmérsékleten, mint az E110 ötvözet. Az E110 és a Zircaloy-4 görbe között kb. 100°C eltolódást látunk, azaz a Zircaloy-4 burkolatot ennyivel magasabb hőmérsékleten kell oxidálni ugyanazon időtartam alatt ahhoz, hogy elveszítse képlékenységet. Az E110G és az E110 között még ennél is nagyobb eltolódást

látunk a 30. ábrán. Továbbá az E110G képlékeny-rideg átmeneti tartománya is hosszabb oxidációs időknél, illetve magasabb hőmérsékleten lép fel, mint a Zircaloy-4 ötvözeté.



30. ábra: Oxidált Zircaloy-4, E110 és E110G burkolatok képlékeny-rideg átmeneti függvényei

A képlékeny-rideg átmenet általában az anyag jellemzőinek meghatározására szolgál. A cirkónium csövek oxidációja során azonban az oxidrétegek és a burkolat belső rétegei az adott geometriára jellemző skálán jelennek meg, amelyet nem lehet más geometriára vagy mintavastagságra transzformálni. Ezért a fenti kritériumokat csak a vizsgált burkolatgeometriára lehet vonatkoztatni és nem alkalmazható például a jóval vastagabb és síklapokból álló cirkónium kazettafalra, amelynek elridegedése nyilvánvalóan hosszabb oxidációs idők után lép fel. Másrészt a fűtőelemek burkolatának geometriája (átmérő, vastagság) nem különbözik túl sokban egymástól, így a képlékenységi határokat az ugyanazon ötvözet típusból készült üzemi burkolatok általános jellemzőjének lehet tekinteni.

Az oxidált minták vizsgálatának eredményei szerint az E110 gyors elridegedését elsősorban az oxidréteg felhasadása és a felhasadást kísérő hidrogénfelvétel idézi elő. Az E110 mintákban több mint 1000 ppm hidrogén is megjelent, míg a hasonló ideig kezelt E110G és Zircaloy-4 mintákban ez az érték 100 ppm alatt maradt [S5] [S9].

3.6. Összehasonlítás az elridegedési LOCA kritériummal

A bemutatott mechanikai tesztek egyik célja a fűtőelemekre vonatkozó elridegedési kritérium megalapozása lehet. Ezért az előző fejezetben meghatározott képlékeny-rideg átmeneti függvényt célszerű összehasonlítani a kritériumnak megfelelő értékekkel.

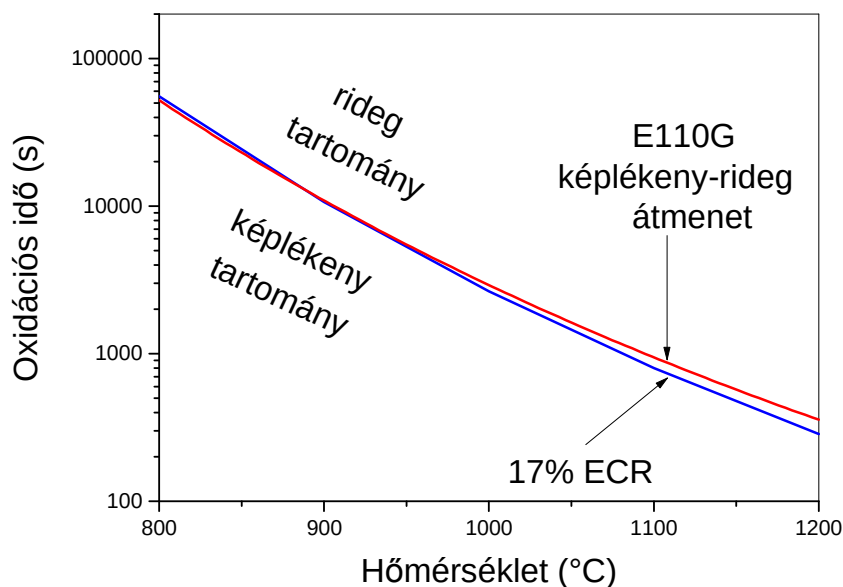
Az orosz E110 burkolat oxidációjának mértékét – a fűtőelem tervezési dokumentumai szerint – a következő konzervatív oxidációs kinetikai egyenlettel kell megadni [10]:

$$\Delta m = 920e^{(-10410/T)}\sqrt{t} \quad (4)$$

ahol Δm – a fajlagos tömegnövekedés (mg/cm^2),
 T – hőmérséklet (K),
 t – idő (s).

A (4) összefüggés alapján – az E110G csövek geometriai adatait felhasználva – meghatározható az az idő, ami az adott hőmérsékleten kétoldalú oxidációval a 17% ECR eléréshez szükséges.

A 17%-os oxidációhoz tartozó pontokat és a képlékeny-rideg átmenetre kapott függvényeket összehasonlítva azt látjuk (31. ábra), hogy 900 °C-nál magasabb hőmérsékleten az E110G burkolatra meghatározott képlékeny-rideg átmenet azután lép fel, hogy a burkolat eléri a 17%-os ECR értéket. A 900 °C alatti tartományban az oxidációs görbe valamivel a rideg-képlékeny átmenet fölött van. Az E110 burkolat rideg-képlékeny átmeneti görbéje jóval a 17% ECR-t leíró oxidációs görbe alatt van (ez a 30. és 31. ábrák alapján könnyen belátható).



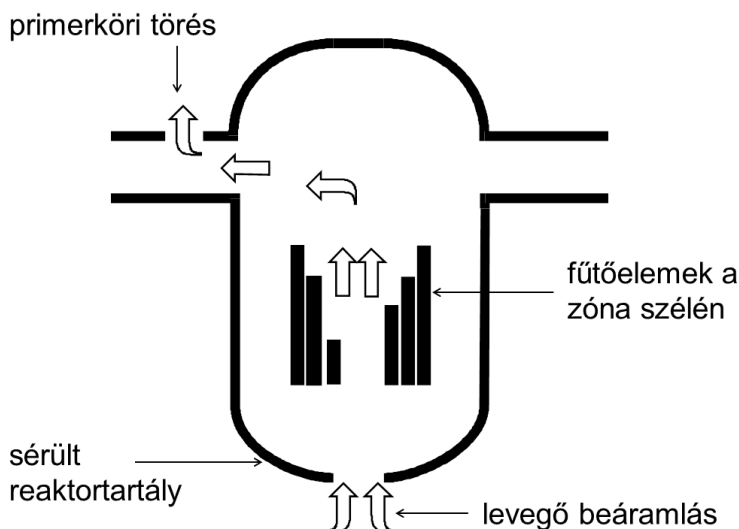
31. ábra: Az E110G képlékeny-rideg átmeneti függvény és a 17% ECR kritérium összevetése

Az orosz burkolatra vonatkozó oxidációs kritériumot eredetileg integrális mérésekből származtatták, ahol a burkolat tényleges sérülése alapján húzták meg a kritérium határait kijelölő hőmérséklet és oxidációs idő tartományt [10]. A gyűrűtöréses vizsgálatok rámutattak, hogy az E110 burkolat képlékeny-rideg átmenete jóval a 17% ECR elérése előtt bekövetkezik [S9]. Az E110G ötvözzel végzett mérések alapján viszont a szobahőmérsékletű gyűrűroppantásos vizsgálatokkal is megalapozható a 17%-os kritérium a – LOCA folyamatok szempontjából fontos – 900 °C fölötti tartományban.

4. Légbetöréses súlyos balesetek

Súlyos balesetekben a maradványhő elvezetésének hiánya miatt megnő a fűtőelemek hőmérséklete, különböző kémiai reakciók lépnek fel és megkezdődik a zóna degradációja. A zónasérülés korai – vízgőz atmoszférában lezajló – fázisát több kísérleti programban is vizsgálták. Ezek között voltak kutatóreaktorban végrehajtott kísérletek (LOFT [61], PBF [62], PHEBUS [63], FR2 [64]) és inaktív anyagokkal, elektromosan fűtött kötegekkel végzett mérések is (NIELS [65], CORA [18], CODEX [S10], QUENCH [20]). A kísérletekkel sikerült feltérképezni azokat a domináns folyamatokat, amelyek a zónaolvadás kezdeti szakaszát jellemzik. A mérési adatok lehetővé tették a súlyos baleseti folyamatok korai szakaszát szimuláló numerikus modellek fejlesztését és validálását [66].

Súlyos reaktorbalesetek késői szakaszában a reaktortartály fenekén összegyűlhet a zónaolvadék és ha nem áll rendelkezésre sem külső hűtés, sem hűtővíz a zóna reaktoron belüli elárasztásához, akkor a tartály alsó része átolvadhat. A tartályon létrejött lyukon keresztül a zónaolvadék ki tud jutni az aknába és levegő áramolhat be a primerkörbe. Ha a primerköri törés volt a baleset kezdeti eseménye, akkor a kéményhatás fokozza a levegő beáramlását. A TMI-2 balesetet követő vizsgálatok szerint a sérült zóna szélén számos kazetta megőrizte eredeti geometriáját, miközben a középső fűtőelemek megolvadtak és a tartály alján olvadékmedence jött létre [67]. Ennek alapján feltételezhető, hogy a tartállysérülés után is jelentős mennyiségű fűtőelem marad a zónában, ami kölcsönhatásba léphet a beáramló levegővel (32. ábra).



32. ábra: Levegő beáramlása a reaktortartály sérülése után

Az ún. légbetöréses balesetek közé tartozhatnak a nyitott reaktortartály és a pihentető medence súlyos balesetei is [68][S14]. Ha hűtővíz nem áll rendelkezésre az után, hogy a hűtőközeg elforrt az átrakómedencéből vagy a pihentető medencéből, akkor a csarnok vagy konténment levegője keveredik a gőzzel és a további degradáció levegős atmoszférában folytatódik.

A levegő reakciója a cirkóniummal és az üzemanyag tablettákkal új folyamatokat indít el a zónasérülésben. Ezek közül a legfontosabb az, hogy néhány hasadási termék kibocsátása jelentősen megnő. A ruténium, amely fém állapotban

van jelen a kiégett tablettákban, gőz atmoszférában még súlyos baleseti állapotokban sem kerül ki a fűtőelemekből. Levegő jelenlétében viszont gáznemű ruténium-oxidok képződhetnek, amelyek jelentősen növelik a radioaktív kibocsátást [69][S21][S22]. Az urán-dioxidból levegő jelenlétében az urán nagyobb oxidációs számú oxidjai képződhetnek. A cirkóniummal a levegő intenzívebb reakcióba lép, mint a vízgőz. Míg a vízgőzös oxidáció



során 6,5 MJ/kg hő képződik, addig az oxigén reakciója



12 MJ/kg hőfejlődéssel jár.

A levegőben található nitrogén exoterm reakciója 3,8 MJ/kg hőt termel, miközben cirkónium-nitrid képződik:



A képződő nitridek miatt az oxidréteg nem egyenletes, hanem könnyen felhasad. Ezért nitrogén jelenlétében a cirkónium oxidációja intenzívebben megy végbe, mint tiszta oxigénben [70][71].

A légbetöréses balesetek következményeinek előrejelzésére sokkal kevesebb ismeret, mérés és numerikus modell állt rendelkezésre, mint a vízgőzös atmoszférában lejátszódó jelenségek leírására. Ezért a magyar részvétellel létrejött európai OPSA projekt keretében jelentős súlyos baleseti modellfejlesztésekre került sor, amit kísérleti programok is támogattak [S11].

Az első integrális légbetöréses kísérletekre Magyarországon került sor a CODEX berendezésen. Két kísérletben a reaktortartály sérülését követő légbetöréskor a zóna szélén maradt fűtőelemekben fellépő jelenségeket szimuláltuk [S13]. A légbetöréses CODEX mérések célja a reaktor aktív zónájában, vízgőzben részlegesen oxidálódott fűtőelemek degradációs folyamatainak megismerése volt a tartály sérülését követő levegőbeáramlás után.

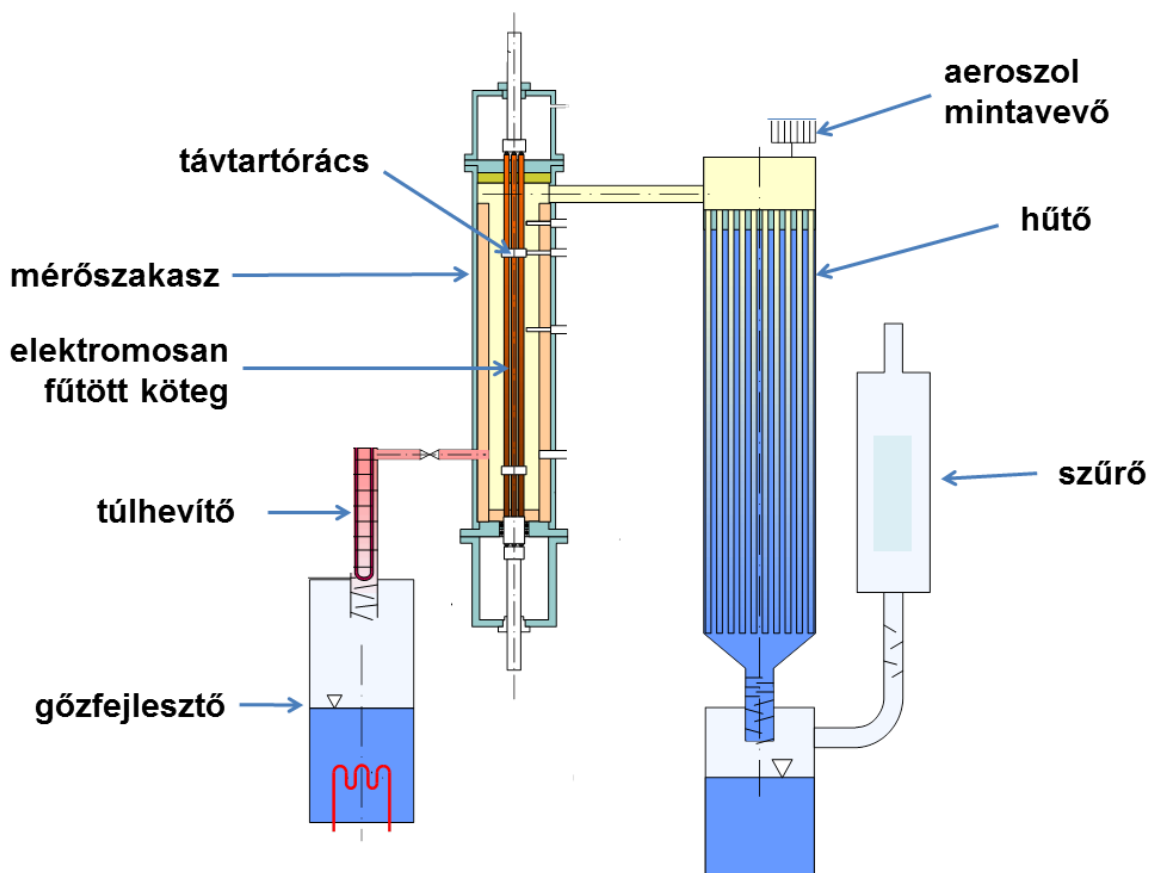
4.1. A kísérleti berendezés

A légbetöréses mérésekhez a német FZK kutatóközpontból származó Zircaloy-4 burkolatot, szegényített urán tablettákat és PWR távtartórácsot használtunk. A kísérleti köteg kilenc rúdból állt. A nyolc szélső rudat a tabletták közepén elhelyezett volfrám fűtőszállal fűtöttük. A középső rúd nem volt fűtve, a tabletta belsejében termoelemeket helyeztünk el. A köteget két távtartórács rögzítette. A köteg fűtött hossza 600 mm volt. A köteget oldalról 2 mm vastag cirkónium kazettafal zárta le. A kazettafalat háromrétegű, cirkónium-dioxid kerámiából, alumínium-oxid kerámiából és ásványgyapotból álló hőszigetelés vette körül.

A köteget tartalmazó mérőszakasz egy acéltartályban volt elhelyezve. A mérőszakasz aljához csatlakozott a gőzfejlesztő és a túlhevítő berendezés, amely gőzt és forró gázokat juttatott be a mérések alatt. Egy további csatlakozó tette lehetővé a szobahőmérsékletű levegő beadagolását (33. ábra).

A mérőszakasz felső részén kiáramló hűtőközeg a hűtőn keresztül a kondenzátorba jutott. A kilépő csomakhöz aeroszol mintavételezésre alkalmas kaszkád impaktorok kapcsolódtak, amelyeket a kísérletek különböző szakaszaiban

működtettünk. Egy külön ágon olyan, optikai elven működő lézeres részecske-számláló volt csatlakoztatva, amely folyamatosan monitorozta a kiáramló közegben található részecskék számát és nagyság szerinti eloszlását.



33. ábra: A CODEX-AIT berendezés fő részegységei

A kísérleti paramétereket számos termoelem, nyomás-, forgalom- és szintmérő műszer rögzítette. A köteg felületének hőmérsékletét két pirométerrel figyeltük. A köteg felső szakaszában külön ablakot alakítottunk ki azért, hogy videokamerán keresztül is követni lehessen a köteg tönkremenetelét. A termoelemek a fűtőelemek felületén, a nem fűtött rúd belsejében, a kazettafalán és a hőszigetelés különböző rétegeiben, több szinten helyezkedtek el, hogy részletes képet kapjunk a hőmérséklet térbeli eloszlásának változásáról.

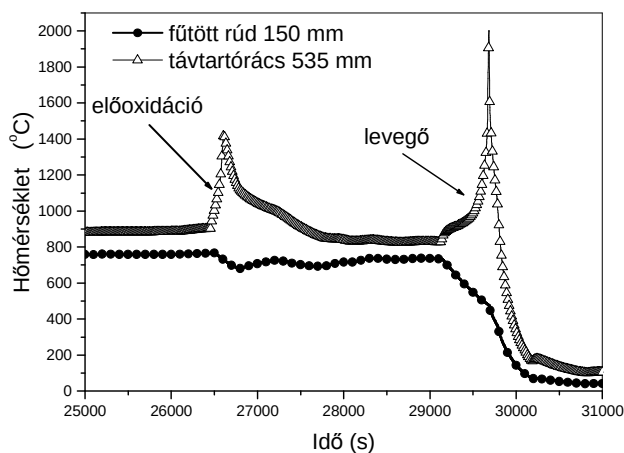
4.2. A CODEX-AIT-1 kísérlet

A CODEX-AIT-1 kísérletben arra voltunk kíváncsiak, hogy milyen hatással lesz a légbetörés a bizonyos mértékben már oxidálódott felületű fűtőelemekre. A fűtőelemek légbetörést megelőző oxidációját $\text{Ar}+25\%\text{O}_2$ keverékkel hajtottuk végre, hogy a hidrogénfejlődést elkerüljük. Ez ugyan nem jellemző a reaktorkörülményekre, de meg akartuk akadályozni, hogy a berendezésen belül robbanásveszélyes

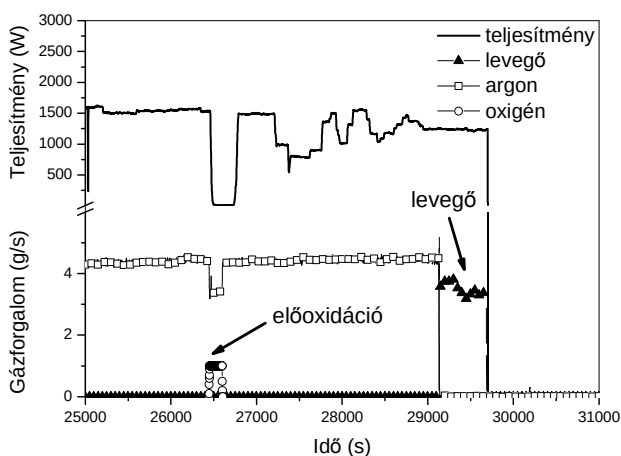
hidrogén-oxigén elegy keletkezhessen. A tervek szerint a kísérletet 2100 °C hőmérsékletnél akartuk leállítani.

A kísérlet elején a berendezést argon atmoszférában felfűtöttük és stabil kezdeti körülményeket hoztunk létre, amihez 900 °C maximális rúd hőmérséklet tartozott. Az előoxidációhoz csökkentettük az argon forgalmát és megkezdtuk az oxigén adagolását. Ezt a beavatkozást gyors hőmérsékletnövekedés követte, amit csak a teljesítmény elvételével és az oxigénadagolás megszüntetésével tudtunk megállítani. A gyors megszaladás során a felső távtartórácsnál 1500 °C-ot, néhány rúdon pedig 2000 °C-hoz közeli hőmérsékletet értünk el (34. ábra). A váratlan megszaladás után argon atmoszférában stabilizáltuk a köteg hőmérsékletét.

A kísérlet légbetöréses fázisát 900 °C maximális hőmérsékletnél, hideg levegő beáramoltatásával indítottuk el. Az argon forgalmat leállítottuk és a teljesítményt nem változtattuk (35. ábra). A szobahőmérsékletű levegő lehűtötte a köteg alsó részét, míg a felső szakaszban hőmérséklet-megszaladást idézett elő. A lehűtési fázis 2000 °C elérésekor kezdődött, kikapcsoltuk a fűtést és levegő helyett hideg argont áramoltattunk át a mérőszakaszon (34. ábra).



34. ábra: A CODEX-AIT-1 köteg alsó és felső részében mért hőmérsékletek



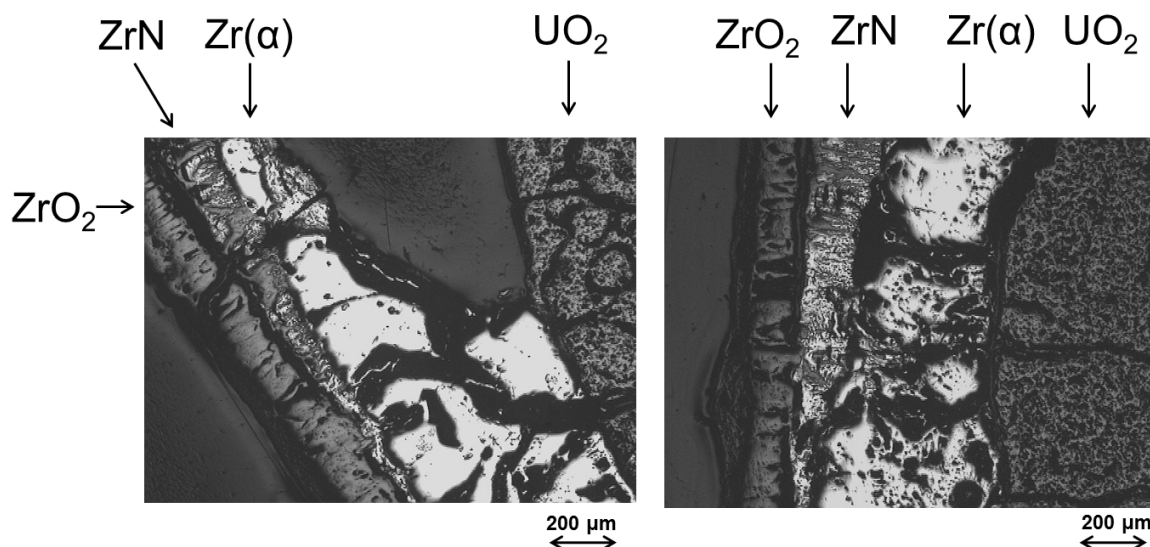
35. ábra: Teljesítménytörténet és a gázok forgalma a CODEX-AIT-1 kísérletben

A részecskeszámlálók két csúcsot jeleztek: egyet az előoxidációs, egyet pedig a légbetöréses szakaszban. Jelentős aeroszol kibocsátás volt megfigyelhető a lehűtés kezdetén is. Az impaktorokon uránban gazdag szemcséket találtunk, amelyek mennyisége alapján a teljes uránkibocsátás néhány tized μg -ra volt becsülhető.

A kísérlet után a köteget eltávolítottuk a mérőszakaszból és műgyantával töltöttük fel. A kötegből 50 mm, 150 mm, 300 mm, 450 mm, 535 mm és 555 mm magasságban csiszolt metszetek készültek, amelyeken részletes vizsgálatokat hajtottunk végre.

A megfigyelések szerint a köteg felső része erősen oxidálódott. A felső távtartórács nagyobb mértékű oxidációt szenvedett mint a burkolat, és darabokra esett szét. A fűtőelemek burkolatán is vastag oxidréteg jelent meg, de a rudak eredeti geometriája megmaradt. Az alsóbb szinteken megjelenő törmelék a távtartórácsból származott. A kazettafal mechanikai deformációt szenvedett a kísérlet során, külső és belső felülete egyaránt oxidálódott.

A metszetek metallográfiai vizsgálata rámutatott, hogy a Zr burkolaton ZrO_2 és ZrN rétegek is kialakultak (36. ábra). A két réteg jól látható módon elkülönült egymástól. Az oxidréteg vastagsága a köteg felső részében meghaladta a $200\ \mu\text{m}$ vastagságot és a nitridréteget is $100\ \mu\text{m}$ fölötti vastagság jellemezte. Az elektronsugaras vizsgálatok szerint a nitridréteg nitrogéntartalma 15% volt, ami megfelel a sztöchiometriai ZrN összetételnek.



36. ábra: Oxid- és nitridrétegek a CODEX-AIT-1 köteg burkolatán 535 mm magasságban

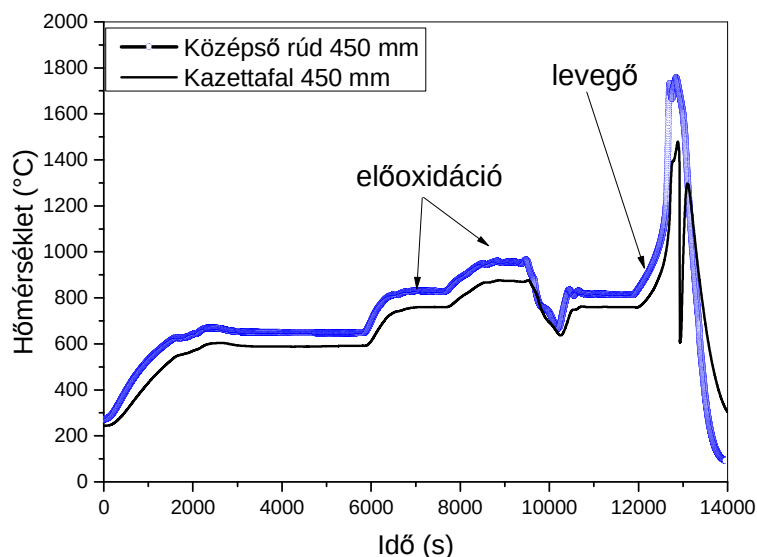
4.3. A CODEX-AIT-2 kísérlet

A CODEX-AIT-1 kísérletben a fűtőelemek jellemzően épek maradtak és csak kis mennyiségű urán tartalmú aeroszol került kibocsátásra, hiszen az UO_2 tabletták alig érintkeztek a levegővel. Ezért a következő köteggel súlyosabb degradációt próbáltunk elérni.

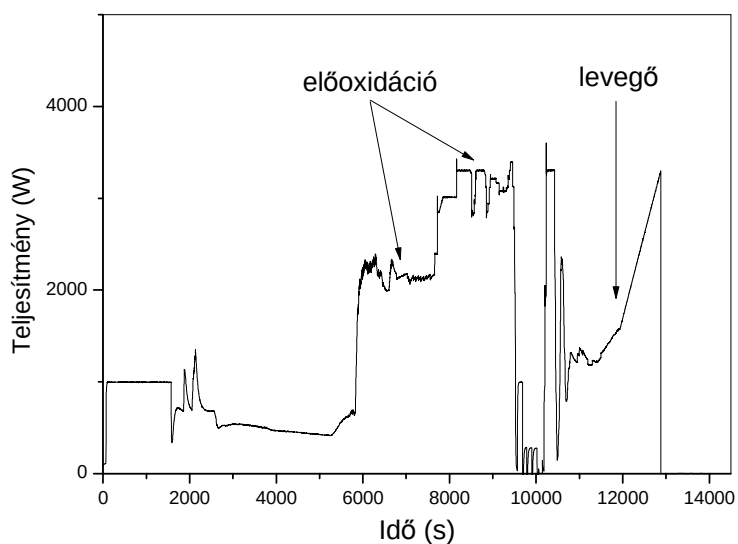
A CODEX-AIT-2 kísérletben az előoxidációt vízgőzben terveztük elvégezni. Ezzel az első kísérletben ($\text{Ar} + \text{O}_2$ atmoszférában) tapasztalt megszaladást akartuk

elkerülni. Továbbá a vízgőz reprezentívabbnak tekinthető a reaktorbaleset körülményeire

A kísérlet elején 600 °C hőmérsékletre fűtöttük fel a berendezést (37. ábra). Az előoxidáció két lépésben, 820 °C-on és 950 °C-on történt. Mindkét hőmérsékleten fél órán át tartott az oxidáció, az így létrejött oxidréteg vastagsága kb. 20-25 µm volt. Egy szelep szivárgása miatt az előoxidáció során kismennyiségű levegő is bejuthatott a mérőszakaszba, így az előoxidáció vízgőz–levegő–argon keverékben történt.

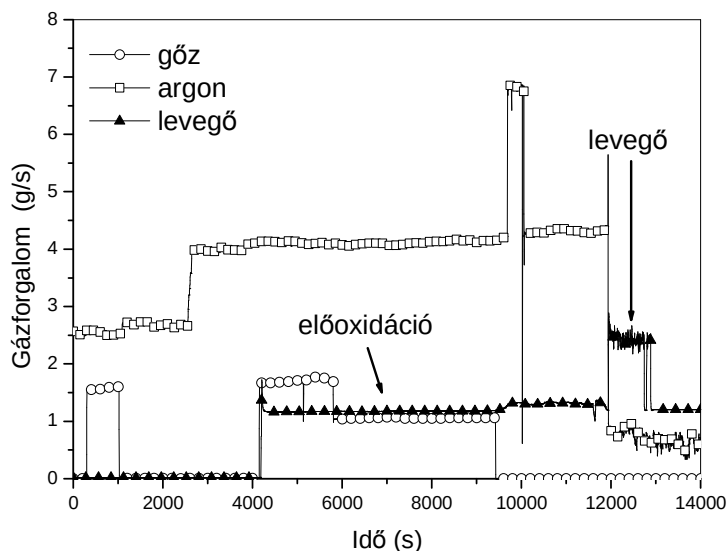


37. ábra: A kazettafal és a középső rúd hőmérséklete 450 mm magasságban a CODEX-AIT-2 mérésben



38. ábra: Teljesítménytörténet a CODEX-AIT-2 kísérletben

Az előoxidációs szakasz végén a gőzforgalmat leállítottuk és a köteget visszahűtöttük 800 °C-ra. A légbetörés szimulációja 2,5 g/s hideg levegő beáramoltatásával kezdődött, amit 2 W/s elektromos teljesítménynövelés kísért (38. és 39. ábra) A teljesítménynövelés értékét úgy választottuk ki, hogy a köteg hőmérsékletének növekedése kezdetben 0,5 °C/s legyen (ami megfelel a hűtés nélkül maradt zóna felmelegedési ütemének ebben a baleseti szakaszban).



39. ábra: Gázforgalmak a CODEX-AIT-2 kísérletben

A fűtőelemeken és a kazettafalon egyaránt hőmérséklet-megszaladás lépett fel 900 °C fölötti hőmérséklet elérése után. A maximum hőmérséklet a fűtőelemeknél 1800 °C fölött volt a fűtés kikapcsolása és a levegőáram elvétele előtt.

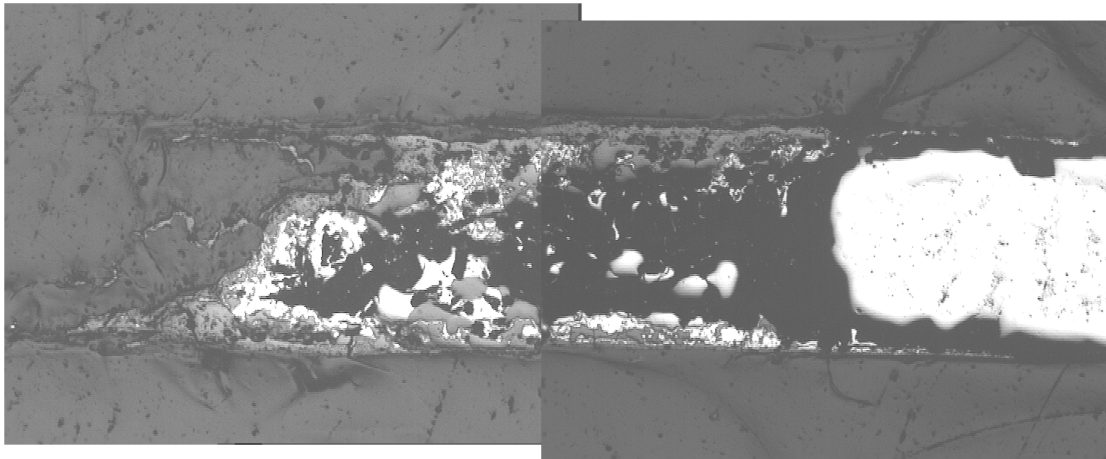
A CODEX-AIT-2 kísérletben az aeroszol-kibocsátás a hosszabb oxidációs idő miatt többszörösen meghaladta az előző mérésben tapasztalt mértéket. Az impaktorokon összegyűlt, uránt tartalmazó szemcsék mennyisége alapján az uránkibocsátás két nagyságrenddel nagyobb volt, mint a CODEX-AIT-1 kísérletben [S13].

A CODEX-AIT-2 köteg sokkal nagyobb mértékű sérülést szenvedett, mint a CODEX-AIT-1 köteg. Ennek az elsődleges oka az volt, hogy a második mérésben a magas hőmérsékletű szakasz hosszabb ideig tartott, mint az első kísérletben (3. táblázat).

A köteg röntgenradiográfiás vizsgálata azt mutatta, hogy a felső távtartórács megőrizte eredeti pozícióját, miközben a rács alatt a fűtőelemek fragmentálódtak és az átrendeződés eredményeként az alsó rácsra törmelékmedence gyűlt össze [S13].

A vizuális megfigyelések szerint a fűtőelemek burkolata és a kazettafal egyaránt nagymértékben oxidálódott. A köteg metszeteiről készített metallográfiai vizsgálatok megerősítették, hogy a fűtőelemek 280 mm fölött jelentősen megsérültek. Több helyen csak a volfrám fűtőszál maradt meg az eredeti pozícióban. A köteg alsó részét elzárta a törmelékágy. Kisméretű törmelékdarabok gyűltek össze az alsó rács alatt. A köteg legalsó része nem oxidálódott. Az oxidréteg vastagsága a köteg felső részében 50-100 µm, míg középen 120-160 µm volt. Nitridréteg a köteg középső axiális szakaszán volt megfigyelhető, vastagsága 30 µm-t ért el.

A Zircaloy-4 távtartórács hőmérséklete meghaladta a cirkónium olvadáspontját. A vékony lemezekből álló rácson a magas térfogat/tömeg aránynak megfelelően az oxidációs hő miatt a hőmérséklet magasabb értékig szaladt meg, mint a vastagabb falú burkolaton vagy a kazettafalon. A β -fázis megolvadása megfigyelhető volt a metallográfiai felvételeken is (40. ábra).



40. ábra: A felső távtartórács metszete a CODEX-AIT-2 kötegben (535 mm), a középső részen a rács megolvadt

4.4. Az eredmények értékelése

A CODEX-AIT-1 és CODEX-AIT-2 kísérleteket ugyanolyan fűtőelem-kötegekkel, hasonló körülmények között hajtottuk végre. A két mérés között jelentős különbségeket tapasztaltunk a fűtőelemek és a távtartórács sérülése tekintetében, eltérő vastagságú nitrid- és oxidrétegek jöttek létre, különbözött az uránkibocsátás mértéke és a hőmérséklet-megszaladás fellépésének körülményei is eltérőek voltak (3. táblázat).

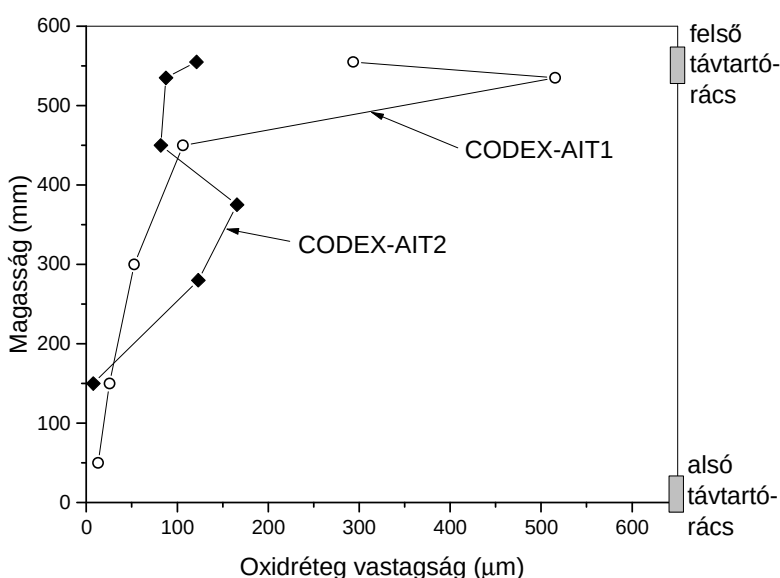
Az első kísérletben az előoxidáció argon-oxigén atmoszférában történt és hőmérséklet-megszaladáshoz vezetett. A második mérésben az előoxidációra argongőz atmoszférában került sor, a hőmérsékletek stabil értékekre álltak be.

A levegőbeáramlás mindkét kötegnél hőmérséklet-megszaladást idézett elő. Az első esetben a megszaladás állandó teljesítményen, a másodikonál pedig lineáris teljesítménynövelés mellett lépett fel. A megszaladásra mindkét esetben 900 °C fölé került sor. (Vízgőzös atmoszférában végrehajtott hasonló CODEX mérésben a megszaladás csak 1200 °C fölé indult be [S10].)

Az első köteg megőrizte az eredeti, rúdjellegű geometriai elrendezését, a rudak integritása alapvetően megmaradt a burkolat jelentős mértékű oxidációjának és nitridizációjának ellenére is. A második köteg sokkal súlyosabb sérüléseket szenvedett, a távtartórács részlegesen megolvadt, a rudak fragmentálódtak és a törmelék lehullott a köteg aljára. Ennek a jelentős eltérésnek az a fő oka, hogy a két köteg különböző ideig és különböző hőmérsékleteken oxidálódott és így különböző oxidációs profilok jöttek létre (41. ábra).

- A CODEX-AIT-1 mérésben a hőmérséklet megszabadása a köteg felső részében lépett fel, ahol nagyon vastag (max. 520 μm) oxidrétegek jöttek létre. A köteg középső részén az oxidáció jóval kisebb mértékű volt.
- A CODEX-AIT kötegen – az előző köteghez képest – sokkal egyenletesebb oxidációs profil jött létre, a maximális oxidréteg vastagság 170 μm közelében volt, de a köteg középső részén is 100 μm -nél vastagabb rétegek jöttek létre.

A CODEX-AIT-1 köteg középső része nem ridegedett el olyan mértékben, ami a burkolat sérüléséhez vezetett volna a kísérletben. A felső része a kötegnek ugyan nagyon nagymértékben oxidálódott, de ott a távtartórács rögzítette a rudakat és azok nem estek szét. A második köteg középső szakaszán végbement oxidáció olyan mértékben ridegítette el a cirkónium burkolatot, hogy a kísérlet során fellépett terhelések a rudak széttöredezéséhez vezettek (42. ábra).



41. ábra: Oxidréteg vastagságok a CODEX-AIT-1 és CODEX-AIT-2 kötegek fűtőelemeinek burkolatán

A CODEX-AIT-1 kísérletben sokkal vastagabb nitridrétegek jöttek létre, mint a második mérésben. Ennek elsősorban az lehet a magyarázata, hogy az első mérésben a levegő beáramlása rövidebb ideig tartott, mint a második mérésben. A levegőbeáramlás elején létrejött oxigénhiányos állapotban vastag nitridrétegek képződtek, amelyek megmaradtak a lehűtésig. A köteg alján beengedett levegő összetétele axiálisan változott, hiszen az oxidáció miatt csökkent az oxigéntartalma. Így jöhetett létre lokálisan oxigénhiányos állapot.

A második mérésben a levegő-beáramlás tovább tartott, így valószínűsíthető, hogy a nitridréteg létrejött után és az oxigénhiányos állapot megszűnésével a $\text{ZrN} + \text{O}_2 \rightarrow \text{ZrO}_2 + 1/2\text{N}_2$ reakció miatt elfogyott a nitrid egy része.

A friss üzemanyag oxidációja mindkét esetben jelentős mértékű aeroszol kibocsátáshoz vezetett. A szemcsék egy része a szerkezeti anyagok mellett UO_2 -ot is tartalmazott. Az urán nagyobb oxidációs számú oxidjainak a jelenlétét nem mutatták ki a röntgendiffrakciós mérések sem. A két mérésben tapasztalt több nagyságrendnyi eltérés arra vezethető vissza, hogy az első esetben alig sérültek meg a fűtőelemek, így a tabletták nem igazán tudtak kölcsönhatásba lépni a levegővel.

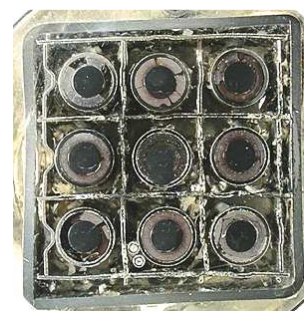
dc_1019_15

CODEX-AIT-1

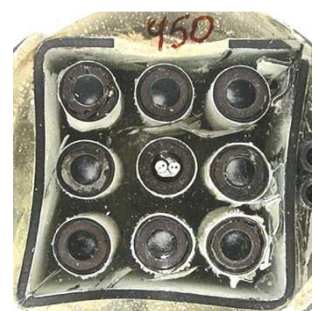


555 mm

CODEX-AIT-2



535 mm



450 mm



← 300 mm

280 mm →



150 mm



42. ábra: CODEX-AIT-1 és CODEX-AIT-2 kötegek metszetei különböző magasságokban

	CODEX-AIT-1	CODEX-AIT-2
Előoxidációs atmoszféra	argon-oxigén	argon-gőz-levegő
Előoxidációs hőmérséklet	≈950 °C	≈750 °C (első lépcső) ≈900 °C (második lépcső)
Előoxidációs idő	≈100 s	≈3600 s
Hőmérséklet-megszaladás	1. az előoxidáció során 2. a levegő beáramlásakor	csak a levegő beáramlásakor
Levegő forgalom	3,5 g/s	2,5 g/s
Burkolathőmérséklet a levegő beáramlásakor	≈900 °C	≈750 °C
Teljesítmény a levegő-beáramlás ideje alatt	állandó 1,25 kW	lineárisan növelt 1,6 kW-tól 3,3 kW-ig
A levegőbeáramlás időtartama	≈500s	≈1000s
Maximális hőmérséklet	2000 °C	1880 °C
Max. nitridréteg vastagság	290 μm	30 μm
Max. oxidréteg vastagság	520 μm	170 μm
U kibocsátás	0,1-0,5 μg	50-100 μg
A köteg állapota a kísérlet után	ép rúdgeometria	fragmentáció, a törmelék átrendeződése, lokális megolvadás

3. táblázat: A CODEX-AIT-1 és CODEX-AIT-2 kísérletek fő jellemzői

A légbetöréses folyamatok jobb megismerésére további két levegős mérésre került sor PWR anyagokkal Németországban a QUENCH berendezésen. Mindkét mérést magyar javaslatra, az általam specifikált kísérleti körülményekkel hajtották végre.

- A QUENCH-10 kísérletben a pihentető medencében feltételezett, súlyos balesethez hasonló állapotokat hoztak létre. Ennek során a fűtőelemek egy ideig levegőben oxidálódtak, majd a balesetkezelési eljárás modellezésére hideg vízzel elárasztották a forró köteget. A QUENCH-10 mérés egyik érdekes tapasztalata volt, hogy a vizes elárasztás során, a kísérlet korábbi szakaszában képződött ZrN egy része elbomlott [S18][S19].
- A QUENCH-16 mérést úgy hajtották végre, hogy – a légbetöréses folyamatok numerikus modelljeinek kifejlesztéséhez nagyon fontos információkat szolgáltatató – oxigénhiányos állapotokról adott új információkat. A kísérlet ebben az esetben is vizes elárasztással ért véget, amit intenzív hidrogénfejlődés és hőmérséklet-megszaladás kísért [S20].

5. VVER fűtőelemek sérülése súlyos balesetekben

Súlyos baleseti folyamatokban a zóna felmelegedése a fűtőelemek és a szerkezeti elemek oxidációjához vezethet, az acél és cirkónium komponensek megolvadhatnak, a kazetták elveszíthetik eredeti geometriai elrendezésüket, sokféle kémiai és mechanikai kölcsönhatás jöhet létre a zóna alkotóelemei között. Az események forgatókönyvét és a reakciók intenzitását a kezdeti és határfeltételek adják meg: többek között a zóna teljesítménye, a hűtőközeg tömege, a hőelvitel feltételei, a vészhűtőrendszer rendelkezésre állása.

A lehetséges baleseti forgatókönyvek sokfélesége ellenére a zónasérülés lépései az emelkedő hőmérséklet függvényében jól ismertek a jelenleg működő könnyűvízes reaktorokra, amelyek üzemanyaga cirkónium burkolattal ellátott UO_2 [66]. Az egyes reaktorokban alkalmazott különböző szabályozórudak (Ag-In-Cd, B_4C , bóracél) jelenléte jelenti a fő különbséget a zóna sérülésének korai szakaszában.

A nyugati PWR és BWR reaktorok anyagaival számos súlyos baleseti mérésre került sor a PHEBUS [63], CORA [18] és a QUENCH [20] berendezéseken. A VVER reaktorok hasonló anyagokból épülnek fel, de eltérés van a cirkónium ötvöző anyagaiban, a kazetták geometriai elrendezésében, a szabályozórudak anyagában és működésében is.

A hazánkban elkezdett súlyos baleseti mérések egyik első kutatási programja a VVER anyagok közötti kémiai kölcsönhatásokat vizsgálta. A kisléptékű mérések [26] a következő anyagpárok kölcsönhatásait vizsgálták: $\text{E110}/\text{UO}_2$, $\text{E110}/\text{vízgőz}$, $\text{E110}/\text{acél}$, $\text{E110}/\text{B}_4\text{C}$ és $\text{acél}/\text{B}_4\text{C}$.

Integrális méréseket VVER fűtőelemekkel először a CORA berendezésen végeztek Németországban. A CORA-W1 kísérletben VVER-1000 fűtőelemeket teszteltek szabályozórudak nélkül, súlyos baleseti körülmények között [18]. A CORA-W2 kísérletben B_4C szabályozórudak is helyet kaptak a kísérleti kötegben [75][76]. A két CORA mérés azt jelezte, hogy a VVER anyagok viselkedése hasonló volt a nyugati PWR és BWR fűtőelemek viselkedéséhez. Ugyanakkor két kísérlet nem elegendő ahhoz, hogy valamennyi baleseti állapotot lefedje és kódvalidációs célokból is szükség volt újabb mérési adatokra. Ezért indult el az AEKI-ben a CODEX kísérleti program 1995-ben (4. táblázat).

Az első CODEX kísérlet (CODEX-1) a berendezés működőképességét demonstrálta Al_2O_3 tablettákkal. Az első urán-dioxid tablettákkal végzett mérés (CODEX-2) azt mutatta meg, hogy hogyan megy tönkre egy hűtés nélkül maradt VVER köteg magas hőmérsékleten. További két VVER mérésben (CODEX-3/1 és CODEX-3/2) a felhevült köteg vizes elárasztása jelezte, hogy hideg hűtővíz befecskendezése a zónába megfelelő balesetkezelési eljárás lehet a VVER reaktorok súlyos baleseteinek kezelésére is. Továbbá az elárasztásos mérések elsőként jelezték, hogy a fűtőelemek burkolatán létrejött oxidréteg hatására jelentősen csökken az elárasztást kísérő felmelegedés és hidrogénfejlődési csúcs [S10].

A B_4C szabályozórudakkal kapcsolatban – nemcsak VVER, hanem PWR és BWR reaktorok esetében is – felmerült, hogy az oxidációs folyamat során képződhet-e metán is [S12]. A kémiai reakciók szerint erre elvileg van lehetőség, de hogy ténylegesen lejátszódnak-e ezek a reakciók, az a reaktorban létrejövő állapotoktól függ. A jelenség vizsgálatára a COLOSS projekt keretében három integrális kísérletre is sor került: előbb a CODEX-B4C mérést hajtottuk végre Magyarországon,

amit a QUENCH-07 és QUENCH-09 kísérletek követtek Németországban. A CODEX-B4C kísérlet egyik különlegessége volt, hogy több speciális on-line mérést is sikerült összehangoltan megvalósítani a mérés során.

kísérlet	köteg	tabletta	év	a modellezett folyamatok
CODEX-1	7-rúd VVER	Al ₂ O ₃	1995	beüzemelési mérés
CODEX-2	7-rúd VVER	UO ₂	1995	hőmérséklet megszabadás és lassú lehűtés
CODEX-3/1	7-rúd VVER	UO ₂	1996	vizes elárasztás 1150 °C-on
CODEX-3/2	7-rúd VVER	UO ₂	1997	vizes elárasztás 1500 °C-on
CODEX-AIT-1	9-rúd PWR	UO ₂	1998	légbetörés
CODEX-AIT-2	9-rúd PWR	UO ₂	1999	vízgőzös oxidáció és légbetörés
CODEX-B4C	7-rúd VVER	UO ₂ , B ₄ C	2001	szabályozórúd degradációja
CODEX-CT-1	7-rúd VVER	Al ₂ O ₃	2006	vizes elárasztás hosszú idejű oxidáció után
CODEX-CT-2	7-rúd VVER	Al ₂ O ₃	2006	oxidáció hidrogéndús vízgőz atmoszférában és vizes elárasztás

4. táblázat: A CODEX kísérleti program

5.1. A kísérleti berendezés

A CODEX-B4C kísérletben egy olyan, 600 mm hosszban elektromosan fűtött, 7 rúdból álló köteget használtunk, amely a VVER-1000 kazetták geometriai elrendezésének felelt meg. A hatszög elrendezésű köteg szélső rúdjai UO₂ tablettákat tartalmaztak, 9,13 mm külső átmérőjű E110 burkolatban. A 7,57 mm átmérőjű lyukas tabletták közepén helyezkedtek el a 3 mm átmérőjű volfrám fűtőszálak. A köteg közepén egy rozsdamentes acél burkolattal ellátott bór-karbid szabályozórúd volt, amelyet cirkónium megvezető cső vett körül. A középső rúdban nem volt fűtőszál. A köteget három távtartórács rögzítette 55 mm, 300 mm és 555 mm magasságban. A köteget 2,5% nióbiumot tartalmazó, E125 jelű cirkónium ötvözetből készült kazettafállal láttuk el. A köteget ZrO₂, Al₂O₃, acél és ásványgyapot szigetelő rétegek vették körül. Az acéltartály és az Al₂O₃ kerámia között légrést hagytunk a hőtágulás során fellépő méretváltozás miatt.

A CODEX-B4C kísérletben használt berendezés főbb technológiai egységei ugyanazok voltak, amelyeket a CODEX-AIT kísérletekben is használtunk (4.1 fejezet, 33. ábra). A mérőszakaszhoz 0 mm és 650 mm magasságban csatlakozott a be- és kilépő csomópont. 300 mm és 465 mm magasságban két ablakot helyeztünk el a pirométerek számára. A belépő oldalon egy 6 kW teljesítményű gőzfejlesztő és egy 4 kW teljesítményű túlhevítő tette lehetővé, hogy 600 °C-os gőz-argon hűtőközeg

jusson a mérőszakaszba. A kilépő csomak a kondenzátorba és szűrőkre vezette a forró hűtőközeget.

A kilépő gáz összetételét kvadrupól tömegspektrométerrel határoztuk meg, különös tekintettel a következő gázokra: H_2 , CO , CO_2 és CH_4 .

A berendezés felső részéhez két lézeres részecskeszámláló, valamint aeroszolok gyűjtésére alkalmas impaktorok voltak csatlakoztatva. A köteg állapotáról dinamikus radiográfiás eljárással több felvétel is készült a kísérlet legérdekesebb pillanataiban.

Az *on-line* mért adatokat az adatgyűjtő rendszer rögzítette. Ezek között szerepeltek az elektromos feszültség és áramerősség, a hűtőközeg forgalmak, be- és kilépő hőmérsékletek, vízszintek, rendszernyomás, gázkoncentrációk, aeroszol részecske koncentrációk és hőmérsékletek. Számos magas hőmérsékleten használható termoelemet helyeztünk el különböző magasságokban a szabályozórúdban, a fűtőelemekben, a kazettafalon és a szigetelő rétegekben.

5.2. A CODEX-B4C kísérlet

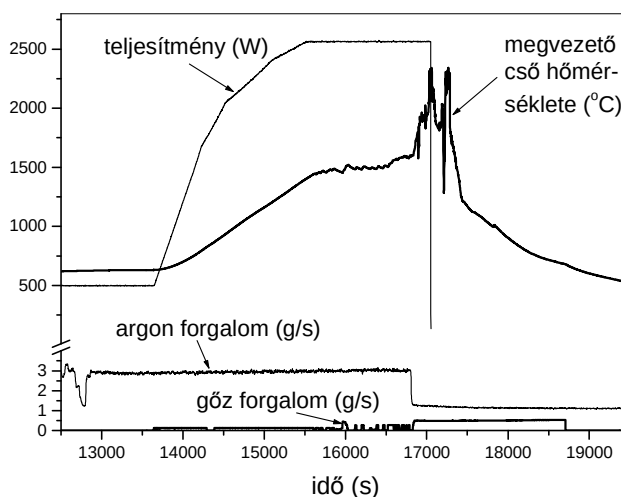
A CODEX-B4C kísérletben olyan körülményeket akartunk létrehozni, amelyek elősegíthették a CH_4 képződést. Ezért a mérésben arra törekedtünk, hogy a szabályozórúd sérülése után ne következzen be azonnal hőmérséklet megszaladás, illetve a bór-karbid oxidációja minél nagyobb mértékű legyen.

A kísérlet időben öt fő technológiai fázisra volt bontható:

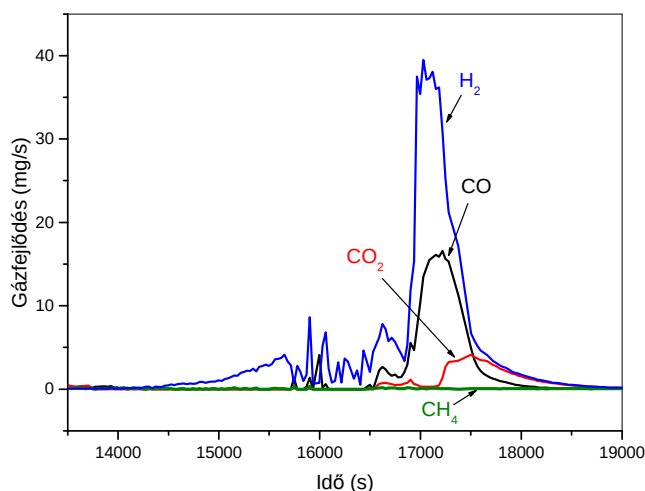
- 1) Alacsony elektromos teljesítmény (500 W) mellett, 600 °C hőmérsékletű argon beáramoltatásával stabil hőmérsékleteloszlást értünk el az előmelegítési fázisban. A berendezés belsejében, a teljes fűtött hosszban 500–600 °C-os hőmérséklet jött létre.
- 2) A teljesítményt 2560 W értékre emeltük. Kezdetben a teljesítménynövelés sebessége 2 W/s volt, majd ezt a sebességet fokozatosan csökkentettük, hogy a hőmérsékletek konvergáljanak a tervezett 1500 °C-os értékhez. A gőz beáramoltatása 13640 s után kezdődött 0,1 g/s forgalommal.
- 3) A szabályozórúd degradációja akkor kezdődött, amikor a köteg hőmérséklete a felső részben megközelítette az 1500 °C-ot (43. ábra). Ezt a hőmérsékletet a gőzforgalom 0,0 g/s és 0,5 g/s közötti változtatásával, kézi szabályozással stabilizáltuk. A gőzforgalom elvételével megakadályoztuk a hőmérséklet gyors megszaladását. Így hosszabb időszak állt rendelkezésre a szabályozórúd acél burkolatának megolvadására és a B_4C tabletta oxidációjára a fűtőelemrudak súlyosabb sérülése nélkül. A gőzhiányos állapotban a hidrogén feldúsulására is számítani lehetett, ami elősegíthette volna a metán képződését. A kilépő gázban azonban csak hidrogén jelent meg, jelezve, hogy a szabályozórúd cirkónium megvezető csöve ép maradt és ezzel megóvta a B_4C tablettákat a vízgőzös oxidációtól.
- 4) A mérés következő fázisában az argon forgalmat csökkentettük 3 g/s-ról 1,3 g/s-ra, míg a gőzforgalmat megemeltük 0,5 g/s értékre (43. ábra). A beavatkozásokkal a hőmérséklet további növekedését értük el. A kilépő gázban szén-monoxid jelent meg 16600 s után (44. ábra), ami jelezte, hogy a szabályozórúd belsejébe is bejutott gőz, így ez az időpont köthető a szabályozórúd sérüléséhez. 16900 s körül a kötegben a fűtött rudak

hőmérséklete elérte a 2000 °C-ot, míg a szabályozórúd megvezető csövén a hőmérséklet elérte a 2300 °C-ot. A hőmérséklet-megszaladás után jelentős koncentrációban jelent meg a kilépő gázban a hidrogén és a szén-monoxid. Kis késéssel detektálni lehetett szén-dioxidot is, de metán nem jelent meg a mérési határt meghaladó koncentrációban.

- 5) A lehűtési fázist a teljesítmény elvételével indítottuk, miközben a belépő gázforgalmak változatlanok maradtak. A hőmérsékletek lassan csökkentek a köteg alsó és középső részén. A köteg felső részén egy második hőmérsékletcsúcs is fellépett, aminek valószínű oka a lokális oxidáció és a sérült fűtőelem és szabályozórúd darabok átrendeződése lehetett. A legmagasabb hőmérséklet (2300 °C) 495 mm magasságban, a megvezető csövön lépett fel. A lehűlés során a gázok kibocsátása folytatódott, amit nagy mennyiségű aeroszolkibocsátás is kísért. A kísérlet végén a gőzbetáplálást megszüntettük és hideg argonnal hűtöttük le a köteget (43. ábra).



43. ábra: A CODEX-B4C kísérlet főbb mért paramétere



44. ábra: Gázfejlődés a CODEX-B4C kísérletben

A lehűtés után a köteget eltávolítottuk a mérőszakaszból. A köteg külső felületén jól látható volt a cirkónium kazettafal oxidációja, majd a kazettafal eltávolítása után a fűtőelem- és szabályozórudak sérült állapota is (45. ábra). A további részletes értékeléshez a köteget műgyantás kiöntéssel rögzítettük, majd metallográfiai vizsgálatokat végeztünk a kötegből készített vízszintes metszeteken.

5.3. Az eredmények értékelése

A CODEX-B4C kísérletben megfigyelhetőek voltak a súlyos reaktorbalesetek kezdeti szakaszának jellegzetes magas hőmérsékletű folyamatai.

- A cirkónium oxidációja hőmérséklet-megszaladáshoz vezetett, miközben az ötvözet jelentős mennyisége oxidálódott.
- A B_4C és a Zr oxidációja következtében hidrogén fejlődött.
- Megfigyelhető volt a cirkónium komponensek elridegedése az oxidáció hatására.
- A cirkónium burkolat kölcsönhatásba lépett az urán-dioxid tablettákkal.
- Az eredeti rúdgeometria sérülése után a fűtőelem törmelék átrendeződött a kötegben és az alsó részen részlegesen elzárta a köteget.
- Elzáródás jött létre a megvezető csőben, a rozsdamentes acél olvadása miatt.
- Az olvadt acél eutektikumot képzett a cirkóniummal.
- A távtartórácsok erősen oxidálódtak és elvesztették rögzítő funkciójukat.

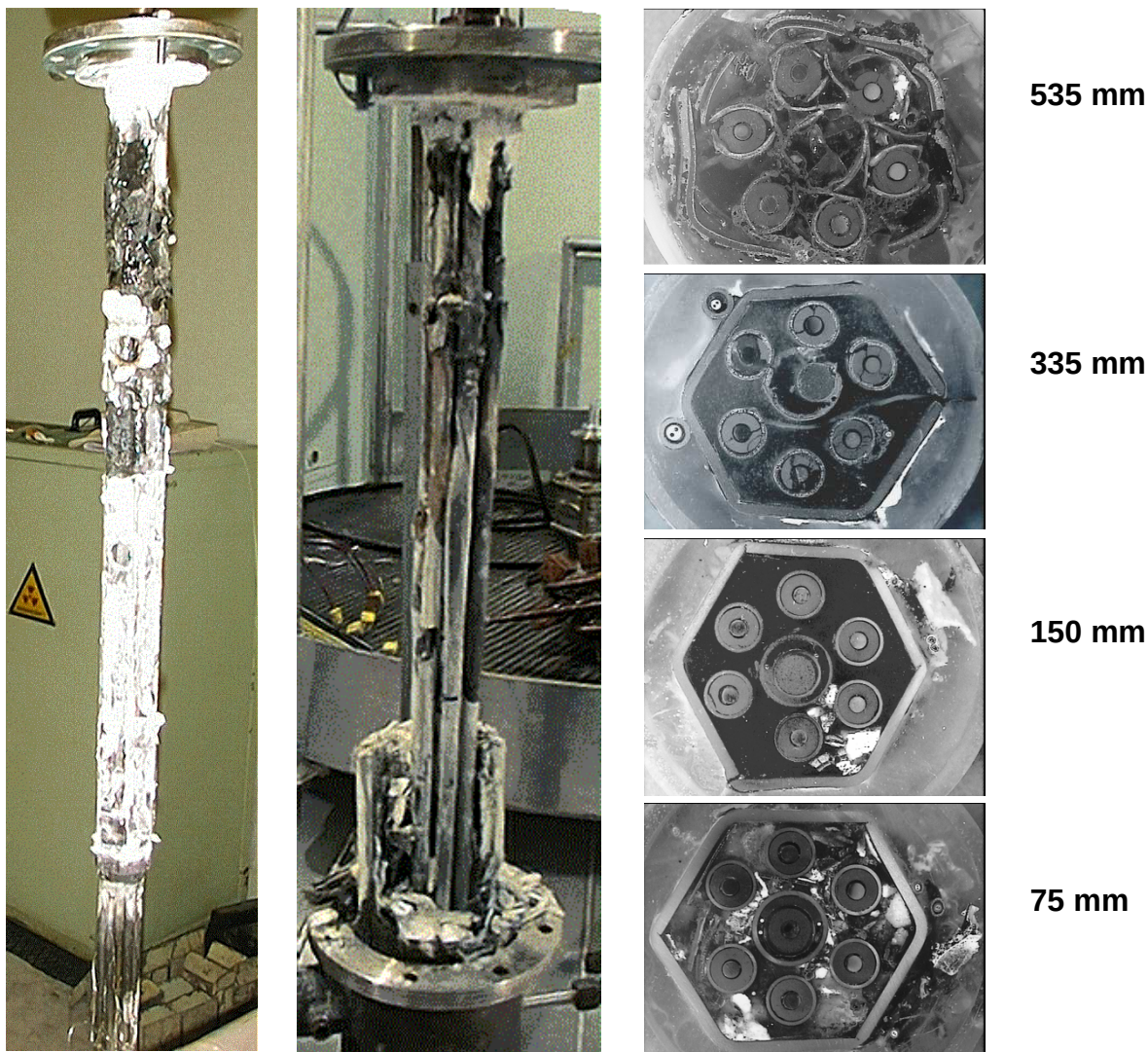
A mérőszakaszból távozó gáz tartalmazott hidrogént, szén-dioxidot és szén-monoxidot. A hidrogén forrása a cirkónium burkolat és a B_4C tabletták oxidációja volt. A hidrogénfejlődés csúcsa egybeesett a hőmérséklet-megszaladással. A hidrogénforgalom maximuma 40 mg/s volt, a keletkezett hidrogén teljes kumulatív tömege pedig 25 g. A szén-dioxid és szén-monoxid fejlődésében bizonyos eltolódást láttunk. A monoxid a hőmérséklet megszaladással és a hidrogénfejlődéssel párhuzamosan képződött, míg a dioxid ehhez képest később jelent meg és a maximális forgalmat a lehűtési szakaszban érte el.

A mérésben a metán mennyisége a mérési határ alatt maradt, tehát nem keletkezett számottevő mennyiségű metán. A később végrehajtott QUENCH-07 és QUENCH-09 kísérletek és további kisléptékű mérések [S12] is megerősítették ezt – a biztonsági szempontból igen fontos – következtetést.

A CODEX-B4C kísérleti köteg felső részén a középső rúd megolvadt és a vörös színű – vasoxidot tartalmazó – olvadék tartotta össze a köteget. Hasonló jelenséget korábbi, acél komponensek nélküli kötegekkel végzett mérésekben nem figyeltünk meg.

A kazettafal nagyon rideg volt, külső felülete is jelentős mértékben oxidálódott és könnyen el lehetett távolítani a kötegről (45. ábra). Az eltávolítás után a kazettafalat visszahelyeztük és ebben az állapotban került sor a műgyantás rögzítésre. A kazettafal felső része teljes vastagságában oxidálódott – ez magyarázhatja a mérésben megfigyelt második eszkalációt, ami a fém cirkónium teljes mennyiségének oxidációja után állt le.

Az UO_2 tabletták épek maradtak, a volfrám fűtőszálak eredeti helyükön rögzítették a fűtött rudakat.



45. ábra: A CODEX-B₄C kötegről kazettafallal (bal) és kazettafal nélkül (középső) készült felvételek, valamint a műgyantával rögzített köteg különböző magasságaiban készült vízszintes metszetek (jobb)

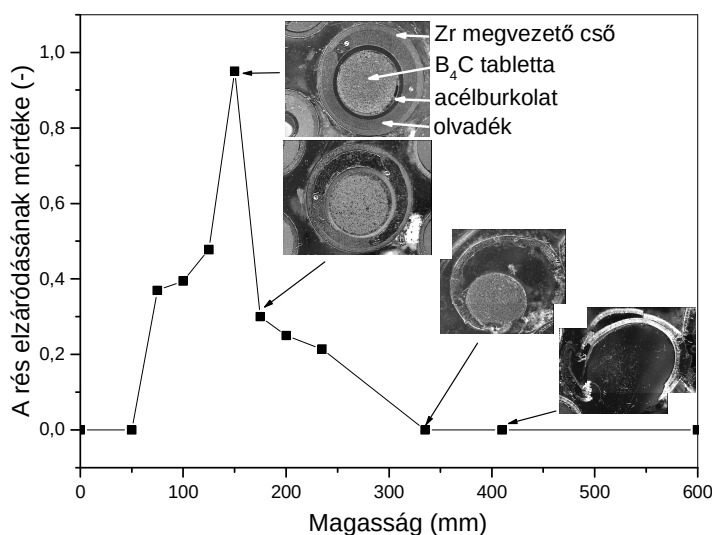
A degradációs folyamat jól megfigyelhető a kötegről különböző magasságokban készített metallográfiai felvételeken (45. ábra):

- 75 mm magasságban, az alsó távtartórács fölött, a szabályozórúd és fűtőelemek is épek maradtak. Ebben a magasságban a hőmérséklet nem haladta meg a 900 °C-ot a kísérlet során. A rudak között található törmelék a köteg felső részéből származik: az oxidált burkolat összetöredezett, majd átrendeződéssel jutott le a köteg aljába.
- 150 mm magasságban még mindig épek a rudak. A középső, acélburkolattal ellátott B₄C rúd és az azt körülvevő cirkónium megvezető cső között olvadékot látunk, ami a köteg felső, melegebb részéből folyt le. Ebben a magasságban a hőmérséklet maximuma 1100 °C volt, így az acél nem olvadt meg.
- 335 mm magasságban a középső rúdon már nincs acélburkolat, mert teljesen leolvadt. Jól megfigyelhető, hogy a megvezető cső is megsérült és a cirkónium burkolatok oxidálódtak.

- 535 mm magasságban a rudak többségének burkolata összetört. A középső rúdból hiányzik a B_4C tabletta is, ami a vízgőzzel érintkezve eloxidálódott (ebből keletkezett a CO , CO_2 és a H_2 egy része).

A B_4C tabletták a köteg 335 mm-es magassága fölött teljesen hiányoztak, ami a teljes kezdeti tömeg 45%-át jelentette. A kilépő gázban mért CO és CO_2 összmenyisége alapján is ehhez hasonló (40%) mértékű B_4C oxidációra lehetett következtetni.

A megolvadt rozsdamentes acélburkolat a cirkóniummal eutektikumot hozott létre. A megvezető cső belsejében talált olvadék összterfoglata kb. $3,5\text{ cm}^3$ volt a felvételek alapján, aminek legalább a felét az olvadt acélba beoldódott cirkónium képezte. Az olvadékban az elektronmikroszkópos vizsgálatok szerint bór nem volt jelen. Az olvadék 150 mm magasságban szinte teljesen elzárta a megvezető cső és a szabályozórúd közötti rést (46. ábra).



46. ábra: A CODEX-B4C szabályozórúd és a megvezető cső közötti rést kitöltő olvadék mennyisége (az olvadék által elfoglalt terület és a nominális résterület arányában kifejezve)

A kísérlet után kb. 10 g tömegű kék színű lerakódás volt megfigyelhető a kondenzátor felső – mérőszakaszhoz csatlakozó – terében. A kémiai elemzések szerint ennek 75%-a bórsav volt, mellette megjelent cirkónium, vas, alumínium, szilícium és volfrám is. Ez arra utalt, hogy a B_4C tablettákból származó bór nem lépett kölcsönhatásba a szerkezeti elemekkel, hanem az oxidáció során keletkezett aeroszokok formájában távozott a mérőszakaszból.

A fűtőelemből kikerült urán tömege a kondenzátor tetején (kb. $500\text{ }^{\circ}\text{C}$ hőmérsékleten) képződött lerakódásban 40 mg volt, míg a szobahőmérsékletű aeroszol csapdáig csak 0,008 mg jutott el.

Az aeroszol részecskeszámlálók jelezték, hogy szoros összefüggés áll fenn az aeroszol kibocsátás és az oxidációs folyamat között. Amikor a gőzbevitelt a kísérlet során többször leállítottuk, a részecskék száma drasztikusan csökkent. Magas hőmérsékleten, gőz jelenlétében a számlálók több mint egymillió részecskét detektáltak egy liter kiáramló hűtőközegben [S10].

6. A fűtőelemek integritása a 2003. évi paksi üzemzavar során

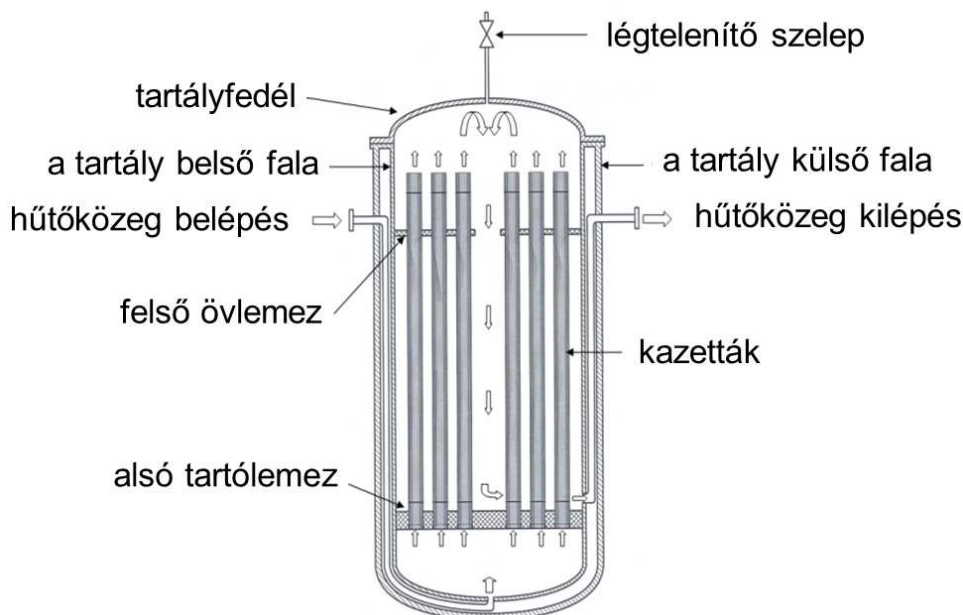
A fűtőelemek integritásának elvesztéséről rendelkezésre álló ismeretek többsége a reaktorban feltételezett eseményekre vonatkozik. A reaktorbaesetekben a maradványhő jellemző értéke a normál üzemi teljesítmény kb. 1%-a, ami a hűtés nélkül maradt zóna 0,5–1 °C/s sebességű felmelegedéséhez vezethet. A zóna-olvadás bizonyos forgatókönyvek szerint 2–3 órával a kezdeti esemény után megkezdődhet. A zónasérülés folyamatát számos kísérleti programban vizsgálták. A CORA [18][77], a PHEBUS [78][79][80], a QUENCH [81][82][83][84] és a CODEX [S10][S13] programokban végzett mérések többsége a reaktor üzemzavari leállítását követő állapotokat szimulálta, amikor a gyors felmelegedés a hőmérsékletek megszaladását és a fűtőelemek megolvadását idézheti elő.

Ha a fűtőelemek sérülése a reaktoron kívül történik, akkor a maradványhő jóval kisebb és ezért a fűtőelemek felmelegedése és sérülése is sokkal lassabban megy végbe. A reaktoron kívüli, vagy a leállított reaktorban történő üzemzavarok is súlyos balesethez vezethetnek, ha a fűtőelemek tartósan hűtés nélkül maradnak [S2][S14]. A paksi atomerőműben 2003-ban a reaktoron kívül, egy tisztítótartályban történt ilyen típusú súlyos üzemzavar. A 2-es blokki pihentető medence szervizaknájában, egy tisztítótartályban, a fűtőelemek hűtés nélkül maradtak hét órán keresztül. A tartályban olyan kazetták voltak, amelyekben a maradványhő a nominális teljesítmény 0,2%-nak felelt meg. A tartályban kialakult körülmények a cirkónium komponensek intenzív oxidációjához és elridegedéséhez vezettek. A tartály felnyitásakor a beáramló hideg víz hatására a kazetták eltörtek, kisebb darabokra fragmentálódtak [27][28][85][86]. A tisztítótartályban lezajlott üzemzavar különleges körülményeiről – elsősorban a magas hidrogéntartalmú vízgőzben lejátszódó hosszú idejű cirkónium oxidációról és annak következményeiről – nem álltak rendelkezésre pontos ismeretek. A lejátszódott folyamatok és jelenségek jobb megértésére az AEKI-ben egy részletes kísérleti program indult, amely tartalmazott kisléptékű kísérleteket és elektromosan fűtött köteggel végrehajtott integrális méréseket is.

6.1. Az üzemzavar fő eseményei

A paksi atomerőműben – a gőzfejlesztőkön végzett dekontaminálásokat követően – jelentős lerakódás keletkezett számos kazettán. A lerakódás eltávolítására kémiai technológiát alkalmaztak zárt tisztítótartályban [87]. A tartályt a 2-es blokki pihentető medence mellett található szervizaknában használták. Az akna fel volt töltve vízzel, a tartály fölött 13 m magas vízoszlop volt. Egyszerre 30 kazetta tisztítására volt lehetőség a tartályban. A tisztításhoz alkalmazott oxálsavas oldat magas hőmérsékleten hatékonyabban távolítja el a vastartalmú lerakódásokat, ezért – a jó hőszigetelés érdekében – a tisztítótartályt kettős fallal látták el. A kazettákat függőlegesen helyezték el a tartályban, alul egy tartólemezre támaszkodtak, felül pedig egy övlemez akadályozta meg a vízszintes elmozdulást. A vegyszeres tisztítást 170 t/h forgalommal, zárt hurokban végezték. A tisztítás után a pihentető medence vizével, nyitott hurokban, 21 t/h forgalommal hűtötték a kazettákat. A tervezők azzal számoltak, hogy a zárt kazettafallal rendelkező kazetták aljába vezetett hűtőközeg végigmegy a kazettákon, majd a tartály felső terében visszafordul és a kazetták aljához közel elhelyezett nyíláson keresztül távozik a tartályból (47. ábra). Ezzel a

megoldással el kívánták kerülni azt, hogy a kémiai tisztítás során levált lerakódások a tartály aljában gyűljenek össze. A tartály tetején légtelenítő szelepet helyeztek el a tisztítás során keletkező gázok elvezetésére. A szelep egy flexibilis csővel csatlakozott a hasadási gázok megjelenésének detektálására szolgáló modulhoz.



47. ábra: A hűtőközeg tervezett áramlása tisztítótartály működése során

A paksi 2-es blokkot 2003. március 29-én állították le átrakásra, ezután kezdődött a lerakódással terhelt kazetták tisztítása. Az első öt alkalommal a tisztítás során nem tapasztaltak fűtőelem-sérülést. Későbbi vizsgálatok rámutattak, hogy ezekben az esetekben a tisztítást követő átmeneti hűtést csak rövid ideig alkalmazták. A hatodik tisztítást április 10-én végezték, a 30 kazetta teljes maradványhője 241 kW volt [85]. A vegyszeres tisztítás délután 16.00 órakor ért véget, az átmeneti hűtés 16.40-kor kezdődött. A tisztítótartály felnyitására csak jóval később került sor.

A szervizakna és a pihentető medence össze volt nyitva a primerkörrel a tisztítás ideje alatt. Este 19.00 órakor néhány centiméteres vízszint-emelkedést mértek a térfogatkompenzátorban. A változás önmagában nem volt jelentős, de ha figyelembe vesszük a közös víztérfogat teljes felületét, akkor a vízszint mért, 15 perc alatt végbement emelkedése 4 m^3 térfogatnak felelt meg. A tisztítótartály teljes térfogata 6 m^3 volt, így a 4 m^3 víz távozása – ahogy azt utólag rekonstruálni lehetett – a kazetták részleges szárazra kerüléséhez vezetett. A térfogatkompenzátorban a vízszint csak a tisztítótartály felnyitása után csökkent le az eredeti értékre. A két szintváltozás között 7 óra telt el, ennyi ideig volt a fűtőelemek felső része szárazon.

A tartály gáztalanító vezetékehez csatlakoztatott detektor 21.50-kor a ^{85}Kr izotóp aktivitás-koncentrációjának növekedését jelezte – ez volt a fűtőelemek sérülésének első közvetlen jele. Akkor a fűtőelemek már két és fél órája voltak szárazon. A tartály fedelének hidraulikus zárjait éjjel 2.15-kor nyitották meg. Ezt követően a reaktorcsarnok és a kémény szellőző rendszere is magas nemesgáz aktivitásokat mutatott [85].

Az üzemzavar után végzett videokamerás vizsgálatok azt mutatták, hogy a kazetták többsége megsérült. A kazetták eltörtek, kisebb darabok hullottak ki belőlük, a tartály alján törmelék halmozódott fel. A cirkónium felületeken nagymértékű oxidáció nyomai voltak láthatóak, főleg a tartály belsejében található kazettákon. A kazetták alsó része ép maradt. Olvadásra vagy cirkónium-acél eutektikum képződésére utaló jelek nem voltak megfigyelhetők.

A megfigyelések alapján egyértelmű volt, hogy az üzemzavar során a fűtőelemek magas hőmérsékleten felfűvódtak, oxidálódtak, majd az elridegedett cirkónium burkolatok és kazettafalak a tartály felnyitásakor beáramló hideg víz hatására összetörték. Az üzemzavar lefolyásának körülményeiről nem álltak rendelkezésre pontos adatok, mivel a tartályban nem voltak mérőműszerek és az üzemzavar után történt vizuális megfigyelések is csak a végállapotról adtak tájékoztatást.

6.2. Az üzemzavart követő elemzések és kisléptékű kísérletek

Az üzemzavart követően számos hazai és külföldi intézmény végzett elemzéseket az üzemzavar okainak tisztázására és a lezajlott folyamatok megértésére. Az *OECD-IAEA Paks Fuel Project* [86][S15] keretében nyolc ország 11 intézményének szakemberei végeztek – egy közösen kidolgozott adatbázis alapján – termohidraulikai, fűtőelemviselkedési és aktivitás-kibocsátásra vonatkozó számításokat különböző számítógépes programokkal és modellekkel. A termohidraulikai elemzésekből be lehetett látni, hogy a hűtés leromlása azért következett be, mert a kisforgalmú szivattyúra történt átkapcsolás után a hűtővíz jelentős része *by-pass* ágakon (a kazettafalon található perforációkon, illetve a kazetta lábrészének nem tökéletes illeszkedésénél) kikerülte a fűtőelemeket és nem játszott szerepet a hőelvitelben. A számítások jó egyezést adtak a nyomástartószint növekedésének időpontjára, ami egyértelműen a tisztítótartályban történt gőzpárna-kialakulás következménye volt. A fűtőelemes elemzések rámutattak, hogy ha a tartályban tisztított fűtőelemekből nem viszik el a maradványhőt, akkor azok néhány óra alatt felfűvódhatnak, felhasadhatnak és számottevő mértékben oxidálódhatnak. Az aktivitás kibocsátására vonatkozó, számított adatokat a pihentető medence vizében és a szellőző rendszerben mért aktivitásokkal [S16][S17] összevetve megállapítható volt, hogy több modell is nagyságrendileg jó becslést adott a fűtőelemekből származó – az izotópleltár néhány százalékát jelentő – kikerülésre [S15].

Az erőműben végzett vizuális vizsgálatok és a nemzetközi keretekben folytatott numerikus elemzések után is számos lényeges kérdés megválaszolatlan maradt. Nem lehetett tudni, hogy mennyi hidrogén képződött az üzemzavar során, mennyi hidrogént vettek fel a cirkónium komponensek, hány fűtőelem hasadt fel a tartály fedelének felnyitása előtt, milyen mértékben záródtak el a kötegek a felfűvódás miatt és milyen mechanikai tulajdonságokkal rendelkeztek a rudak a tönkremenetel idején.

A felsorolt kérdések többségére választ lehetett volna kapni a sérült fűtőelemek melegkamrás anyagszerkezeti és mechanikai vizsgálataiból, ezekre azonban nem volt lehetőség. A kérdések egy részét inaktív anyagokkal végzett kísérletek segítségével is meg lehetett válaszolni, ilyen jellegű kutatási tevékenység folyt az AEKI-ben 2004-2007 között. A paksi üzemzavarhoz kapcsolódó kísérleti programokban kisléptékű és fűtőelemkötegekkel végzett integrális mérésekre is sor került.

Kisléptékű kísérletekben az üzemzavar számos részfolyamatát, jelenségét vizsgáltuk:

- A COHYRA program keretében oxidációs tesztek, hidrogén tartalom meghatározást, mechanikai vizsgálatokat és anyagszerkezeti vizsgálatokat végeztünk. Megállapítottuk, hogy a képlékeny-rideg átmenetet tiszta vízgőzre leíró függvény hidrogéndús atmoszférában végzett oxidáció esetén is érvényben marad [S6]. Ez azt jelenti, hogy a burkolatanyag elridegedése időben nem jelentkezik korábban gőz-hidrogén atmoszférában, mint tiszta vízgőzben, mivel az oxidáció lassulása vélhetően kompenzálja a fokozott hidrogén felvétel negatív hatását.
- A távtartórács szerepét a fűtőelemek sérülésében több felfűvódásos mérésben vizsgáltuk. A kísérletek eredményeit a 2.4.3. és a 2.4.7. fejezet részletesen ismerteti.
- A paksi üzemzavar után végzett vizuális vizsgálatok egyik érdekes megfigyelése szerint a fűtőelemcsövekben található rugók néhány rúdból kiestek, míg másokban benne maradtak, sőt a rugó mintázata látható volt a burkolat külső felületén is. Az AEKI-ben végzett magas hőmérsékletű kísérletek megmutatták, hogy nem a rugó nyomta ki a burkolatot, hanem a burkolatanyag duzzadt meg az oxidáció során, ennek mértéke pedig ott volt a legnagyobb, ahol a rugó nem érintkezett közvetlenül a csővel [S23].
- A paksi tisztítótartály hőmérsékletének pontosítására egy lemezdarabot kaptunk a paksi tisztítótartály felső távtartórácsából. A vizsgálatok szerint a legbelső szegmens (amely a 0,75 m átmérőjű lemez sugarának felénél volt) hőmérséklete kb. 1000 °C-ot ért el az üzemzavar során.

A paksi üzemzavar néhány fontos részfolyamatának vizsgálatáról a felsorolt kisléptékű kísérletekben részletes információkat és adatokat kaptunk. Ezekből a mérésekből azonban nem derült ki, hogy ha a jelenségek egy időben játszódtak le, akkor melyek voltak azok a folyamatok, amelyek domináltak a fűtőelemek tönkremenetelében. Ezért nagyobb léptékű, integrális méréseket hajtottunk végre elektromosan fűtött fűtőelem kötegekkel. A CODEX-CT berendezésen a fűtőelemek szárazra kerülését, oxidációját és mechanikai tönkremenetelét vizsgáltuk, egy kisebb köteggel, indukciós kemencében pedig a kazetták függőleges elmozdulására kerestünk magyarázatot.

6.3. A CODEX-CT kísérleti berendezés

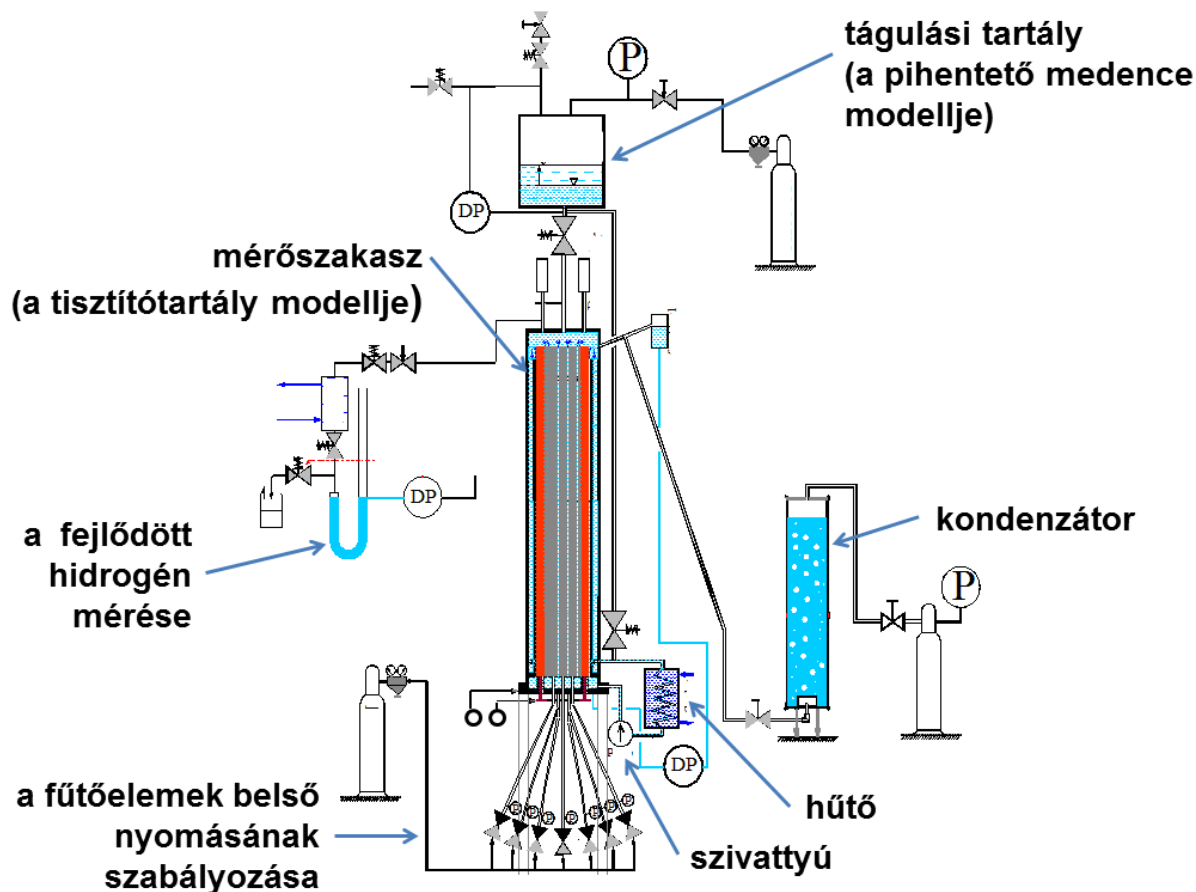
Az eredetileg súlyos balesetek modellezésére létrehozott CODEX berendezésen elektromosan fűtött kötegekkel próbáltuk meg szimulálni a tisztítótartályban lejátszódott folyamatokat. A berendezésen számos átalakítást kellett végezni. Fontos szempont volt a fűtőelemek felfűvódásának, felhasadásának követése – ezért a fűtőelemeket magas belső nyomásra fel kellett tudni tölteni. A fűtőelemrudak töredezése, fragmentációja, a törmelék átrendezése nem lett volna megfigyelhető akkor, ha a fűtőelemeket – a korábbi mérésekhez hasonlóan – belső volfrám betéttel fűtöttük volna, ezért külső fűtőtesteket alkalmaztunk. Továbbá meg kellett oldani a tisztítótartály hűtőkörének modellezését is, figyelembe véve a vízszinteket és a *by-pass* lehetőségeket is.

A berendezés tervezésekor követelményként merült fel, hogy a tisztítótartály modellben ne okozzon gondot az 1200 °C körüli hőmérséklet több órán keresztül

sem és a berendezés tudja tartani azt a túlnyomást, ami megfelel annak, hogy a paksi medencében több mint tíz méter vízoszlop alatt volt a tisztítótartály.

A CODEX-CT berendezés fő részegységei az alábbiak voltak (48. ábra):

- 7 rúdból álló köteg, az egyes rudak belső gáznyomásának szabályozásával,
- a rudakat körülvevő kazettafal,
- a kötegen kívül elhelyezett fűtőtestek,
- tisztítótartály modell,
- pihentető medence modell,
- kondenzátor.



48. ábra: A CODEX-CT berendezés fő részegységei

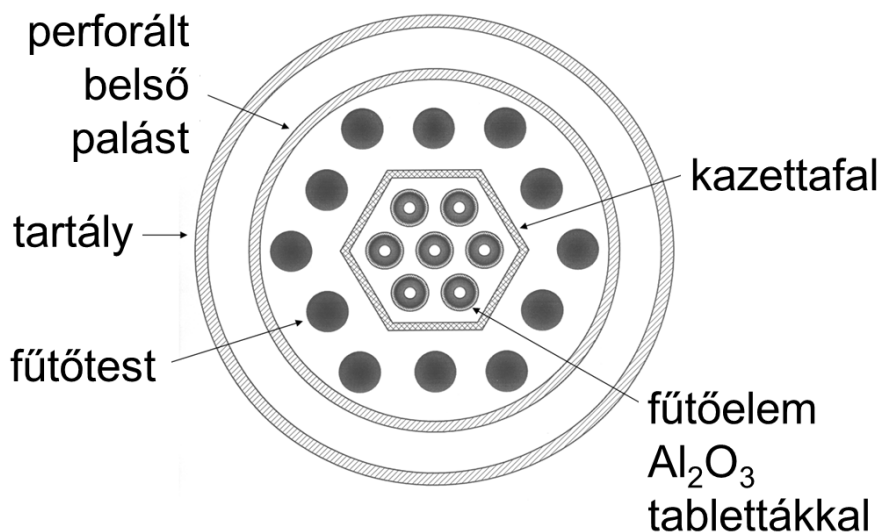
A cirkónium komponensekből készített köteget 12 db 1 m magas fűtőtest vette körül a tisztítótartály modellben. A tartály alján volt a hűtővíz ki- és belépő csokja, a cirkulációt egy szivattyú valósította meg egy hűtőrendszeren keresztül. A tartályon belül elhelyeztünk egy hengeres palástot is, amelyet hat darab 6,4 mm átmérőjű lyukkal láttunk el 25 mm magasságban. A belső palást magassága nem érte el a tartály tetejét, így a normál üzemi forgalom mellett a hűtővíz átbukott rajta és a gyűrűcsatornában jutott el az alsó kilépő csokhoz. Kis hűtőközeg-forgalom esetén a belső paláston található lyukak elegendőek voltak ahhoz, hogy átengedjék a teljes vízmennyiséget. A tartály tetején légtelenítő szelepet is elhelyeztünk.

A tisztítótartályhoz csatlakozott a pihentető medencét modellező felső tartály, amelyben túlnyomást hoztunk létre. A felső tartály alul és felül is csatlakozott a tisztítótartályhoz. Az alsó csatlakozáson keresztül nyomta ki a hűtővizet a gőzpárna a

tisztítótartályból a vízszint kialakulása után. A felső csatlakozást csak a kísérlet végén nyitottuk ki, ez tette lehetővé a köteg felső elárasztását, ami Pakson a tartály fedelének nyitása után játszódott le.

A kötegen belül nem helyeztünk el fűtőszálakat, hanem külső fűtőtestekkel értük el a szükséges hőmérsékletet (49. ábra). Ennek a megoldásnak több előnye is volt:

- egyrészt a rudakban nem volt volfrám rúd, amely stabilizálja a fűtőelemeket és akadályozza a sérült szegmensek elmozdulását,
- másrészt a külső fűtés egyenletesebb hőmérséklet eloszlást eredményezett, ami feltételezéseink – és a kazettákról készített videofelvételek – szerint jellemezte a paksi állapotot is,
- harmadrészt így a fűtőelemekben könnyebben tudtunk létrehozni olyan magas belső nyomást, ami a burkolat felfúvódásához és felhasadásához vezethet.



49. ábra: A CODEX-CT tisztítótartály-modell keresztmetszete

A fűtőelem rudak burkolatának anyaga az eredetivel azonos E110 ötvözet volt. A kazetta falának anyaga szintén az eredeti kazetta faláéval egyezett meg: 2,5% Nb tartalmú cirkónium lemez, falvastagsága 2 mm. Az UO_2 tablettákat Al_2O_3 kerámia tablettával modelleztük, amelyekben 3 mm-es furat volt a termoelemek számára. A köteget 5 darab távtartórács rögzítette, amelyeket szintén cirkónium ötvözetből készítettünk. A hatszögletű kazettafal mindegyik oldalán 15 mm magasságban 6 mm átmérőjű lyukakat hoztunk létre, hogy az erőművi kazetták falán található perforációt modellezzük.

A berendezés kis mérete miatt nyilvánvaló volt, hogy nem tudjuk a tartályban létrejött radiális hőmérséklet eloszlás hatását modellezni, hanem csak a tartály középső legmelegebb helyén lejátszódott eseményeket tudjuk szimulálni. Az axiális hőmérséklet eloszlást viszont lehetett rekonstruálni úgy, hogy a köteg teteje egészen magas hőmérsékletet érjen el, miközben a fűtőelemek alsó részét folyamatosan hűtötte a hűtővíz.

A berendezésben a hőveszteségek – a kis méretek miatt – fajlagosan jóval nagyobbak voltak, mint a paksi tartályban, ezért a kísérletben nagyobb hőteljesítmény volt szükséges a magas hőmérséklet eléréséhez, mint amennyi a

fűtőelemek hosszának arányából adódna. A hűtőközeg forgalmát a teljesítménnyel arányosan állítottuk be.

A lejátszódó folyamat megértéshez fontos volt, hogy a leglényegesebb paramétereket mérjük a kísérlet során.

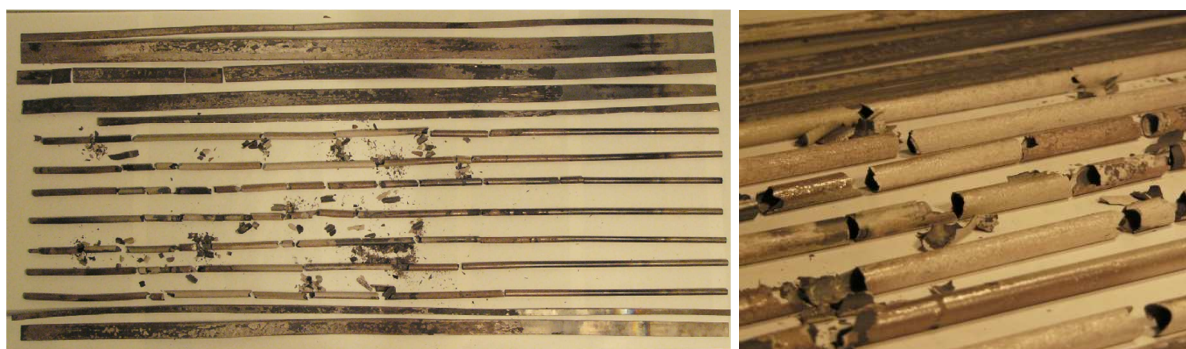
- Hőmérsékletmérés történt a köteg minden fűtőelemében, a kazettafalon, a fűtőtesteken, a tisztítótartály modell külső falának belső részén, abban a részben, ahol a kazettán végigáramlott víz visszafordult, a hűtővíz be- és kilépésénél és a pihentető medencét modellező felső tartályban, a vízszint alatt.
- Nyomásmérést végeztünk a köteg minden fűtőelemében és a pihentető medencét modellező felső tartályban.
- A tisztítótartály szintjét egy, a tartály felett elhelyezkedő, állandó szintet tartó edény és a tisztítótartály közötti nyomások különbségéből mértük. A pihentető medence szintjét a víz és gáz oldal közötti nyomás különbségéből határoztuk meg.
- Mértük a hűtőközeg forgalmát és a fűtőtestek elektromos teljesítményét.

A cirkónium magas hőmérsékletű oxidációja során keletkező hidrogén mérése nagyon fontos információt szolgáltatott az oxidáció mértékéről és az oxidációs hő nagyságáról is. Ezért a hidrogén mérésére két rendszert is létesítettünk a CODEX-CT berendezésben.

- A berendezésből a tartály tetején lévő szelepen keresztül engedték ki a hidrogén-gőz elegyet egy kondenzátorba, ahol a vízgőz lekondenzált és csak a hidrogén áramlott tovább. A rendszerből távozó hidrogén térfogatát egy U alakú, eredetileg vízzel teli csőben mértük.
- A másik hidrogénmérés a tisztítótartályban létrejött gőz-hidrogén keverék összetételéről adott tájékoztatást. A tisztítótartály modellből érkező vízgőz-hidrogén gázelegy összetételének meghatározása hővezetőképesség mérésen alapult.

6.4. A CODEX-CT előkísérlet

A berendezés működőképességének ellenőrzésére egy előkísérletre került sor. Ennek során 7 üres cirkónium csövet és kazettafal lemezeket helyeztünk el a berendezésben. Ez a cirkónium mennyiség megfelelt a későbbi kísérletben használt kötegnek és így lehetővé tette a fejlődő hidrogén és az oxidációból származó energia becslését is.



50. ábra: Az előkísérletben megsérült csövek és kazettafal lemezek

Először reprodukáltuk a vízszint lecsökkenését a *by-pass* hatására, majd több órás magas hőmérsékletű oxidációt hajtottunk végre. A szint kialakulása után 5 órával a hőmérséklet 1200 °C fölé emelkedett, ekkor kikapcsoltuk az elektromos fűtést, majd lassan lehűtöttük a berendezést. A cirkónium csövek és lemezek jelentős mértékben eloxidálódtak és széttöredeztek (50. ábra). A csövek és lemezek rendkívül ridegek voltak, a mérés utáni kirakásnál tovább töredeztek egészen kis erőhatásokra is. A csövek és a lemezek alsó része – a vízszint alatt – teljesen ép maradt és nem oxidálódott. Az első törések a vízszint felett kb. 15 cm-rel voltak megfigyelhetőek.

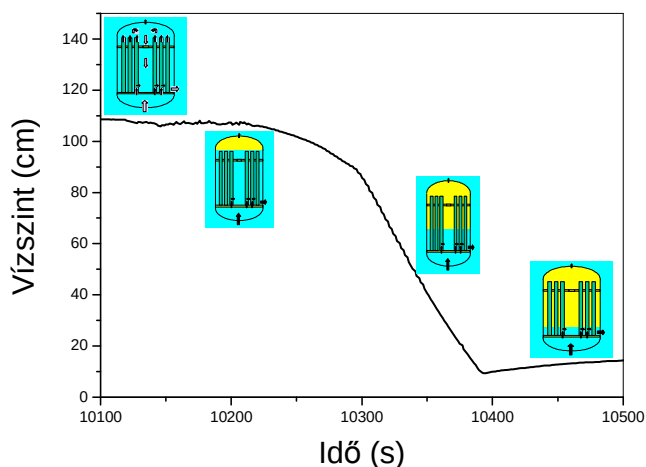
6.5. A CODEX-CT-1 kísérlet

A CODEX-CT-1 jelű mérésben egy összeszerelt, távtartókkal és kazettafallal ellátott köteget teszteltünk. A fűtőelemeket kerámia tablettákkal töltöttük fel és különböző kezdeti belső nyomással láttuk el. A kísérlet több technológiai lépéssel indult. A kiindulási vízszintet a pihentető medence modellben hoztuk létre. A tisztítótartály és a pihentető medence modell a tisztítótartály kimeneti csomóján keresztül egy szelep nyitásával volt összekötve, amely a fenéklemez felett 15 mm-re helyezkedett el. Körülbelül 70 g/s forgalommal hűtöttük a berendezést. A fűtőtestek elektromos teljesítményét 2,3 kW-ra állítottuk be. A mérés kezdetén a fűtőelem rudakat 6 és 30 bar közötti nyomásra töltöttük fel hideg állapotban. Ilyen körülmények között a fűtőtestek teljesítményének nagy részét el tudta vinni a hűtővíz.

A mérés három fő fázisból állt:

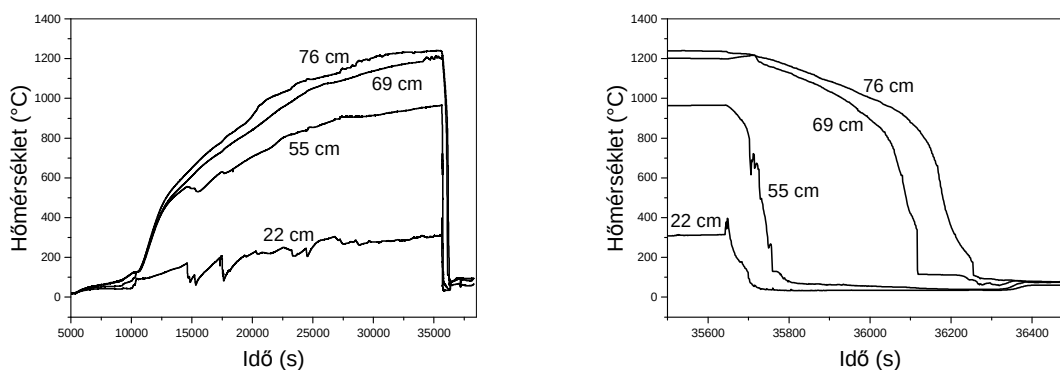
- 1) Vízszint kialakulása.
- 2) A fűtőelemek felfűvódása és oxidációja.
- 3) Elárasztás.

1) A mérés kezdetén a tisztítótartály modell fel volt töltve vízzel. A szivattyú nagy forgalommal működött és el tudta vinni a 2,3 kW elektromos teljesítményt. A forgalom csökkentése után a köteg feletti térben található víz elkezdett melegedni, majd a forrás megindulása után a vízszint a *by-pass* lyukak magasságának megfelelően állt be (51. ábra).

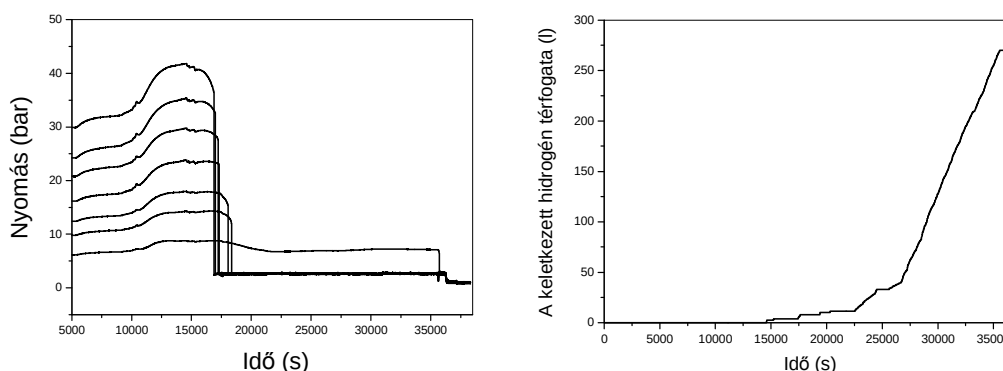


51. ábra: A vízszint kialakulása a CODEX-CT-1 kísérletben

2) A vízszint kialakulása után hét órán keresztül szárazon voltak a fűtőelemek. Az elektromos fűtés segítségével a mérés végére 1240 °C-os hőmérsékletet értünk el (52. ábra). A felmelegedés során a nagyobb nyomással feltöltött fűtőelemek felhasadtak (53. ábra). A keletkező hidrogént a tisztítótartály légtelenítő szelepét modellező szelepen keresztül elvezettük, de ennek ellenére a köteg környezetében 60-80%-os hidrogéntartalmú atmoszféra jött létre. Az oxidáció eredményeként összesen 277 l szoba hőmérsékletű hidrogén keletkezett (53. ábra).



52. ábra: Különböző magasságokban mért hőmérsékletek a CODEX-CT-1 kísérlet teljes időtartamában (bal) és az elárasztás alatt (jobb)

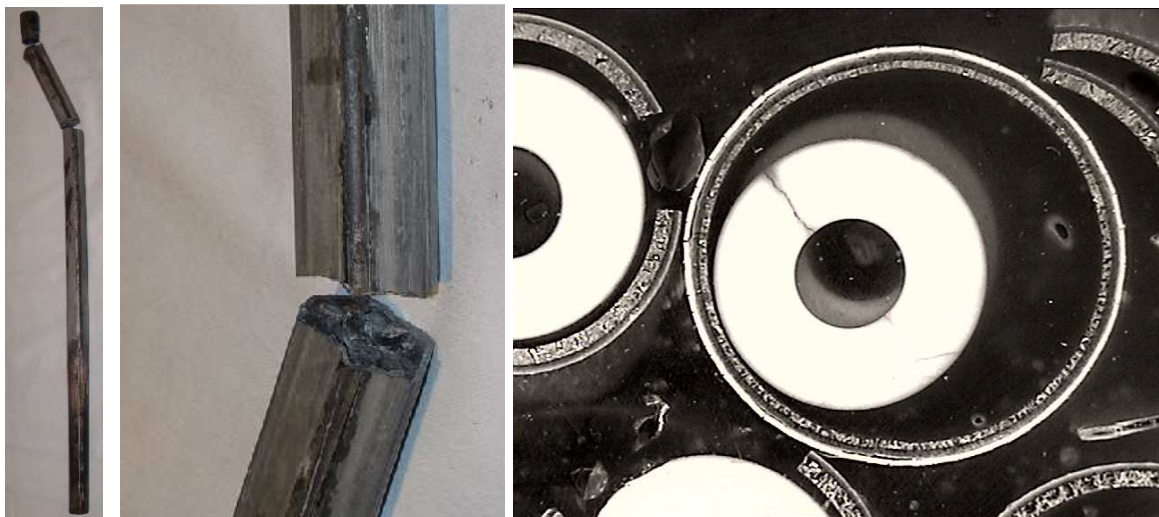


53. ábra: Fűtőelemek belső nyomása (bal) és az eltávozott hidrogén mennyisége (jobb) a CODEX-CT-1 kísérletben

3) A mérés utolsó fázisában először elengedtük a nyomást a köteg feletti térből, így modelleztük a tartály felnyitásának kezdetét. Ennek hatására a szivattyú által betáplált víz elérte a fűtőelemek forró szakaszát. Egy perces késleltetéssel megkezdődött a víz betáplálása felülről is, ami a tartály fedelének teljes felnyílását modellezte. A mérőszakaszban található hidrogén távozása után élénk gőzfejlődés indult és több percig tartott, amíg a berendezés lehűlt (52. ábra). Az utolsó fűtőelem – amely alacsony belső nyomása miatt nem hasadt fel eddig az időpontig – az elárasztás alatt veszítette el az integritását (53. ábra).

A kísérlet után azt tapasztaltuk, hogy a köteg jelentős mértékben elridegedett. A CODEX-CT-1 köteget a kísérletet követően műgyantával kiöntöttük. Kezdetben a kazettafal épnek látszott, de a berendezés szétszerelése közben teljes keresztmetszetű törést szenvedett, ezzel is mutatva az elridegedés drasztikus mértékét (54. ábra). A továbbiakban a köteget egy műanyag csőben helyeztük el és

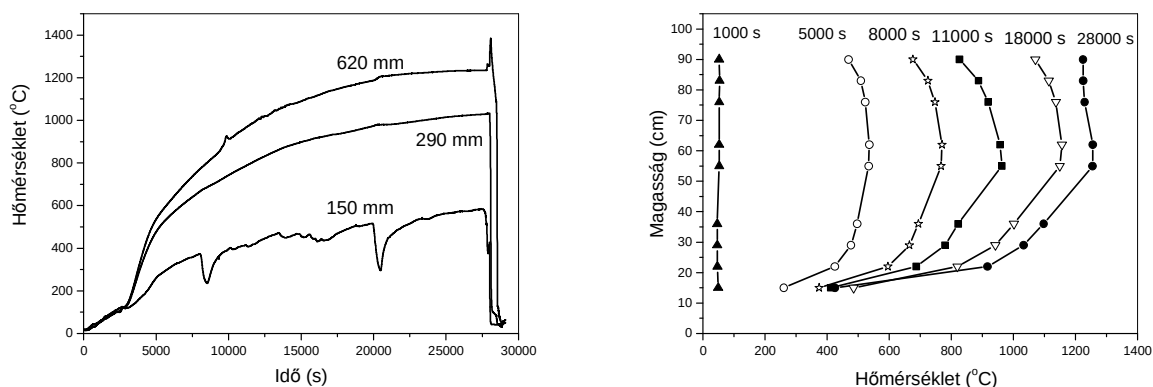
rögzítettük újabb műgyantás kiöntést alkalmazva. A kazettán belül a fűtőelemek összetöredeztek. A fűtőelemek hosszú szakaszokon felfűvódtek. A fémbe elnyelt hidrogén mennyiségét forró extrakciós eljárással határoztuk meg. A metszetekről metallográfiai felvételek készültek. A köteg állapota sok tekintetben emlékeztetett a paksi sérült fűtőelemekre.



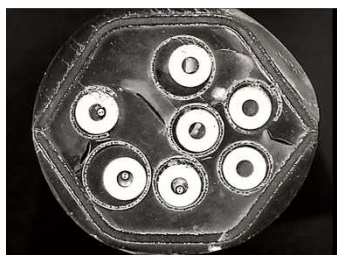
54. ábra: A műgyantával kiöntött CODEX-CT-1 kötegről készített fényképek (bal és középső), valamint a felfűvódott rúdról készített metallográfiai felvétel (jobb)

6.6. A CODEX-CT-2 kísérlet

A CODEX-CT-1 kísérletben a keletkező hidrogén távozni tudott a mérőszakaszból a mérés során. Ezzel azt a folyamatot modelleztük, ami megfelelt a tartályon található légtelenítő szelep nyitott helyzetének. Ennek a szelepnek az állapotáról nem álltak rendelkezésre egyértelmű információk. A második kísérletben a légtelenítő szelep zárt állapotát modelleztük, hogy értékelni lehessen a légtelenítő szelep állapotának jelentőségét a kazetták tönkremenetelésében.



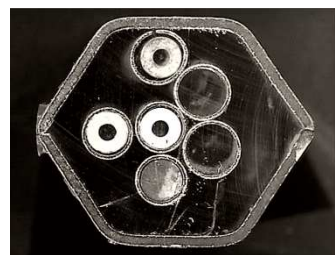
55. ábra: A fűtőelem rudak hőmérsékletei különböző magasságokban (bal) és a rudak hőmérséklet profilja néhány kiválasztott időpontban (jobb) a CODEX-CT-2 kísérletben



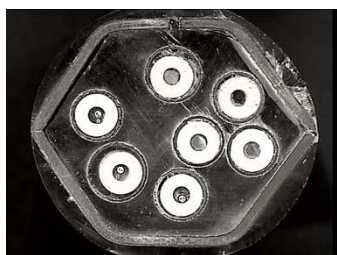
400 mm



700 mm



995 mm



300 mm



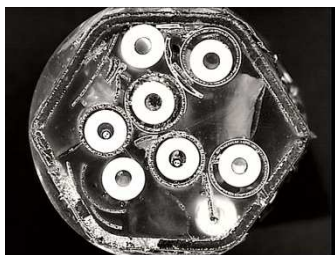
600 mm



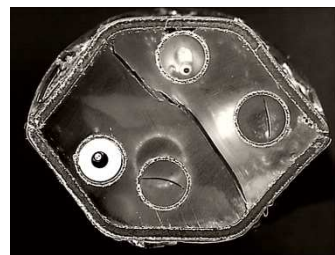
900 mm



200 mm



500 mm



800 mm

56. ábra: A CODEX-CT-2 köteg keresztmetszetei

A CODEX-CT-2 kísérletet – az első méréshez hasonlóan – három fő fázisban hajtottuk végre, a mérést megelőző technológiai lépések után.

1) A kísérlet első fázisában víz párologott el a tisztítótartály modell felső részéből és a *by-pass* magasságában alakult ki az állandósult vízszint. A mérőszakaszban a vízszint az eredeti 110 cm-ről 10 cm-re csökkent. A hűtővíz forgalom 70 g/s-ról 40 g/s-ra történő csökkentése a víz felmelegedéséhez és a felső gőztérfogat kialakulásához vezetett. A gőztérfogat megjelenésekor a tisztítótartályból kiáramlott víz a pihentető medencét modellező tágulási tartályban a hűtővíz szintjének emelkedését eredményezte.

2) Az alacsony vízszintet hét órán keresztül tartottuk alacsony hűtővíz áramlási sebesség és állandó elektromos teljesítmény mellett. A köteg felmelegedése (55. ábra) a Zr komponensek oxidációjához vezetett. A tartályon belüli gáztér hidrogén tartalma 5300 s (600 °C) után növekedésnek indult és ez jelezte az oxidációs szakasz kezdetét. A köteg fölött a gáztér hidrogéntartalma 90%-ot ért el. A CT-1 méréstől eltérően az oxidációs folyamat során képződött hidrogént nem engedték ki a mérőszakaszból. A hidrogén felgyülemzése a tartályban nem vezetett nyomásnövekedéshez. A maximális fűtőelem burkolat-hőmérséklet elérte az 1286 °C-ot az elárasztás előtt.

3) Végül a köteget alulról és felülről vízzel árasztottuk el, az utóbbival szimulálva a tisztítótartály tetejének levételét. A fűtőelem köteg forró felületeinek hideg vízzel való elárasztása a hőmérséklet megszaladását idézte elő a köteg és a kazettafal egyes pozícióiban. A gőz és hidrogén keverék elengedése a rendszer nyomásának csökkenéséhez vezetett, de a fűtőelem rudak forró felületeire injektált víz kigőzölgése egy második nyomáscsúcsot hozott létre, amely 4 bar felett volt. Ezt a csúcsot gyors nyomáscsökkenés követte, ami a köteg hőmérsékletének növekedésével párhuzamosan ment végbe. A berendezés teljes lehűtése több órát vett igénybe a szerkezeti anyagokban és a szigetelésben tárolt nagy mennyiségű hő miatt. A hőszigetelő rétegek külső felületének hőmérséklete 250 °C-ig melegedett.

A köteg a mérés után rendkívül rideg volt. A műgyantás kiöntés után ennél a kötegnél is megfigyelhető volt a burkolat felfúvódása és a cirkóniumcsövek összetöredezése. A keletkezett törmelék a köteg alsó részében gyűlt össze (56. ábra).

6.7. A CODEX-CT kísérletek fő eredményei

6.7.1. A gőzpárna kialakulása

A kísérletekben a nagy hűtővíz forgalommal végzett működtetés stabil körülményekhez vezetett, mivel az elektromos teljesítmény és a hűtővízzel történő hőelvonás egyensúlyban voltak. Az áramlási sebesség csökkentése (amely a kisteljesítményű szivattyú működését szimulálta az üzemzavarban) a tisztítótartály-modellben lévő víz rétegződéséhez és a tartályban a gőztérfogot gyors kialakulásához vezetett. A vízszint a berendezés *by-pass* lyukai magasságának megfelelően alakult ki. A *by-pass* megjelenése után a köteg felső része szárazon volt, a hőmérsékletek folyamatosan emelkedtek. A CODEX-CT-1 és CODEX-CT-2 kísérletek, illetve már az előkészítő mérés is egyértelműen mutatta, hogy a gőzpárna kialakulása után a fűtőelemek felső része hűtés nélkül maradt.

6.7.2. A fűtőelemek felfúvódása és felhasadása

A hőmérséklet emelkedését a burkolatok képlékeny deformációja követte és a nagy nyomású rudak 800–900 °C-on felhasadtak.

A CODEX-CT-1 kísérletben a kezdeti töltőnyomást 6,2–30,3 bar között állítottuk be, hogy lefedjük a különböző kiégésű fűtőelemek lehetséges belső nyomását. A nyomás növekedése maximumokat jelzett, majd a felhasadás előtt valamelyest csökkent. Ennek oka az volt, hogy a képlékeny deformáció miatt megnőtt a fűtőelemek belső gáztérfogata és ennek nagyobb hatása volt a nyomásra, mint az adott időszak alatti felmelegedésnek. A CODEX-CT-1 kísérletben csak egy fűtőelempálca élte túl a képlékeny deformáció időszakát anélkül, hogy felhasadt volna, ez – a legalacsonyabb kezdeti nyomású rúd – az elárasztáskor, nyilvánvalóan rideg sérüléssel veszítette el integritását.

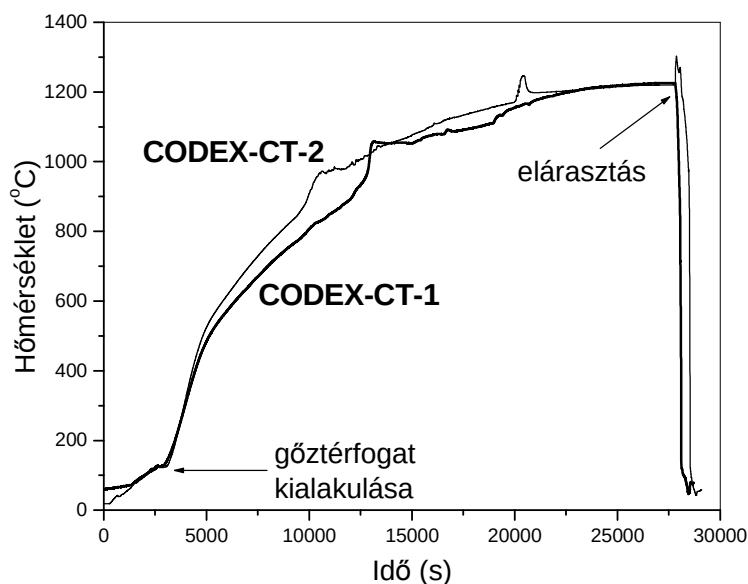
A CODEX-CT-2 kísérletben a fűtőelem rudak kezdeti nyomása 5,9 és 11,1 bar között volt. Ez a tartomány közelebb volt a paksi üzemzavarban sérült, 13–

31 MWd/kgU kiégésű fűtőelemek 6-8 bar-ra becsült nyomásához [86]. Az alacsonyabb nyomás ellenére ebben a kísérletben is a hét rúdból hat a lehűtés előtti időszakban tönkrement.

A CODEX-CT kísérletekben a fűtőelemek felhasadása közel három órával a fűtőelemek szárazra kerülése után következett be. A paksi üzemzavar során is közel ugyanennyi idő telt el a mért szintváltozás és a ^{85}Kr aktivitás megjelenése között. Ennek alapján belátható, hogy a paksi fűtőelemek sérülése is a burkolat felhasadásával kezdődött.

6.7.3. A maximális hőmérséklet

A két kísérletben a száraz időszak körülbelül hét órán át tartott, akárcsak 2003-ban az üzemzavarban. Ezt az időszakot a hőmérséklet folyamatos emelkedése jellemezte a fűtőelem rudak száraz szakaszán.



57. ábra: Burkolathőmérsékletek a CODEX-CT-1 és CODEX-CT-2 kísérletekben

A maximális burkolathőmérséklet 1200-1300 °C-ot ért el az elárasztás előtt, majd további növekedés lépett fel az elárasztás alatt a CODEX-CT-2 kísérletben. Az axiális hőmérsékletprofil szerint a köteg alját a víz folyamatosan hűtötte, miközben a felső szakasz nagyon magas hőmérsékletet ért el. A legmagasabb hőmérsékletek nem a köteg tetején, hanem annál valamivel lejjebb jelentkeztek, a felső térfogat hőveszteségei miatt.

A tisztítótartályban a kísérleti berendezéshez hasonlóan hőmérséklet-növekedésnek kellett bekövetkeznie a gőzpára kialakulása után, hiszen a kettős falú tartály jó szigetelést jelentett az akna víztere és a kazetták között [88]. A maximális hőmérséklet a tisztítótartályban is 1200-1300 °C körül lehetett, mivel az acél nem olvadt meg, de a cirkónium nagymértékben oxidálódott.

6.7.4. A cirkónium komponensek oxidációja

A magas hőmérsékletű gőzben a köteg cirkónium komponensei oxidálódtak. Amikor a köteg legforróbb részén a hőmérséklet elérte a 600 °C-ot a hidrogén-koncentráció mérése jelezte az oxidációs folyamat kezdetét. Az E110 burkolat külső felületén réteges, leváló oxidréteg jött létre. A kazettafalon kompakt oxidréteg alakult ki. A kazettafal külső felületén a legvastagabb oxidréteg 300 µm volt mind a két kísérletben. A kazettafal belső felületén és a fűtőelemek burkolatán vékonyabb oxidréteg jött létre, a CODEX-CT-1 kísérletben a legnagyobb mért vastagság 250 µm, a CODEX-CT-2 kötegen pedig 150 µm volt. Mivel az oxidréteg jelentős része levált a felületekről, az oxidáció pontos, lokális mértékét nem tudtuk meghatározni az anyagszerkezeti vizsgálatokból.

A cirkónium komponensek oxidációjának átlagos mértékét a keletkezett hidrogén mennyiségéből tudtuk megbecsülni. Ennek két összetevője volt: a mérések során a tartálymodellből kikerült és a fém cirkónium által elnyelt hidrogén mennyisége. A tartályból kikerült hidrogén mennyiségét az on-line mérési eredmények integrálásával határoztuk meg. A fém által felvett hidrogén mennyiségét pedig a burkolatok és a kazettafal forró extrakciós vizsgálatának eredményei alapján lehetett megbecsülni. A levált oxidréteg nem tartalmaz hidrogént, így ez a komponens nem hiányzott az anyagmérleg felállításakor. A két kísérletben az átlagos oxidáció mértékét a keletkezett összes hidrogénnel ekvivalens oxigén mennyisége alapján határoztuk meg. A CODEX-CT-1 mérésre 33%-os, míg a CODEX-CT-2 kísérletre 13%-os oxidációt kaptunk ezzel az eljárással. A két mérés közötti lényeges eltérést az magyarázza, hogy a második mérésben nem engedték ki a keletkező hidrogént a tartálymodellből és így gőzhiányos állapot jött létre a gáztérben, ami lelassította az oxidációt.

A paksi fűtőelemek oxidációjának mértékét méréssel nem állapították meg. A kísérletek és az üzemzavar hasonló körülményei miatt valószínűsíthető, hogy a paksi kazetták oxidációjának mértéke és a fűtőelemek burkolatának oxidációs profilja hasonló lehetett a kísérleti kötegek állapotához. Konzervatív megközelítésként a paksi üzemzavarban megsérült cirkónium komponensek oxidációjának mértékét a CODEX-CT-1 kísérlet alapján lehetett megbecsülni.

6.7.5. Hidrogénfejlődés

A tisztítótartály tetején elhelyezett légtelenítő szelep működéséről nem álltak rendelkezésre megbízható adatok. Valamennyi gáz nyilvánvalóan távozott ezen a szelepen keresztül, hiszen a ⁸⁵Kr aktivitást a szelephez csatlakozó vezeték végén detektálták. Ugyanakkor kérdéses volt, hogy a nagy mennyiségben keletkező hidrogén tudott-e távozni ezen a szelepen keresztül. Ez volt az egyik indoka annak, hogy a CODEX-CT-1 mérésben a légtelenítő szelepet nyitva tartottuk, míg a CODEX-CT-2 mérésben zárva volt.

A CODEX-CT-1 kísérletben 277 liter hidrogént engedünk ki a tartályból szabályozott körülmények között. A CODEX-CT-2 kísérletben a képződött hidrogént nem engedünk ki a tisztítótartály modellből a kísérletek száraz fázisában, de az elárasztási időszak alatt 80 litert gyűjtöttünk össze. A CT-2 kísérletben a cirkónium oxidációját korlátozta a tartályban lévő nagy hidrogén tartalom, ugyanakkor a cirkónium fém nagymennyiségű hidrogént vett fel (5. táblázat).

A fémbe elnyelt hidrogén mennyiségét az egyes mért szakaszokra vonatkozó adatokból integrálással határoztuk meg. A burkolatra és a kazettafalra vonatkozó adatok szerint a CODEX-CT-1 köteg 10 g, a CODEX-CT-2 pedig 7 g hidrogént nyelt el.

Paraméter	CODEX-CT-1	CODEX-CT-2
Rendszernyomás (bar)	2,6	2,0
Elektromos teljesítmény (W)	2300	2600
1. fűtőelemrúd kezdeti nyomása (bar)	30,3	5,9
2. fűtőelemrúd kezdeti nyomása (bar)	9,9	6,5
3. fűtőelemrúd kezdeti nyomása (bar)	12,5	11,1
4. fűtőelemrúd kezdeti nyomása (bar)	16,3	9,3
5. fűtőelemrúd kezdeti nyomása (bar)	20,9	8,1
6. fűtőelemrúd kezdeti nyomása (bar)	24,5	6,2
7. fűtőelemrúd kezdeti nyomása (bar)	6,2	10
Elárasztás előtt felhasadt fűtőelemrudak száma	6	6
A száraz fázis időtartama (óra)	7	7
Max. hőmérséklet az elárasztás előtt (°C)	1245	1286
Max. hőmérséklet az elárasztás alatt (°C)	1245	1384
Elárasztás előtti hidrogénkibocsátás a tartályból (l)	270	0
Elárasztás alatti hidrogénkibocsátás a tartályból (l)	7	80
A cirkónium által elnyelt hidrogén tömege (g)	10	7
A keletkezett hidrogén teljes tömege (g)	33	13
A kazettafalon mért max. oxidrétegvastagság (μm)	300	300
A burkolaton mért max. oxidrétegvastagság (μm)	250	150

5. táblázat: A CODEX-CT-1 és CT-2 kísérletek főbb adatainak összehasonlítása

6.7.6. Az oxidált fűtőelemek vizes elárasztása

A fűtőelemek lehűtését hosszú időtartamú, hidrogénben gazdag atmoszférában történő oxidáció után kezdtük meg. Mind alulról, mind felülről alkalmaztunk vizes elárasztást, a tisztítótartályban történt üzemzavarhoz hasonlóan. Az elridegedett rudak szétesése és tönkremenetele nyilvánvalóan ebben az időszakban ment végbe.

A tisztítótartályban a fűtőelemek súlyos sérülése valószínűleg ugyancsak az elárasztás során lépett fel, ami a hűtővíz alulról és felülről történő beáramlása, illetve a tartály méretei miatt egy összetett, háromdimenziós folyamat lehetett. Az elárasztás fő lépései az alábbiak lehettek:

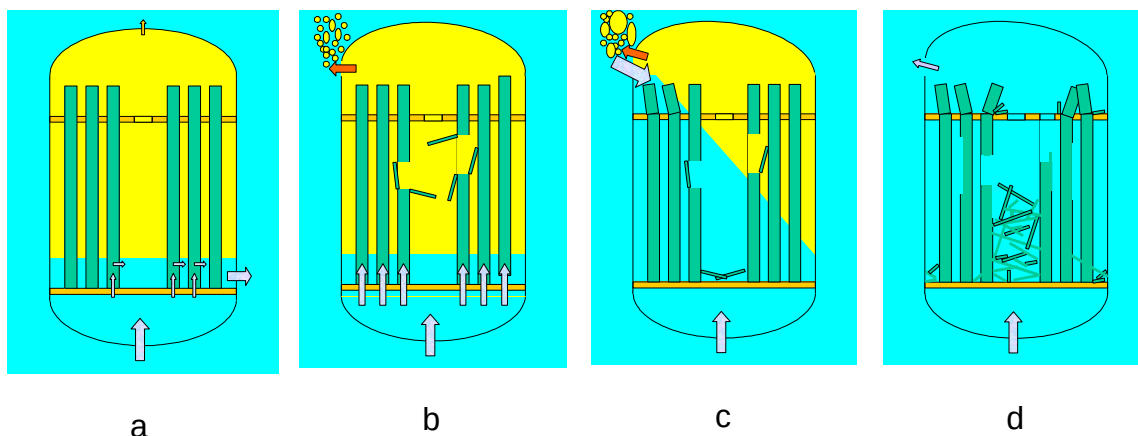
1. A hidraulikus zárok nyitásával rés jött létre a tartály és a fedél között (58.b ábra). Ezen a résen keresztül a tartályból gázok kerültek ki a szervizaknába és csökkent

a tartályban uralkodó nyomás. Az alulról betáplált hűtővíz nagyobb magasságban nedvesítette be a fűtőelemeket, mint a fedél nyitása előtt. A forró felületeken a hűtővíz forrása intenzív gőzfejlődést eredményezett.

2. A gőzfejlődést kísérő nyomásnövekedés megemelte a fedelet és megnövelte a fedél és a tartály közötti rés méretét. A nagyobb résen keresztül víz hatolt be a tartályba, ami felülről hűtötte a kazettákat (58.c ábra).
3. Végül a tartályt víz töltötte fel és a szivattyú stabil hűtést hozott létre a nyitott tartályban (58.d ábra).

A mintegy 4 m³ hűtővíz gyors beáramlása olyan mechanikai és termikus feszültségeket hozott létre a kazettákban, amelyek a fűtőelemek széttöredezéséhez vezettek – ezt a nemesgázok hirtelen megnövekedett, mért aktivitása is jelezte.

A tartály nyitásának fő lépéseit a CODEX-CT kísérletekben is modelleztük. Először kinyitottuk a mérőszakasz és a kondenzátor közötti szelepet, ami gőzhidrogén kibocsátást eredményezett. A nyomás csökkenése után a betáplált hűtővíz elérte a köteg magasabb, forró részeit is. Végül, egy perces késleltetéssel kinyitottuk a tartály tetejét a tágulási tartállyal összekötő szelepet, ami a köteg felső vizes elárasztását eredményezte.



58. ábra: Az elárasztás fő lépései: átmeneti hűtés belső gőzpárnával (a), a hidraulikus zárok nyitása, gáz kiáramlás a tartályból és a fűtőelemek alsó elárasztása (b), hideg víz beáramlás felülről (c), stabil hűtés a nyitott tartályban (d).

A CODEX-CT-1 köteg elárasztása gyorsan a hőmérséklet csökkenéséhez vezetett. Az elárasztás során 7 l hidrogén került ki a tartálymodellből, ami megfelelt a tartály térfogatának. Ez azt jelentette, hogy az elárasztás nem járt jelentős hidrogénfejlődéssel.

A CODEX-CT-2 kísérletben a hideg víz betáplálása hőmérséklet megszabadást okozott a köteg bizonyos részeiben és a kazettafalon. A hőmérséklet maximuma 1384 °C volt. Az elárasztás során 4 bar-os nyomáscsúcs lépett fel. A tartálymodellből 80 l hidrogén került ki, ami intenzív hidrogénfejlődést jelezett az újranevedesítés alatt.

A két köteg eltérő viselkedését a cirkónium felületek különböző mértékű oxidációja magyarázhatja. A CODEX-CT-1 kötegen vastag oxidréteg jött létre a burkolaton és a kazettafalon, ami megővta a köteget a hőmérséklet-megszabadástól az elárasztás során. Az oxidréteg védő szerepét korábban is megfigyelték CODEX [S10] és QUENCH [20] kísérletekben. A CODEX-CT-2 kísérletben az oxidáció

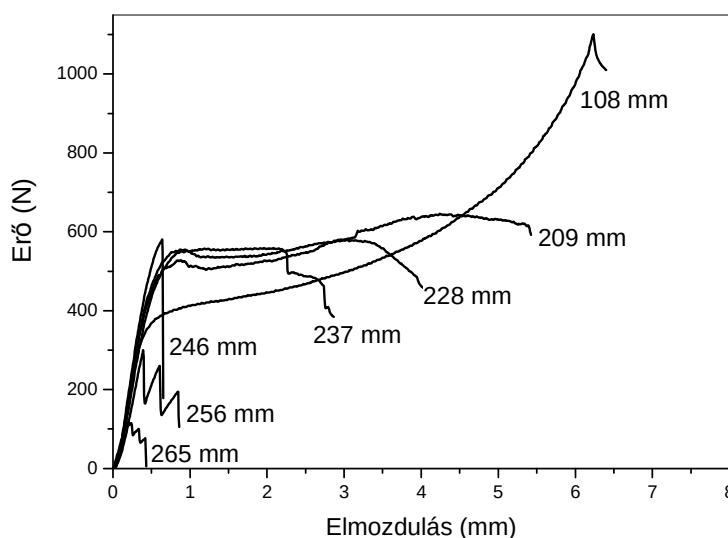
mértéke jóval kisebb volt az elárasztás előtt, így a fém felületek intenzívebben tudtak kölcsönhatásba lépni a beáramló hideg vízzel.

6.7.7. A cirkónium komponensek elridegedése

A kísérletek után a fűtőelem-kötegek sok tekintetben hasonlóak voltak a 2. blokk üzemzavar során megsérült kazettákhoz. A rudak felső része nagymértékben károsodott, míg az alsó rész – amelyet a kísérlet idején víz hűtött – érintetlen maradt. A középső és felső részek darabokra törtek. Az anyag nagyon törékeny volt, további széttöredezés ment végbe a fűtőelem-pálcákkal végzett műveletek során.

A fűtőelemek sérülési mechanizmusának megértéséhez különös jelentőséggel bírt, hogy a CODEX-CT kísérletekben – és az üzemzavarban is – megfigyelhető volt egy jellegzetes átmeneti tartomány a fűtőelemek hossza mentén. Miközben a fűtőelemrudak alja teljesen ép maradt, magasabb pozíciókban fokozatosan oxidálódott és bizonyos magasságban elérte az elridegedés azon mértékét, ami az elárasztás során az integritás elvesztéséhez vezetett. Tudományos és reaktorbiztonsági szempontból is fontos volt meghatározni, hogy a sérülés helyén milyen mechanikai tulajdonságokkal rendelkezett a cirkónium burkolat.

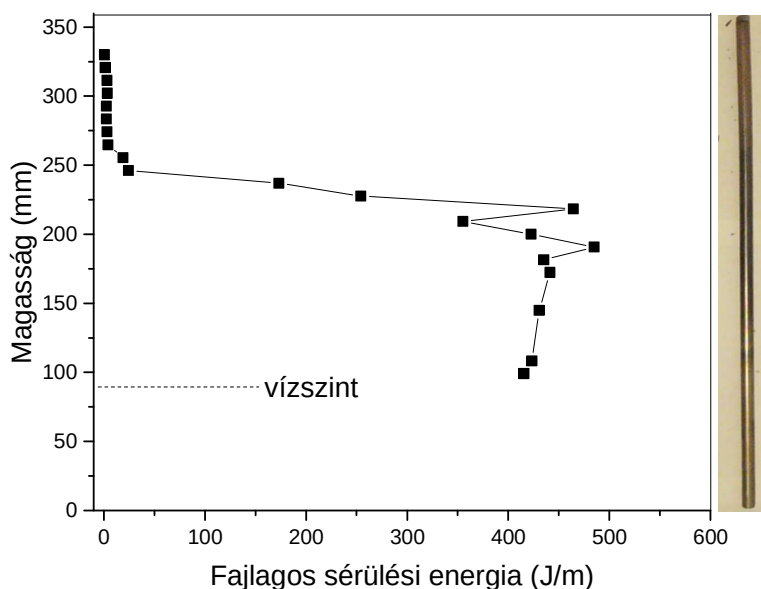
A burkolat mechanikai tulajdonságainak jellemzésére az előkísérletben olyan oxidált csöveket használtuk fel, amelyek 300 mm magasság fölött törtek el. A csövek felső része kisebb-nagyobb darabokra fragmentálódott, míg a csövek alja – amelyet folyamatosan hűtött a víz – teljesen ép volt. Így a felső, széttöredezett szegmens állapota hozzárendelhető volt a sérüléskor fellépett terhelésekhez. A vizsgálatokhoz a csövek alsó, egyben maradt szakaszából vágtunk ki 8-9 mm hosszú gyűrűket és azokkal végeztünk gyűrűroppantásos méréseket. A különböző magasságokból származó gyűrűk erő-elmozdulás diagramjai jelentős különbségeket mutattak. A csövek oxidálatlan részéből származó, legalsó gyűrűk képlékeny alakváltozást mutattak, jól megfigyelhető platóval a rugalmas alakváltozás után. A nagymértékben oxidált minták rideg sérülést szenvedtek, amit a görbék hirtelen letörése jelzett.



59. ábra: Az előkísérletben oxidálódott burkolatból, különböző magasságokban kivágott gyűrűk roppantásos vizsgálatának eredményei

A vizsgált csőszakasz felső – a kísérletben létrejött töréshez közeli – szakaszából származó gyűrűk kb. 100 N radiális terhelésnél törtek el (59. ábra). Az ehhez tartozó sérülési energia kevesebb, mint 1 J/m volt. Korábbi vizsgálataink szerint a képlékeny-rideg átmenet 50 J/m sérülési energia közelében lép fel [S9]. Az erő-elmozdulás diagramokból számított fajlagos sérülési energia a 225-240 mm közötti pálcaszakaszok esetében csökken le nagyon gyorsan, jelezve ezzel a képlékeny-rideg átmenetet (60. ábra).

A CODEX-CT előkísérletből származó minták jól mutatták, hogy az oxidált cirkónium burkolat a képlékeny-rideg átmeneten túl is jelentős teherbíróképességgel rendelkezik és megőrizheti integritását az üzemzavar során fellépő terhelések alatt is. A CODEX-CT kísérletek – és természetesen maga az üzemzavar is – felhívták a figyelmet arra is, hogy a hosszú idejű oxidáció olyan mértékben elridegítheti a cirkónium burkolatot, hogy az, egészen kis mechanikai terhelések hatására is megrepedhet, eltörhet.



60. ábra: Az előkísérletben oxidálódott burkolat gyűrűroppantásos vizsgálatából származó fajlagos sérülési energia a magasság függvényében

A kísérletek eredményei szerint a cirkónium komponensek elridegedésében az oxidáció és a fém hidrogénfelvétele egyaránt fontos szerepet játszott. A hidrogénfelvétel több különböző mechanizmussal is történhet:

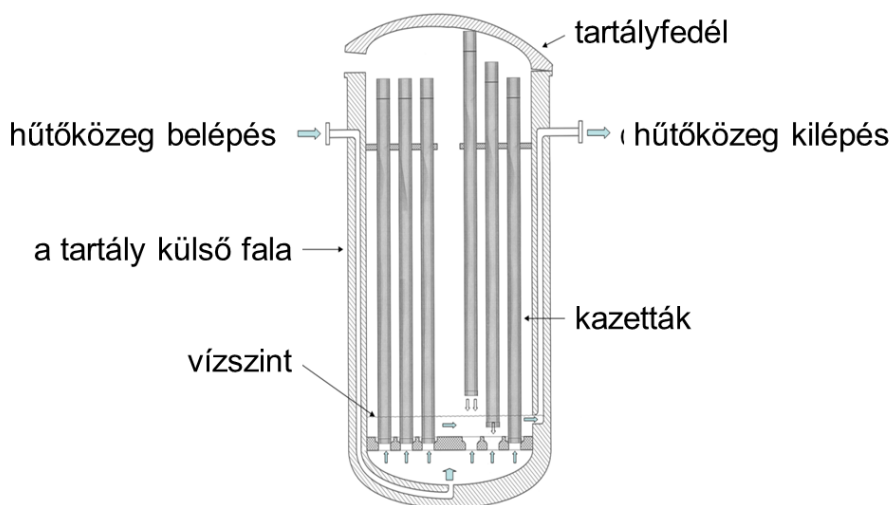
- Az üzemzavari felhasadást követő ún. másodlagos hidridizáció lokálisan meggyengíti a felfűvódott szakasz környékét [89].
- Normál üzemelés során a vízoldali korróziót kísérő hidrogénfelvétel jelentős mértékben ronthatja egyes cirkónium ötvözetek képlékenységet [90].
- Üzemzavari körülmények között az oxidréteg felhasadása miatt jöhet létre magas hidrogéntartalom a cirkóniumban a magas hőmérsékletű vízgőzös oxidáció során [S9].

- A CODEX-CT kísérletek rámutattak, hogy magas hőmérsékleten, hidrogéndús gőz atmoszférában is jelentős mennyiségű hidrogént vehetnek fel a cirkónium ötvözetek.

A két CODEX-CT köteg különböző mértékben oxidálódott (5. táblázat) és különböző mennyiségű hidrogént nyelt el. Ennek ellenére a kötegek tönkremenetele nagyon hasonló volt. A két mérés összevetése alapján arra a következtetésre jutottunk, hogy a paksi tartály légtelenítő szelepének állapota nem befolyásolta számottevően a fűtőelemek sérülését: mind zárt, mind nyitott, mind valamilyen közbülső állapot esetén a hét órás Zr oxidáció olyan mértékű elridegedést idézett elő, ami a fűtőelemek sérüléséhez vezetett az elárasztás során.

6.8. A kazetták felütközésének vizsgálata

A paksi üzemzavart követően sor került a tisztítótartály eltávolított fedelének vizsgálatára. A fedél belső felületén olyan karcolások voltak láthatóak, amelyek valószínűleg a kazettáktól származtak. Ehhez a kazettáknak függőleges irányban el kellett mozdulniuk eredeti helyzetükből. Az AEKI-ben 2007-ben kísérleteket végeztünk annak meghatározására, hogy milyen mechanizmus okozhatta a kazetták felütközését.



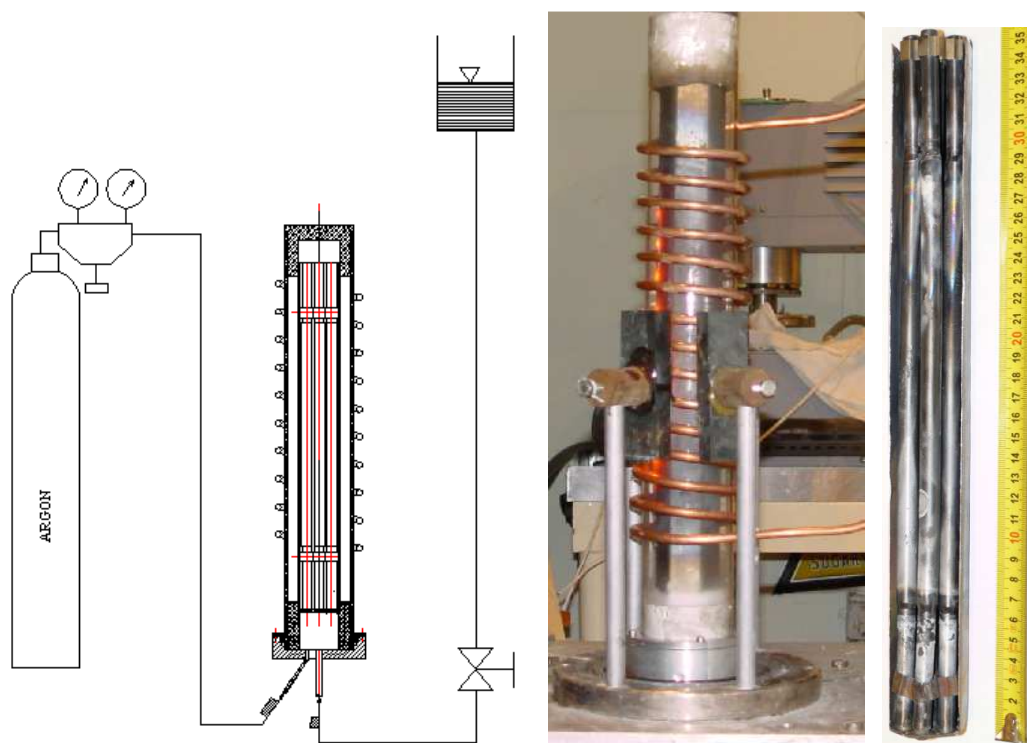
61. ábra: Kazetta felütközése a tisztítótartályban

6.8.1. A kísérleti berendezés

Egy olyan kísérlethez, ahol a fűtőelemek elmozdulását kívántuk vizsgálni, nem lehetett olyan kötegeket használni, amelyhez elektromos vagy nyomásszabályozó rendszerek csatlakoznak, hiszen a csatlakozók megakadályozták volna az elmozdulást. Ezért a kísérlet végrehajtásához indukciós kemencét alkalmaztunk, amelyben egy kisebb köteget helyeztünk el.

A 350 mm hosszú rudakban nem volt tabletta, a rudak le voltak dugózva. A köteget kazettafal vette körül. A rudak három szegmensből álltak. Az alsó és felső szegmens normál VVER-440 fűtőelem burkolat volt (átmérő 9,1 mm). A középső szakaszt 10,75 mm átmérőjű Zircaloy csövekből állítottuk össze – ez a szakasz modellezte a felfűvódás következtében létrejött áramlási keresztmetszet csökkenést. A köteget VVER-440-es hatszög rácson állítottuk össze, 12,3 mm-es rácsmérettel. A kötegben két távtartórács volt elhelyezve a középső szakasz két végén. A köteg tetején egy további lemez volt beépítve, ami rögzítette a köteget és további áramlási keresztmetszet csökkenést jelentett. A köteg tömege 591 g volt.

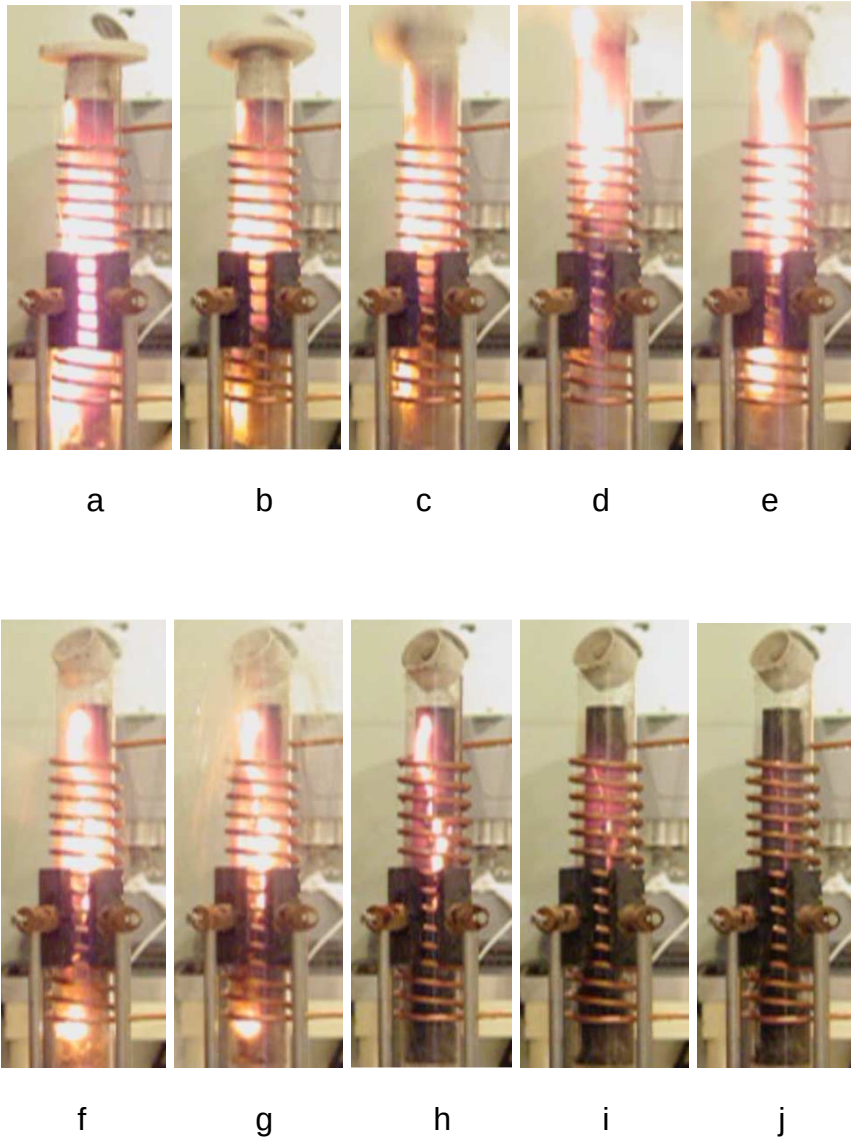
A köteg elárasztásához egy gravitációs elven működő vizes tartályt használtunk, amely a köteg aljához csatlakozott (62. ábra). A hét rúdból álló köteget egy kvarc cső vette körül, alul és felül – szabad függőleges elmozdulást megengedő – kerámia tartók rögzítették. A mérésekre argon atmoszférában került sor.



62. ábra: A kazetta felütközéshez használt kísérleti berendezés sémája (baloldali kép), köteg a mérőszakaszban (középső kép) és köteg a kazettafal részleges eltávolítása után (jobb oldali kép)

6.8.2. A felütközéses kísérlet végrehajtása

A kísérlet során, az elárasztáskor a betáplált víz a köteg belsejébe jutott és a hirtelen gőzfejlődés a kazetta függőleges elmozdulását okozta. A kazetta kiütötte a kvarccsövet felülről lezáró kerámia dugót. A kísérletet videó felvételen rögzítettük (63. ábra). Ennek alapján a köteg függőleges elmozdulása 9 cm volt.



63. ábra: A kazettafelütközéses kísérlet során készült felvételek

A kísérlet végrehajtásának fő lépései az alábbiak voltak:

- A kemencében elhelyezett köteget argon atmoszférában felmelegítettük 1050 °C-ra. A hőmérsékletet pirométerrel mértük a köteg középső szakaszán (63.a ábra).
- A köteg elárasztásához 0,6 l vizet használtunk fel, amit a köteg aljához képest 1,5 m magasan található tartályból engedtünk be. (Ez a vízmennyiség a mérőszakasz magasságának feléig tudta volna feltölteni a köteget, ha nem forr el.)
- Amint a víz elérte a köteg alját, látható volt, hogy a felső kerámia dugó emelkedni kezd (63.b ábra), majd kilöködik a helyéről (63.c ábra) és a köteg a kvarccső felső pereme fölé emelkedik (63.d ábra).
- A felső pozíció elérése után a köteg leesett (63.e ábra), sőt a kerámia dugó is visszaesett a kvarccső tetejére (63.f. ábra).

- A vízbe visszaérkezett forró köteg kölcsönhatásba lépett a hűtőközeggel és ennek eredményeként forró gőz és víz távozott a kvarccső felső végén (63.g ábra).
- A folyamat gyorsaságát jellemzi, hogy a 63.b és 63.g. felvételek között kevesebb, mint egy másodperc telt el.
- Végül az indukciós kemencét kikapcsoltuk és a köteg lehűlt (63.i-k ábrák).

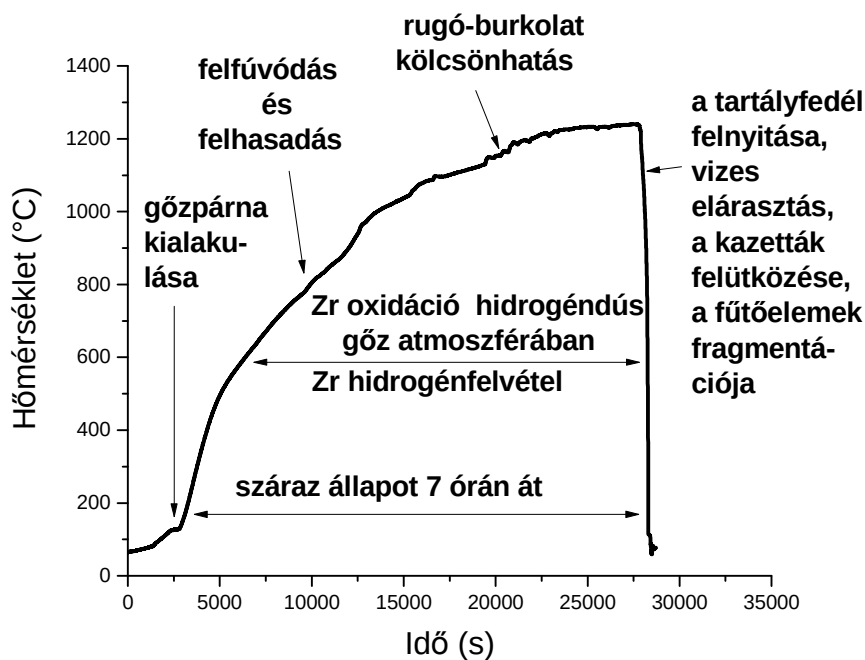
A kísérlet előkészítésekor azt tapasztaltuk, hogy ha az alsó kerámia tartó és a köteg között nagy rés volt, akkor a beáramló víz jelentős része a kazettafal és a kvarccső közötti résbe jutott és a keletkező gőz – a fentiekhez hasonló körülmények között – nem idézte elő a kazetta elmozdulását.

6.8.3. Következtetések

Az eredmények szerint a kazetták felütközését valószínűleg több, egymást követő folyamat eredményezte.

- Először a fűtőelemek felfúvódása történt meg, ami a kazetta áramlási keresztmetszetét lecsökkentette.
- A fedél nyitásakor az alacsony vízszint megemelkedett és a szivattyú által betáplált víz elérte a rudak forró felületét a kazettákon belül.
- Végül a hirtelen képződő gőz kiáramlása a kazettából lefelé okozta a kazetta függőleges elmozdulását.

A kazetták felütközésére a paksi üzemzavart legvégén, a tartályfedél felnyitásakor kerülhetett sor (64. ábra)



64. ábra: A fűtőelemek tönkremenetelének lépései a paksi üzemzavar során

dc_1019_15

A kísérleti köteg és a paksi kazetta elmozdulásának modellezése alapján a következő konklúziókat vontuk le:

- A kisméretű kísérleti köteg elmozdulásához elegendő lehetett 0,2 bar túlnyomás, amihez mindössze néhány tized gramm gőz képződésére volt szükség.
- A tisztítótartályban a kazetta elmozdulásához 2-3 bar túlnyomásra volt szükség. Ennek létrejöttéhez néhányszor tíz gramm vízgőz is elegendő lehetett. A magas hőmérsékletű kazettában könnyen kialakulhatott olyan hőfluxus, amely nagyon gyors gőzképződést eredményezve produkálta ezt a gőzmennyiséget.

7. A sérült fűtőelemek átmeneti tárolása

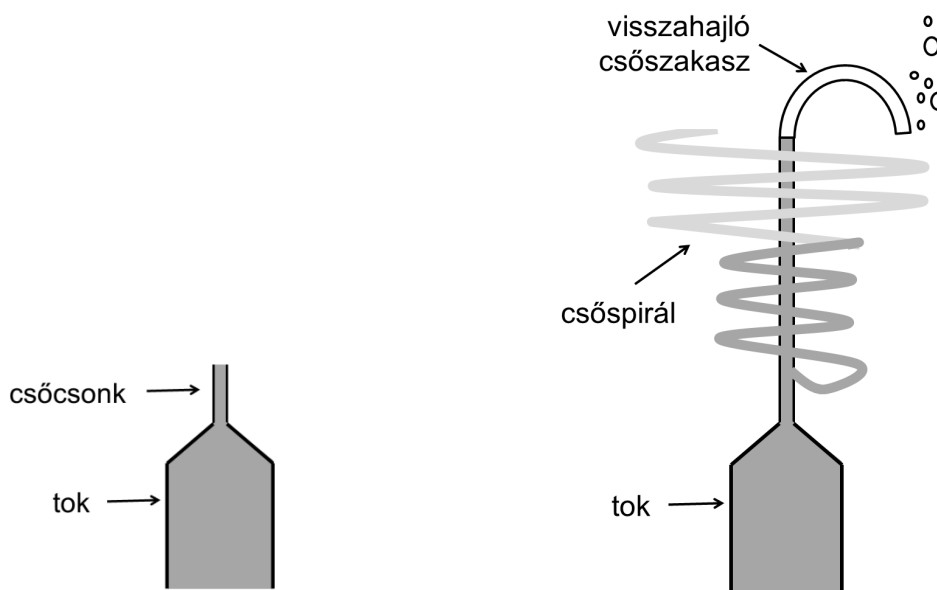
A 2003. áprilisi paksi üzemzavar során megsérült fűtőelemek átmeneti tárolására olyan acéltokokat fejlesztettek ki, amelyek az eltávolítási munkák után elhelyezhetők voltak a 2. blokki pihentető medencében.

Annak érdekében, hogy a – tablettákkal közvetlenül érintkező vízben, az α -sugárzó izotópok jelenléte miatt fokozottan fellépő – radiolízis során fejlődő hidrogén ne halmozódhasson fel a tok belsejében, a tokokat nem zárhatták le hermetikusan. Ugyanakkor olyan műszaki megoldásra volt szükség, amely megakadályozta, hogy a tokokból radioaktív izotópok kerüljenek ki a pihentető medence vizébe.

A tervezési fázisban a tok fejrészének kialakítására több lehetőség is szóba került az orosz-magyar szakértői egyeztetéseken. Az AEKI-ben részletes számításokat végeztünk olyan konstrukciókra (65. ábra), amelyekben

- csak egy rövid csőcsonk volt a tok tetején, illetve
- egy csőspirálból és egy visszahajló csőszakaszból álló kompenzátor megoldást alkalmaztak.

Az előzetes számítások jelezték, hogy az egyszerű csőcsonk lehetővé teszi nagymennyiségű vízben oldott radioaktív izotóp kijutását a tokokból és valószínűsítették, hogy a javasolt konstrukciójú kompenzátor képes megakadályozni a pihentető medence elszennyeződését.



65. ábra: A tárolótok és a pihentető medence közötti összeköttetés csőcsonk (baloldali ábra) és kompenzátor egység (jobboldali ábra) alkalmazásával.

A számításokban négy kikerülési mechanizmust vettünk figyelembe:

- Diffúzió. Az elektrokémiai adatok alapján végzett számítások eredményei szerint ez a folyamat még kompenzátor nélkül is csak elhanyagolható mértékű kikerülést eredményezne.
- Hőtágulás. Ez a folyamat egyszerűen számolható. A pihentető medence hőmérsékletváltozását követve ciklikusan léphet fel és átmeneti aktivitás-

koncentráció növekedést eredményezhet, ha nincs megfelelő hosszúságú csőspirállal ellátott kompenzátor.

- Buborékolás. A buborékkal együtt mozgó folyadék mennyiségének becsléséhez felhasználtuk a buborék virtuális tömegére ismert adatokat. Ezzel a megközelítéssel jelentős kikerülés adódott nyitott csőcsonk esetén. A visszahajló csőszakasz számításához nem állt rendelkezésre részletes modell.
- Konvekció. A tokon belüli víz melegebb a maradványhő miatt, mint a felette lévő medence, ezért áramlások indulnak meg a tok és a medence vize között. Az áramlási kép és az anyagcsere leírására végzett előzetes CFD számítások nem jeleztek számottevő kikerülést.

A számítási modellek bizonytalansága miatt az utóbbi két mechanizmus kísérleti vizsgálatát tartottuk szükségesnek.

- A buborékoláskor a tokból távozó buborékokkal folyadék kerül ki a külső térbe [92]. Mérésekre volt szükség a kompenzátorra tervezett geometriában, a jellemző buborék méretekkel (7.1. fejezet).
- A hideg és meleg folyadékok ellentétes irányú konvekciós áramlása elsősorban a csőspirál geometriájában vetett fel kérdéseket (7.2. fejezet).

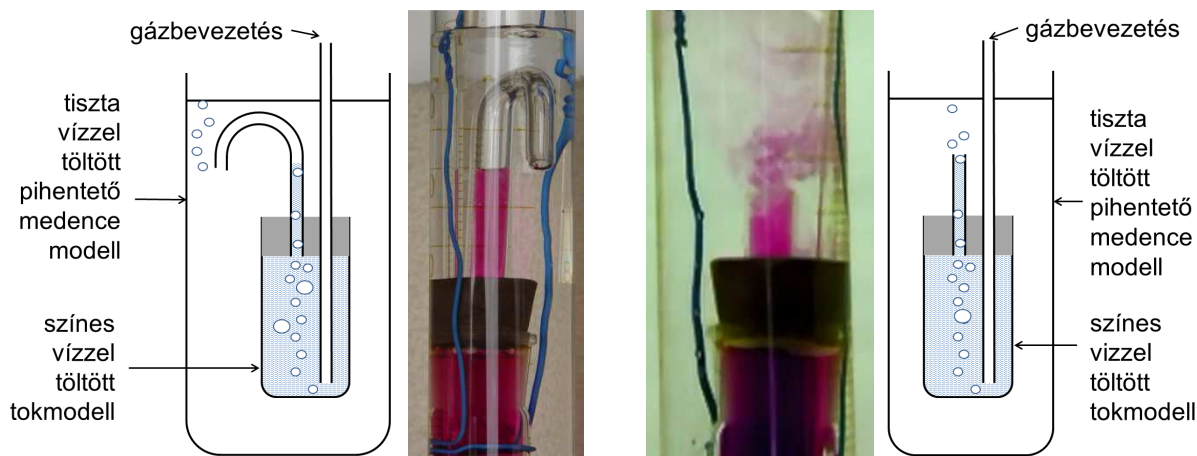
Végül el kellett végezni olyan méréseket is, amelyek alapján az egy időben fellépő buborékolás és a konvekció közös hatását lehetett értékelni (7.3. fejezet).

7.1. A buborékolás hatásának vizsgálata

A buborékolás hatásának vizsgálatára létrehozott kísérleti berendezés egy mérőhengerbe helyezett függőleges csövet tartalmazott. A mérőhenger a pihentető medencét modellezte, a belső cső pedig a tárolótokot (66. ábra). A belső cső záródugójába volt beillesztve a csonk, illetve a visszahajló csövet modellező kivezető cső, valamint egy gázbevezető cső, amellyel a belső cső aljába lehetett gázt juttatni. Kétféle méretű gázbevezető csővel dolgoztunk: az 1 mm átmérőjű cső végén nagyméretű (0,3-0,5 cm³ térfogatú), a kapilláris cső végén pedig kisméretű (0,1 cm³ térfogatú) buborékok keletkeztek. A kivezető cső belső átmérője 10 mm volt. A berendezéssel két alapesetet modelleztünk (66. ábra):

- egyenes függőleges cső a csőcsonk modellezésére,
- felső végén visszahajló cső a kompenzátor egység gázbevezető ágának modellezésére.

A tárolótok belsejében található radioaktív oldatot kálium-permanganáttal festett vízzel helyettesítettük. A kísérlet kezdetén a belső tartályt megtöltöttük kálium-permanganát oldattal, majd megindítottuk a gázáramot. A mérések során meghatározott időközönként a külső hengerből vettünk 5-5 ml mintát, a belső tartály oldatából pedig a kísérlet kezdetén és végén. A koncentrációk megállapításához spektrofotométert használtunk. Alapvető kérdés volt annak meghatározása, hogy egységnyi térfogatú gázzal együtt mennyi szennyezett folyadék távozott a tokmodellből. A csőcsonk modellezésére kialakított berendezéssel több kísérletsorozatot végeztünk el. Ezekben vizsgáltuk a tartályból kivezető cső hosszának, a buborékok méretének és a gázforgalomnak a hatását a belső és a külső tér közötti anyagátadásra.



66. ábra: A buborékolás vizsgálatához használt kétfajta elrendezés: visszahajló cső (bal) és egyenes csőcsonk (jobb)

Az egyenes csővel végzett kísérletekben azt tapasztaltuk, hogy a buborékok felfelé irányuló mozgásakor a tokot modellező térfogatból valamennyi színes folyadék átjutott a külső – pihentető medencét modellező – térfogatba. A színes folyadék egy rövid ideig kísért a felfelé szálló buborékot a külső térfogatban, majd leszakadt róla. Abban az esetben, ha a kivezető cső rövid volt (5 cm) és a gázbevezetés 1 mm átmérőjű csövön történt, 1 cm^3 gázzal $0,5 \text{ cm}^3$ színes folyadék került ki a külső térfogatba. Hosszabb kivezető csővel (10 cm) és a kapilláris bevezető csővel ez az érték $0,2 \text{ cm}^3$ volt. A folyamatos buborékolás eredményeként a külső térfogatban található víz elszíneződött, jelezve az intenzív kikerülést a tok modelljéből.

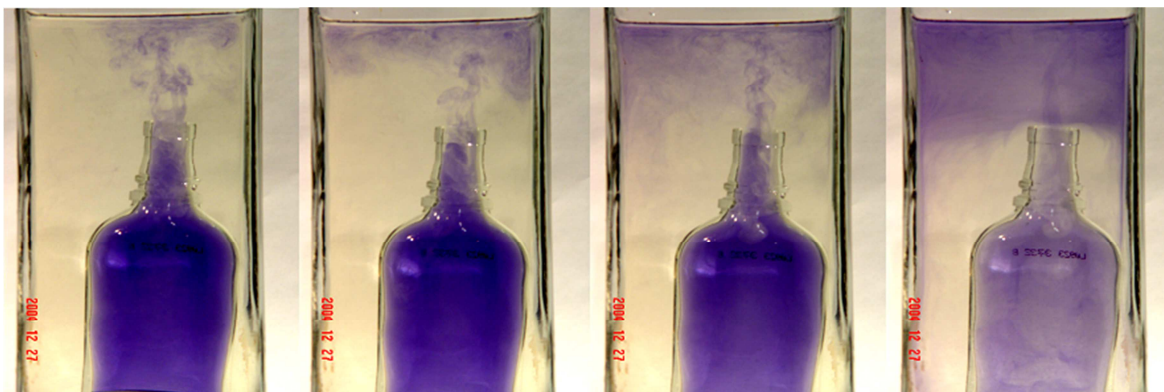
A visszahajló csővel végzett mérésekben a gázbevezetés nem hozott ki oldatot a belső tartályból. A visszahajló cső belső ágában a felfelé szálló buborékról a színes folyadék leszakadt és a cső másik ágában egy olyan buborék lépett ki, amit nem vett körül színes folyadék. A visszahajló cső felső terében egy gázzár alakult ki, ami lemosta a buborékról a szennyezett folyadékot. Hosszúidejű mérésekben nem tapasztaltunk sem látható, sem mérhető mértékű elszíneződés a külső térfogatban.

7.2. A konvekció hatásának vizsgálata

7.2.1. Előkísérlet

A nagyléptékű berendezés létesítése előtt demonstrációs kísérletet hajtottunk végre egyszerű eszközök segítségével. Egy üvegtartályba hideg vizet öntöttünk (ez modellezte a pihentető medencét), egy laposüveget pedig (ami a tokokat szimulálta) tintával megfestett melegvízzel töltöttünk fel (67. ábra).

A laposüveget óvatosan behelyeztük az üvegtartályba. A laposüveg és a tartály térfogata között intenzív áramlás jött létre, amit egyrészt a színes meleg víz felfelé áramlása, másrészt a – kezdetben színtelen, majd egyre jobban elszíneződő – hidegvíz lefelé áramlása jellemzett.



67. ábra: A konvekciós előkísérlet során készített, időben egymást követő felvételek

Az üveg csoncja felett színes, az üvegen belül pedig világos csóvák jelentek meg, majd a tartály felső térfogata teljesen elszíneződött, miközben a laposüveg egyre világosabb lett. Az előkísérlet egyértelműen jelezte intenzív áramlások kialakulását a hideg és meleg folyadékkal töltött térfogatok között, ha a meleg víz van kezdetben alul.

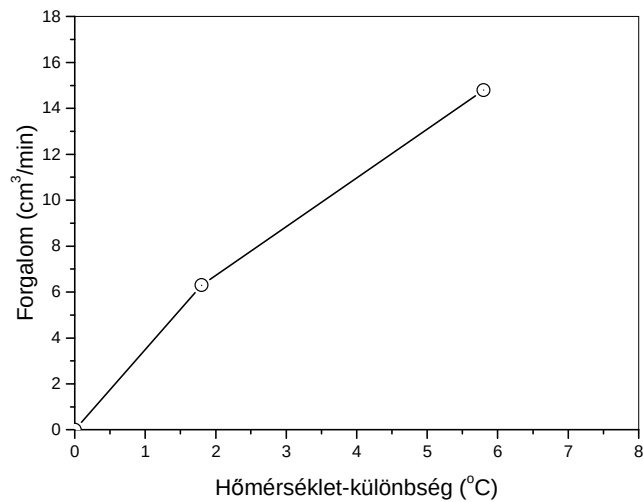
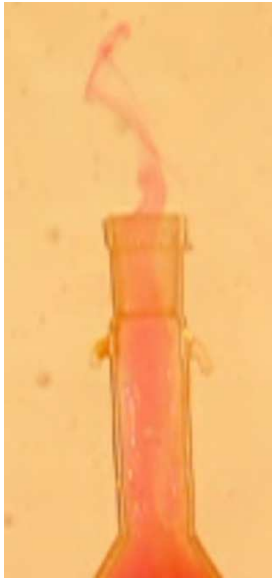
7.2.2. Nagyléptékű kísérletek

A konvekciós mechanizmus és a buborékolás együttes vizsgálatára a valóságos méretekhez közelebb álló berendezést is építettünk. A 8 liter térfogatú tok modellje üvegből készült. A pihentető medencét egy 300x300x2000 mm méretű, négyzetes hasáb alakú, plexiből készült tartály modellezte, amelyet feltöltöttünk tiszta vízzel a mérések elején. A tokmodellt a plexi tartály közepére állítottuk be. Így a kísérletek során látható volt a tokba töltött színes KMnO_4 oldat és követhető volt külső térben található víz elszíneződése is. A belső tokmodell tartalmazott egy fűtőtestet a maradványhő szimulációjára. A tokmodellben és a külső tartályban végbemenő koncentráció-változásokat ennél a berendezésnél is spektrofotométeres eljárással követtük.

Két olyan kísérletet végeztünk, amikor a tokmodell tetején nem volt semmilyen szerelvény, csak egy 10 cm hosszúságú függőleges csonc. A kísérletek során a folyadékcsere a külső és belső tér között a hőmérséklet-különbségek hatására jött létre. A csőcsonkon kiáramló színes folyadékcsóvák egyúttal megfigyelhető volt, hogy a meleg víz helyére beáramló tiszta hideg víz felhígította a tok felső részében a KMnO_4 oldatot (68. ábra).

A két mérésben 80 W és 363 W fűtőt teljesítményt használtunk, ami 1,8 °C illetve 5,8 °C hőmérséklet-különbséget eredményezett a belső és a külső terek között. A forgalom jelentősen függött a hőmérséklet-különbségtől (68. ábra). A forgalom és hőmérséklet-különbség adatokból átlagosan $\approx 3 \text{ cm}^3/\text{perc}$ kiáramló mennyiséget kaptunk 1 °C hőmérséklet-különbség esetére.

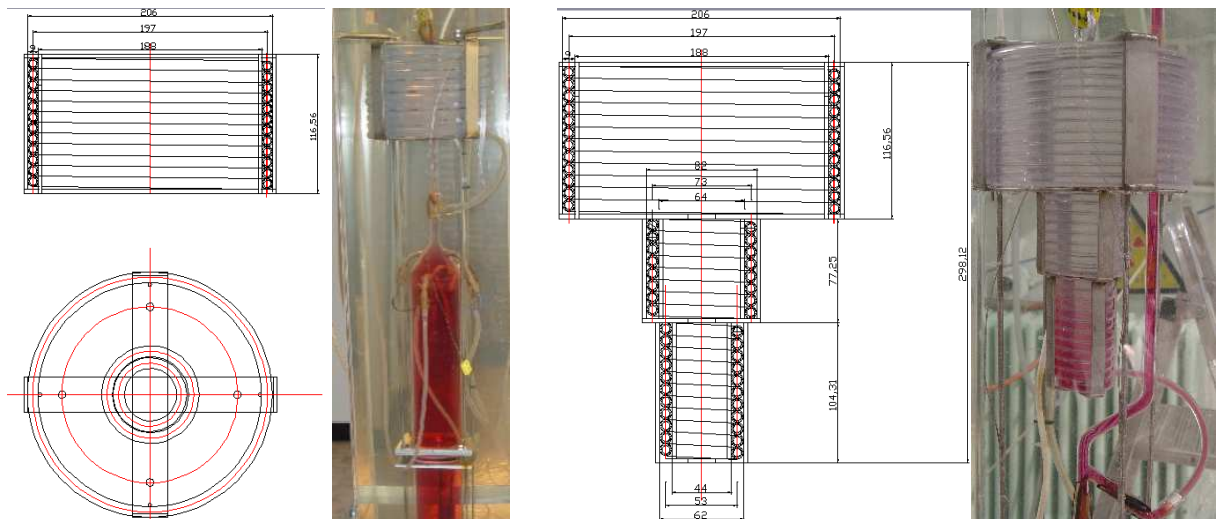
A buborékolásra és a konvekcióra kapott mért értékkel – a tokban kialakult aktivitás-koncentrációk és gázfejlődés ismeretében – becslést lehetett készíteni a tokból származó aktivitáskikerülésre azokra az állapotokra, ha a tok valamilyen okból, bizonyos ideig nyitva volt [S27].



68. ábra: A csőcsonkon kiáramló áramlás képe (baloldali ábra) és nagysága a hőmérséklet-különbség függvényében (jobb oldali ábra)

7.3. A buborékolás és konvekció együttes vizsgálata

A konvekciós kikerülési mechanizmusról a 7.2.2. fejezetben elegendő adatot kaptunk arra az esetre, ha egy csőcsonk zárja le a tárolótokat. További kísérletekre volt szükség ahhoz, hogy a kompenzátor egységnek megfelelő hosszú csővezetékben végbemenő konvekciós folyamatok hatását is meg lehessen becsülni. Ezekre a mérésekre a kompenzátor egység modelljének felhasználásával, a buborékolás és a konvekció együttes vizsgálatakor került sor.



69. ábra: A két vizsgált csőspirál vázlata és fényképe

A tárolótokok kompenzátor egysége egy több méteres csőkégyőből és egy visszahajló végű, függőleges csőből állt. A csőkégyő oldalról és egyben alulról

csatlakozott a csonkhoz, ez a megoldás megakadályozta a gázbuborékok bejutását a hosszú, spirális alakú csőbe. A visszahajló cső felülről csatlakozott a tok csonkjához és az összes buborék ezen keresztül távozott. A kísérletekhez két kompenzátor modellt hoztunk létre. Ezekben eltérő volt a csőspirál geometriai elrendezése, a visszahajló egyenes cső mindkét esetben a spirál feletti térben végződött (69. ábra).

Az első csőspirál 10 mm belső átmérőjű átlátszó műanyag csőből készült, teljes hossza 8 m volt és minden menete azonos méretű volt (69. ábra baloldali képe). A második csőkígyó három különböző átmérőjű szakaszból állt a tok felső részének valós geometriáját követve. A kompenzátor teszteléséhez 363 W elektromos teljesítménnyel fűtöttük a tokmodellt és $20 \text{ cm}^3/\text{min}$ gázforgalmat engedtünk be a tok aljába. A mérés során a színes folyadék – a hőtágulás eredményeként – megjelent a csőkígyók alsó meneteiben. Később, a berendezés lehűtésekor megfigyelhető volt, hogy a színes folyadék visszaáramlott – a folyadék összehúzódásának megfelelően – a tokba. A visszahajló cső víztere ebben az esetben is elszíneződött, de a kiáramló gáz itt sem vitt magával vízben oldott anyagot a tokból a medencébe. A berendezés többnapos megfigyelése alatt sem volt tapasztalható vagy mérhető a medence elszíneződése. A berendezéssel további méréseket nem végeztünk, mivel a mérési paraméterek (gázforgalom, teljesítmény) jóval a Pakson várható értékek felett voltak és még így sem volt tapasztalható kikerülés a tokmodellből.

8. Összefoglalás, tézispontok

A fűtőelemek integritását üzemzavari és baleseti helyzetekben számos folyamat veszélyeztetheti. A vezetésemmel végrehajtott hazai fűtőelemes kísérletekben megpróbáltuk feltérképezni azokat a paramétertartományokat és azonosítani azokat a jelenségeket, amelyek a cirkóniumburkolat épségének elvesztéséhez vezethetnek. A kísérletek között voltak bizonyos részjelenségek vizsgálatára alkalmas kisléptékű kísérletek. A fűtőelemek sérülését kísérő fő folyamatok együttes megismerésére a CODEX berendezésen végeztünk integrális méréseket.

A kísérleti eredmények bekerültek azokba a hazai (MTA EK) és nemzetközi (OECD, NAÜ, EU) adatbázisokba, amelyeket a fűtőelemviselkedési és a súlyos baleseti számítógépes kódok továbbfejlesztéséhez és validációjához használnak.

Az atomerőművi fűtőelemek burkolatával végzett mérésekből származó eredményeimet az első öt tézispontban foglalom össze. A hatodik tézispont a sérült üzemanyag tárolásának vizsgálatára vonatkozik.

1. tézispont (a dolgozat 2. fejezete alapján)

A VVER fűtőelem-burkolatok felhasadásának vizsgálatára több mérési programot kezdeményeztem, amelyek alapján meghatározhatóak voltak a képlékeny alakváltozás és sérülés legfontosabb tényezői az E110, az E110G és a Zircaloy-4 ötvözetekre [S3][S4][S5]. A mért adatok feldolgozásával rámutattam, hogy

- az E110 és E110G burkolatok nagyon hasonló viselkedést mutatnak a felhasadás tekintetében [S5],
- az oxidáció hatására lokális maximum jelentkezik a felhasadási nyomásban 10–20 μm vastag oxidrétegnél [S3],
- a távtartórács jelentős mértékben gátolja a felfúvódást és meg is akadályozhatja a felhasadást [S4],
- a felfúvódás hatására a VVER üzemanyag-kazettákban nem jön létre olyan mértékű elzáródás, ami a hűthetőséget veszélyeztetné [S3].

2. tézispont (a dolgozat 3. fejezete alapján)

A vezetésemmel végzett mérési sorozatokban sikerült feltérképezni azt a tartományt, ahol az oxidált E110, E110G és Zircaloy-4 cirkónium burkolatok rideg sérülése bekövetkezhet [S9][S5]. Rámutattam, hogy a fajlagos sérülési energia bevezetésével könnyen jellemezhető a minták rideg és képlékeny állapota. Szobahőmérsékleten végzett mechanikai vizsgálatok alapján meghatároztam az E110, E110G és Zircaloy-4 ötvözetek képlékeny-rideg átmeneti függvényeit, amelyek megadják, hogy az adott hőmérsékleten mennyi idő után ridegedik el a burkolat kétoldalú oxidáció esetén. Igazoltam, hogy az oxidációs kritérium az E110G ötvözetre a gyűrűtöréses mérési eljárással közvetlenül is megalapozható.

3. tézispont (a dolgozat 4. fejezete alapján)

A világon az első integrális légbetöréses súlyos baleseti kísérleteket a vezetésemmel hajtották végre a CODEX berendezésen [S13]. Az eredmények kiértékelésével bizonyítottam, hogy levegős atmoszférában a fűtőelemek degradációja felgyorsul a vízgőzös körülményekhez képest. A cirkónium felületeken nemcsak oxid- hanem nitridrétegek is létrejönnek. A súlyos baleseti folyamatot urán tartalmú aeroszokok kibocsátása kíséri.

4. tézispont (a dolgozat 5. fejezete alapján)

A CODEX berendezésen olyan kísérletre került sor a vezetésemmel, amelyben a VVER-1000 reaktorok fűtőelemeinek súlyos baleseti tönkremenetelének fő folyamatait sikerült megfigyelni [S10]. A mérések eredményei alapján rámutattam, hogy a bór-karbid szabályozó rudak oxidációja nem vezet számottevő mennyiségű metán képződéséhez a súlyos baleset kezdeti szakaszában. A kísérlet jelezte, hogy a VVER fűtőelemek sérülése – a különböző geometriai elrendezés és a más típusú cirkónium ötvözetek ellenére is – hasonlóképpen megy végbe, mint a részletesen kutatott nyugati PWR fűtőelemeké.

5. tézispont (a dolgozat 6. fejezete alapján)

A 2003. évi paksi üzemzavar során történt fűtőelem-sérüléseket kísérő jelenségek és a sérülési mechanizmusok megismerésére kísérleti programot dolgoztam ki [S4][S26][S27]. A CODEX-CT kísérletek eredményeinek feldolgozásával rámutattam, hogy az üzemzavar során megfigyelt első aktivitás-kibocsátások a burkolat felhasadásához kapcsolódtak. A tisztítótartály légtelenítő szelepének állapota hatással lehetett az oxidációs folyamatra, de a cirkónium ötvözet nagymértékű elridegedése – mind nyitott, mind zárt szelepállapot mellett – bekövetkezhetett. Megállapítottam, hogy burkolat rideg tönkremenetele csak jóval a képlékeny-rideg átmenetet meghaladó mértékű oxidáció után lépett fel, ami jelezte, hogy a cirkóniumburkolat jelentős mechanikai teherbíró képességgel rendelkezik az képlékeny-rideg átmeneten túl is. A kazetták felütközése a tartály felnyitásakor, azaz az üzemzavar utolsó szakaszában következett be.

6. tézispont (a dolgozat 7. fejezete alapján)

A paksi sérült fűtőelemek tárolótokjainak vizsgálatára inaktív anyagokkal végzett kísérleti programot vezettem [S24]. A mérések eredményei alapján igazoltam, hogy a hosszú csőspirálból és visszahajló rövid csőből álló kompenzátor fejrész lehetővé teszi a gázok távozását, miközben megakadályozza a vízben oldott radioaktív hasadási termékek kikerülését a tokokból.

9. Az eredmények hasznosulása

A dolgozatban bemutatott kísérleti munka célja – más alkalmazott kutatásokhoz hasonlóan – nemcsak az volt, hogy új ismeretekkel rendelkezünk bizonyos jelenségekről és folyamatokról, hanem az is, hogy ezek az új ismeretek hasznosuljanak a gyakorlatban. Az atomerőművi fűtőelemes kutatásokra ez fokozottan így van, hiszen a vizsgálatokat elsősorban azért végezzük, hogy az atomerőművek biztonságos üzemelését az új ismeretekkel is elősegítsük. Az alábbiakban röviden felsorolom az egyes tézispontokban bemutatott eredmények néhány konkrét felhasználását.

Az 1. tézispontban leírt eredmények hasznosulása

A felfűvódásos méréseket tartalmazó adatbázis alapján E110 és E110G specifikus modelleket fejlesztettek ki a tranziens fűtőelemviselkedési kódokban annak érdekében, hogy a burkolat felhasadását a biztonsági elemzésekben megfelelő pontossággal lehessen előre jelezni. A TRANSURANUS [S8] és a FRAPTRAN [47] kódok VVER specifikus felhasadási modelljeit a magyar felfűvódásos mérések alapján hozták létre.

A hazai felfűvódásos mérések adatai bekerültek az OECD NEA fűtőelemes adatbázisába is [S6] és a NAÜ által szervezett FUMAC [93] kódvalidációs projektben a résztvevő szakemberek ezekkel fogják tesztelni a tranziens fűtőelemviselkedési kódokat.

A 2. tézispontban leírt eredmények hasznosulása

A képlékeny-rideg átmenet meghatározására kidolgozott eljárásom részét képezi az OECD szakértői által készített LOCA kísérletekre vonatkozó módszertani dokumentumnak [57].

A 3. tézispontban leírt eredmények hasznosulása

A CODEX-AIT kísérletek tapasztalatai alapján indultak meg a levegős súlyos baleseti kutatások a német QUENCH [S18][S19] és az orosz PARAMETER [S25] berendezéseken.

Az ICARE2 [S11] és a ATHLET-CD [94] kódok magas hőmérsékletű levegős oxidációs kinetikai modelljeinek fejlesztéséhez felhasználták az CODEX-AIT mérések adatait.

Az OECD egyik szakértői munkacsoportja szerint a CODEX-AIT mérések fontos ismereteket jelentenek a pihentető medence baleseteinek elemzéséhez [23]. Ezek a kísérletek szerepelnek az OECD súlyos baleseti kódvalidációs mátrixban is [95].

A 4. tézispontban leírt eredmények hasznosulása

A CODEX-B4C mérési adatokat felhasználták a B₄C oxidációs modellek fejlesztéséhez az ICARE/CATHARE kódban [S12], valamint a ATHLET-CD [73] és ASTEC [74] súlyos baleseti kódok validálásához is.

A B₄C rudakkal üzemelő erőművekben nem kell a metán megjelenésével számolni, ez egyszerűsíti a balesetkezelési eljárásokat.

A B₄C szabályozórudak degradációjáról szerzett ismeretek hasznosak az új paksi blokkok súlyos baleseti elemzéseinél is [S29].

Az 5. tézispontban leírt eredmények hasznosulása

A 2003. évi paksi üzemzavar lefolyásának fontos részleteit tisztázták az AEKI-ben végrehajtott mérések. A paksi tisztítótartályból eltávolított üzemanyag mérlegének összeállításakor az erőmű szakemberei – a hatóság egyetértésével – a CODEX-CT-1 mérésből származó cirkónium oxidációs fokot és hidrogénképződést használták fel.

A CODEX-CT kísérletek eredményeit felhasználták az ASTEC és ICARE/CATHARE súlyos baleseti kódok VVER specifikus modelljeinek továbbfejlesztéséhez is [34].

A 6. tézispontban leírt eredmények hasznosulása

A kompenzátor fejrésszel ellátott tokokat legyártották és a paksi atomerőmű pihentető medencéjében ezekben tárolták 2007 és 2013 között a sérült kazettákat, illetve a törmeléket. A tárolás során a kompenzátorok végig megfelelően működtek, a pihentető medencébe nem szivárogtak radioaktív izotópok a tárolótokokból.

10. Rövidítések és jelölések

AEKI	Magyar Tudományos Akadémia KFKI Atomenergia Kutatóintézet
ASTEC	Accident Source Term Evaluation Code
BWR	Boiling Water Reactor (forralóvízes reaktor)
CDC	Capsule Driver Core
CFD	Computational Fluid Dynamics
CODEX	COre Degradation Experiment (hazai súlyos baleseti kísérleti berendezés)
CSNI	Committee on the Safety of Nuclear Installations
ECR	Equivalent Cladding Reacted (az oxidáció mértéke)
E110	Nióbium tartalmú orosz cirkóniumötvözet (elektrolitikus eljárással gyártva)
E110G	Nióbium tartalmú orosz cirkóniumötvözet (Kroll eljárással gyártva)
FRAPTRAN	Fuel Rod Analysis Program Transient
FUMAC	Fuel Modelling in Accident Conditions
FZK	Forschungszentrums Karlsruhe
JAERI	Japan Atomic Energy Research Institute
JRC ITU	Joint Research Centre, Institute for Transuranium Elements
LOFT	Loss-of-Fluid Test (Idaho National Engineering Laboratory)
LOCA	Loss of Coolant Accident (hűtőközegvesztéses üzemzavar)
MAAP	Modular Accident Analysis Program
MTA EK	Magyar Tudományos Akadémia Energiatudományi Kutatóközpont
NAÜ	Nemzetközi Atomenergia Ügynökség
NSRR	Nuclear Safety Research Reactor (japán kutatóreaktor)
OECD	Organisation for Economic Co-operation and Development
OPSA	Oxidation Phenomena in Severe Accidents (EU projekt)
PBF	Power Burst Facility (amerikai kutatóreaktor)
PCT	Peak Cladding Temperature (maximális burkolathőmérséklet)
PWR	Pressurized Water Reactor (nyomottvízes reaktor)
RIA	Reactivity Initiated Accident (reaktivitás üzemzavar)
SPERT	Special Power Excursion Reactor Tests
TMI	Three Mile Island (amerikai atomerőmű)
TREAT	Transient Reactor Test Facility (Idaho National Laboratory)
VVER	Orosz tervezésű nyomottvízes reaktor

11. Köszönetnyilvánítás

Köszönettel és hálával tartozom Maróti Lászlónak, Gadó Jánosnak, néhai Windberg Péternek és néhai Matus Lajosnak, akik a kilencvenes évek elején elindították a hazai fűtőelemes kísérleti kutatásokat. A dolgozatomban az általuk elkezdett mérések szerves folytatásaként végzett kutatások eredményei közül ismertettem néhányat.

A bemutatott kísérletek előkészítésében, végrehajtásában és kiértékelésében számos közvetlen kollégám vett részt.

- Köszönöm Nagy Imrének és Windberg Péternek, hogy vezető szerepet vállaltak több kísérleti berendezés tervezésében, megépítésében és a mérések sikeres végrehajtásában.
- Perezné Feró Erzsébetet, Novotny Tamást és Matus Lajost köszönet illeti a cirkónium minták magas hőmérsékletű oxidációjának és hidrogénezésének precíz megvalósításáért, valamint az oxidált minták hidrogéntartalmának méréséért.
- Hálás vagyok Horváth Lászlónénak az oxidált cirkónium minták nagy körültekintéssel végrehajtott mechanikai teszteléséért és metallográfiai vizsgálataiért, valamint Pintérné Csordás Tóth Annának az elektronmikroszkópos technikák széleskörű alkalmazásáért.
- Köszönöm Vimi András, Kunstár Mihály, Vér Nóra és Frecska József sokoldalú és nélkülözhetetlen közreműködését több magas hőmérsékletű mérési programban.
- Győri Csaba számos ötlettel támogatta a kísérleti programok előkészítését és a mérések kiértékelését, amit ezúton is köszönök.

Az említett kollégákon kívül sok más hazai és külföldi szakember is részt vett a kísérletek speciális szaktudást igénylő problémáinak megoldásában, az előkészítő és utószámítások végrehajtásában, különleges anyagvizsgálati módszerek alkalmazásában és a kísérleti eredmények értelmezésében. A teljes névsor felsorolása nélkül is köszönöm értékes közreműködésüket.

12. Irodalomjegyzék

12.1. Az értekezésben hivatkozott nem saját közlemények

- [1] D.R. Olander: Fundamental aspects of nuclear reactor fuel elements, University Press (1990).
- [2] Review of Fuel Failures in Water Cooled Reactors, IAEA Nuclear Energy Series NF-T-2.1 (2010)
- [3] Elter J., Gadó J., Holló E., Lux I.: Atomreaktorok biztonsága II., Budapest, ELTE Eötvös kiadó (2013)
- [4] Nuclear Fuel Behaviour in Loss-of-coolant Accident (LOCA) Conditions, State-of-the-art Report OECD NEA No. 6846 (2009)
- [5] C. Grandjean: Coolability of blocked regions in a rod bundle after ballooning under LOCA conditions: Main findings from a review of past experimental programmes, Nucl.Eng.Des., 237, (2007) 1872-1886.
- [6] G. Hache, H.M. Chung, The history of LOCA embrittlement criteria, in: NUREG/CP-0172 (2001) 205-237.
- [7] S.M. Modro, S.N. Aksan, V.T. Berta, A.B. Wahba: Review of LOFT Large Break experiments, NUREG/IA-0028 (1989)
- [8] M.Réocreux, E.F. Scott de Martinville: A Study of Fuel Behaviour in PWR Design Basis Accident: An Analysis of Results from the PHEBUS and EDGAR Experiments, Nucl.Eng.Des.,124 (1990) 363-378.
- [9] E.H. Krab, L.Sepold, P. Hofmann, C. Petersen, G. Schanz, H. Zimmermann, LWR Fuel Rod Behaviour During Reactor Tests Under Loss-of-Coolant Conditions: Results of the FR-2 In-Pile Tests, J. Nuc. Mat., 107 (1982) 55-77.
- [10] Yu.K. Bibilashvili, N.B. Sokolov, L.N. Andreeva-Andrievskaya, V.Yu. Tonkov, A.V. Salatov, A.M. Morosov, V.P.Smirnov: Thermomechanical properties of Zirconium-based alloys oxidised claddings in LOCA simulating conditions, in: IAEA-TECDOC-1320 (2002) 186-208.
- [11] L. Yegorova, K. Lioutov, N. Jouravkova, A. Konobeev, V. Smirnov, V. Chesanov, A. Goryachev: Experimental Study of Embrittlement of Zr-1%Nb VVER Cladding under LOCA-Relevant Conditions, NUREG/IA-0211, IRSN-2005-194, NSI RRC KI 3188, (2005)
- [12] State of the Art Report on Nuclear Fuel Behaviour under Reactivity Initiated Accident (RIA) Conditions, NEA No 6847, OECD CSNI (2010)
- [13] R.O. Meyer, R.K McCardell, H.M. Chung, D.J. Diamond, H.H. Scott: A Regulatory Assessment of Test Data for Reactivity-Initiated Accidents, Nuclear Safety, 37 (1996) 271-288.
- [14] T. Fuketa, T. Sugiyama, H. Sasajima, F. Nagase: NSRR RIA-simulating Experiments on High Burnup LWR Fuels, 2005 Water Reactor Fuel Performance Meeting, Paper No. 1106, Track No. 5
- [15] V. Asmolov, L. Yegorova: The Russian RIA Research Program: Motivation, Definition, Execution and Results, Nuclear Safety, 37 (1996) 343-371
- [16] L. Yegorova, K. Lioutov, N. Jouravkova O. Nechaeva, A. Salatov A.A. V. Smirnov, A. Goryachev V. Ustinenko, I. Smirnov: Experimental Study of Narrow Pulse Effects on the Behavior of High Burnup Fuel Rods with Zr-1%Nb Cladding and UO₂ Fuel (VVER Type) under Reactivity-Initiated Accident Conditions NUREG/IA-0213 (2006)
- [17] B. R. Sehgal (ed.): Nuclear Safety in Light Water Reactors, Severe Accident Phenomenology, Elsevier Inc. (2012).
- [18] E.L. Tolman, P. Kuan, J.M. Broughton: TMI-2 accident scenario update, Nucl. Eng. Des. 108 (1988) 45-54.

- [19] P. Hofmann, S. Hagen, V. Noack, G. Schanz, L.K. Sepold: Chemical-Physical Behaviour of Light Water Reactor Core Components Tested under Severe Reactor Accident Conditions in the CORA Facility, Nucl. Technol., 118, (1997) 200-224
- [20] P. Hofmann, W. Hering, C. Homann, W. Leiling, A. Miasoedov, D. Piel, L. Schmidt, L. Sepold, M. Steinbrück: QUENCH-01 Experimental and Calculational Results, FZKA 6100, Forschungszentrum Karlsruhe, (Nov. 1998)
- [21] T. Haste, M. Steinbrück, M. Barrachin, O. de Luze, M. Grosse, J. Stuckert: A Comparison of Core Degradation Phenomena in the CORA, QUENCH, Phébus SFD and Phébus FP Experiments, 22nd Int. Conf. Nuclear Energy New Europe, Bled, Paper 402. (2013)
- [22] Reactor Safety Study: An Assessment of Accident Risks in U.S. Commercial Nuclear Power Plants, NUREG-75/014, WASH-1400 (1975).
- [23] Status Report on Spent Fuel Pools under Loss-of-Cooling Accident Conditions, OECD CSNI, NEA/CSNI/R(2015)2.
- [24] J. Gadó: AGNES - Safety Reassessment of the Paks Nuclear Power Plant. ENS TOPSAFE '95. Budapest, Proc. Vol. I. (1995) 106-113.
- [25] I. Vidovszky et al.: Experimental Investigations of the Physical Properties of Uranium-Water Lattices, Akadémia Kiadó, Budapest (2000).
- [26] L. Maróti: Chemical Interaction between VVER Core Components under Accidental Conditions, Nucl. Eng. and Design, 172 (1997) 73-81.
- [27] J. Bajsz, J. Gadó: Ex-core Fuel Damage Event at Paks - Causes, Consequences and Lessons Learned, Proc. Int. Conf. Nuclear Energy for New Europe 2004, Portorož, Paper 901.
- [28] L. Vöröss: Lessons Learned from the INES-3 event at PAKS NPP on April 10, 2003, EUROSAFE Paris, November 25–26, 2003, Seminar 1.
- [29] S.A. Nikulin, A.B. Rozhnov, V.A. Belov, E.V. Li, V.S. Glazkina. Influence of chemical composition of zirconium alloy E110 on embrittlement under LOCA conditions – Part 1: Oxidation kinetics and macrocharacteristics of structure and fracture, J.Nucl.Mater., 418 (2011) 1-7.
- [30] M. E. Cunningham, C. E. Beyer, F. E. Panisko, P. G. Medvedev, G. A. Bema: FRAPTRAN: A Computer Code for the Transient Analysis of Oxide Fuel Rods; NUREG/CR-6739 (2001)
- [31] K. Lassmann, H. Blank: Modelling of Fuel Rod Behaviour and Recent Advances of the TRANSURANUS Code, Nucl. Eng. and Des., 106 (1988) 291-313.
- [32] R.O. Gauntt, R.K. Cole, C.M. Erickson, Gido, R.D. Gasser, S.B. Rodriguez, M.F. Young: MELCOR Computer Code Manuals: Primer and User's Guide Version 1.8.5, NUREG/CR-6119 (2000).
- [33] G. Lajtha, A. Bareith, E. Holló, Z. Karsa, P. Siklóssy, Zs. Téchy: Uncertainty of the level 2 PSA for NPP Paks, CSNI Workshop on Evaluation of Uncertainties in Relation to Severe Accidents and Level 2 Probabilistic Safety Analysis, Aix-en-Provence, 7-9 November 2005.
- [34] Yu. Zvonarev, A. Volchek, V. Kobzar, P. Chatelard, J.P. Van Dorsselaere: ASTEC and ICARE/CATHARE modelling improvement for VVERs, Nucl. Eng. Des., 241 (2011) 1055-1062.
- [35] P. Chatelard, N. Reinke, A. Ezzidi, V. Lombard, M. Barnak, G. Lajtha, J. Slaby, M. Constantin, P. Majumdar: Synthesis of the ASTEC integral code activities in SARNET – Focus on ASTEC V2 plant applications, Ann. Nucl. Energy, 74 (2014) 224-242.
- [36] F.J. Erbacher: Cladding Tube Deformation and Core Emergency Cooling in a Loss of Coolant Accident of a Pressurized Water Reactor, Nucl.Eng.Des., 103 (1987) 55-64.
- [37] Fuel Cladding Failure Criteria, EUR 19256 EN, European Commission (1999).

- [38] F.J. Erbacher, H.J. Neitzel, K. Wiehr: Cladding Deformation and Emergency Core Cooling of a Pressurized Water Reactor in a LOCA, Summary Description of the REBEKA Program, KfK 4781, Kernforschungszentrum Karlsruhe (1990 Aug.).
- [39] M. Uchida: Application of a Two-Dimensional Ballooning Model to Out-of-Pile and In-Pile Simulation Experiments, Nucl. Eng. Des., 77 (1984) 37-47.
- [40] M.E. Cunningham, C.E. Beyer, F.E. Panisko, P.G. Medvedev, G.A. Berna, H.H. Scott: FRAPTRAN: Integral Assessment, NUREG/CR-6739 Vol.2., PNNL-13576, Pacific Northwest National Laboratory (2001).
- [41] S. Leistikow, G. Schanz: Oxidation Kinetics and Related Phenomena of Zircaloy-4 Fuel Cladding Exposed to High Temperature Steam and Hydrogen-Steam Mixtures under PWR Accident Conditions, Nucl.Eng.Des., 103 (1987) 65-84.
- [42] M.E. Markiewicz, F.J. Erbacher: Experiments on Ballooning in Pressurized and Transiently Heated Zircaloy-4 Tubes, KfK 4343, Kernforschungszentrum Karlsruhe (1988).
- [43] F.J. Erbacher, H. Schmidt, P. Saey, R. Hausler, W. Wetzel, J. Böhmert, L. Lübke: Temperaturtransiente Kriechversuche an Zirkonium-Niob1-Hüllrohren, Vergleich zu Zircaloy-4 Hüllrohren, FZKA 5726, Forschungszentrum Karlsruhe (1997)
- [44] An.A. Tutnov, Al.A. Tutnov, E.E. Alekseev: Code PULSAR+ Verification, Atomic Energy, 83 (1997) 591-595, (orosz nyelven).
- [45] Yu.A. Bezrukov, G.V. Karetnikov, A.S. Bogdanov, I.N. Vasilchenko: Study of Behaviour of WWER Fuel Claddings at Initial Stage of LBLOCA, Proc. TOPFUEL, Würzburg, (2003).
- [46] Yu.K. Bibilashvili, N.B. Sokolov, A.V. Salatov, V.Yu. Tonkov, L.N. Andreeva-Andrievskaya, P.V. Fedotov, V.P. Semishkin, V.I. Nalivaev, P.G. Afanasyev, V.S. Konstatinov, N.Ya. Parhin: VVER type fuel rod bundle tests in LOCA simulation, Proc. 6th Int. QUENCH Workshop, Forschungszentrum Karlsruhe (2000).
- [47] Cs. Györi: Development and Application of FRAP-T6 VVER Version, Proceedings of the International Conference Nuclear Energy in Central Europe, Bled, (2000).
- [48] H. M. Chung: Fuel Behavior under Loss-of-Coolant Accident Situations.: Nuclear Engineering and Technology, 37 (2005) 327-362.
- [49] F. Nagase: Behavior of LWR Fuel During Loss-of-Coolant Accidents, in Comprehensive Nuclear Materials, Elsevier Ltd. (2012).
- [50] D.O. Hobson: Ductile-brittle behavior of Zircaloy fuel cladding, in: Proceedings of the ANS Topical Meeting on Water Reactor Safety, Salt Lake City, (1973) 274-288.
- [51] F. Nagase, M. Tanimoto, H. Uetsuka: Study of high burnup fuel behaviour under LOCA condition at JAERI, in: IAEA-TECDOC-1320 (2002) 270-278.
- [52] J.H Kim, M.H. Lee, B.K. Choi, Y.H Jeong: Embrittlement behaviour of Zircaloy-4 cladding during oxidation and water quench, Nucl. Eng. Des. 235 (2005) 67-75.
- [53] M. Billone, Y. Yan, T. Burtseva, R. Daum: Cladding Embrittlement During Postulated Loss-of-Coolant Accidents, NUREG/CR-6967 (2008).
- [54] Böhmert, M. Dietrich, J. Linek: Comparative analysis of high temperature corrosion of ZrNb1 and Zircaloy-4, Nucl. Eng. Design, 147 (1993) 53-62.
- [55] C. Vitanza: Discussion on experimental methods to derive LOCA safety limits, IAEA-TECDOC-1320 (2002) 224-237.
- [56] V. Vrtilkova, L. Novotny, V. Hamouz, R. Doucha, I. Tinka, J. Macek, F. Lahovsky: Practical illustration of the traditional vers. alternative LOCA embrittlement criteria, Int. Conf. Nuclear Energy for New Europe, Bled (2005).
- [57] Technical Opinion Papers No. 13. LOCA Criteria Basis and Test Methodology, NEA/CSNI/R(2011)7.

- [58] MSZ 15447-86 Porkohászati gyártmányok radiális törőszilárdságának meghatározása, Magyar Szabványügyi Hivatal (1986).
- [59] MSZ 105/1-1987 Fémek mechanikai vizsgálata, szakítóvizsgálat, Magyar Szabványügyi Hivatal (1987).
- [60] F. Gillemot, E. Czoboly, I. Havas: Fracture mechanics applications of absorbed specific fracture energy: Notch and unnotched specimens, Theor. Appl. Fract. Mec., 4 (1985) 39-45.
- [61] R.R. Hobbins, D.A. Petti, D.J. Osetek, D.L. Halgram: Review of Experimental Results on Light Water Reactor Core Melt Progression, Nucl. Technol., 95 (1991) 287-307.
- [62] D.A. Petti, Z.R. Martinson, R.R. Hobbins, D.J. Osetek: Results from the Power Burst Facility Severe Fuel Damage Test 1-4: A Simulated Severe Fuel Damage Accident with Irradiated Fuel Rods and Control Rods, Nucl. Technol., 94 (1991) 313-335.
- [63] P. von der Hardt, A.V. Jones, C. Lecomte, A. Tattigrain: Nuclear Safety Research: The Phebus FP Severe Accident Experimental Program, Nucl. Safety, 35, (1994) 187-205.
- [64] E.H. Karb, L. Sepold, P. Hofmann, C. Petersen, G. Schanz, H. Zimmermann: LWR Fuel Rod Behaviour during Reactor Tests under Loss-of-Coolant Conditions: Results of the FR2 in-Pile Tests, J. Nucl. Mater., 107 (1982) 55-77.
- [65] S. Hagen, P. Hofmann: LWR Fuel Rod Behaviour During Severe Accidents, Nucl. Eng.Design, 103 (1987) 85-106.
- [66] P. Hofmann: Current Knowledge on Core Degradation Phenomena, a Review, J. Nucl. Mater., 270 (1999) 194-211.
- [67] R. R. Hobbins, M. L. Russel, C. S. Olsen, R. K. McCardell: Molten Material Behaviour in the Three Mile Island Unit 2 Core, Nucl. Technol., 87 (1989) 1005-1012.
- [68] Horváth L. G.: Pihentető medence hűtőközeg veszteses súlyos balesete – BWR – PWR égésterjedéses számítások, Nukleon VI. évf. (2013) 140.
- [69] D.A Powers, L.N. Kmetyk, R.C. Schmidt: A Review of Technical Issues of Air Ingress During Severe Reactor Accidents, NUREG/CR-6218, (1984).
- [70] W. Krauss, H. Steiner, G. Schanz: Separate Effect Tests on Zry-4/air and Zry-4/O₂ Reaction Towards Air Ingress Scenarios, Including First Modelling Work, Proc. 6th Int. QUENCH Workshop, Karlsruhe (2000).
- [71] W. Krauss, G. Schanz: Comparative Studies on the Zry-4/air and Zry-4/O₂ Reaction Behaviour Towards Air Ingress Scenarios, Proc. 5th Int. QUENCH Workshop, Karlsruhe, (1999).
- [72] S. Hagen, P. Hofmann: LWR Fuel Rod Behaviour During Severe Accidents, Nucl. Eng.Design, 103 (1987) 85-106.
- [73] T. Drath: Validierung und Verbesserung des Programmsystems ATHLET-CD hinsichtlich der B₄C-Oxidation in Dampfatosphäre, Ruhr-Universität Bochum (2007) 170 p. (német nyelven).
- [74] P. Matejovic, M. Barnak, M. Bachraty, L. Vranka: ASTEC applications to VVER-440/V213 reactors, Nucl. Eng. Des., 272 (2014) 245-260.
- [75] S. Hagen, P. Hofmann, V. Noack, L. Sepold, G. Schanz, G. Schumacher: Behavior of a VVER-1000 fuel element tested under severe accident conditions in the CORA facility, KfK-5212, Kernforschungszentrum Karlsruhe (1994).
- [76] S. Hagen, P. Hofmann, V. Noack, L. Sepold, G. Schanz, G. Schumacher: Behavior of a VVER-1000 fuel element with B₄C absorber tested under severe fuel damage conditions, KfK-5363, Kernforschungszentrum Karlsruhe (1994).

- [77] G. Schanz, S. Hagen, P. Hofmann, G. Schumacher, L. Sepold: Information on the evolution of severe LWR fuel element damage obtained in the CORA program, J. Nucl. Mat. 188 (1992) 131-145.
- [78] M. Schwarz, G. Hache, P. von der Hardt: PHEBUS FP: a severe accident research programme for current and advanced light water reactors, Nucl. Eng. Des. 187 (1999) 47-69.
- [79] Schwarz, M., Clement, B. , Jones, A. V.: Applicability of PHEBUS FP results to severe accident safety evaluations and management measures, Nucl. Eng. Des., 209 (2001) 173-181.
- [80] B. Clément, N. Hanniet-Girault, G. Repetto, D. Jacquemain, A. Jones, M. Kissane, P. von der Hardt: LWR severe accident simulation: synthesis of the results and interpretation of the first Phebus FP experiment FPT0, Nucl. Eng. Des., 226 (2003) 5-82.
- [81] A. Miasoedov, H. Alsmeyer, L. Meyer, M. Steinbrück, P. Groudev, I. Ivanov, G. Sdouz: Results of the QUENCH-L2, DISCO-L2, and COMET-L2 experiments performed within the LACOMERA project at the Forschungszentrum Karlsruhe, Nucl.Eng.Des., 238 (2008) 2017-2026.
- [82] P. Hofmann, W. Hering, C. Homann, W. Leining, A. Miasoedov, D. Piel, L. Schmidt, L. Sepold, M. Steinbrück: QUENCH-01 Experimental and Calculational Results, FZKA 6100, Forschungszentrum Karlsruhe, 1998.
- [83] M. Steinbrück, A. Miasoedov, G. Schanz, L. Sepold, U. Stegmaier, J. Stuckert: Experiments on air ingress during severe accidents in LWRS, Nucl. Eng. Des., 236 (2006) 1709-1719.
- [84] J. Stuckert, J. Birchley, M. Große, T. Haste, L. Sepold, M. Steinbrück: Experimental and post-test calculation results of the integral reflood test QUENCH-12 with a VVER-type bundle, Ann.Nucl.Energy, 36 (2009) 183-192
- [85] G. Vámos: Investigation report on the fuel damage occurred on 10-11 April within the cleaning equipment of FANP, Report to OAH-NBI, NBI 03.11 B20301. (2003)
- [86] OECD-IAEA Paks Fuel Project Final Report, 2008, NEA/CSNI/R(2008)2.
- [87] J. Schunk, M. Beier, F. Kovács, S. Mikó, P. Tilky, H.O. Berthold, I. Janzik, G. Marquardt: Fuel assembly chemical cleaning at Paks Nuclear Power Plant. IAEA TECDOC-1345 (2003) 59–71.
- [88] A. Aszódi, G. Légrádi, I. Boros: Causes, course and consequences of fuel damage incident in the Paks NPP, 2003 and connecting thermal-hydraulic analyses, Nucl.Eng.Des., 240 (2010) 550-567.
- [89] T. Furuta, H. Uetsuka, S. Kawasaki: Ductility Loss of Zircaloy Cladding by Inner-surface Oxidation during High temperature Transient, J. Nuclear Science and Technology, 18 (1981) 802-810.
- [90] J.H. Kim, B.K. Choi, J.H. Baek, Y.H. Jeong: Effects of oxide and hydrogen on the behaviour of Zircaloy-4 cladding during the loss of the coolant accident (LOCA), Nucl.Eng.Des., 236 (2006) 2386-2393.
- [91] A.V. Salatov, P.V. Fedotov, O.A. Nechaeva, A.A. Goncharov, A.V. Kumachev: Evaluation of E110 alloy claddings behaviour under LOCA conditions in a view of fuel safety criteria, International scientific and technical meeting Computational and experimental studies of LWR fuel element behaviour under beyond design basis accidents and reflood conditions, IBRAE RAN, Moscow (2009).
- [92] D. Mewes, D. Wiemann: Hydrodynamics in bubble columns with mass transfer, Proc. ExHFT-6, Matsushima, paper 6-a-4 (1997).
- [93] Notes of the First Research Coordination Meeting of the Coordinated Research Programme on Fuel Modelling in Accident Conditions (FUMAC), Karlsruhe, 11-14 November, 2014.

- [94] T. Hollands, H. Hoffmann, P. Kruse, H-J. Wagner, M. K. Koch: Simulation der Bündelversuche QUENCH-10 und CODEX AIT-1 mit dem Programmsystem ATHLET-CD 2.1A sowie Bewertung der Air-Ingress-Modellbasis, Ruhr-Universität Bochum (2008) (német nyelven).
- [95] In-Vessel Core Degradation Code Validation Matrix, Update 1996-1999, NEA/CSNI/R(2000)21.

12.2. Az értekezésben hivatkozott saját közlemények

(Vastagon kiemelve a tézispontokban hivatkozott közlemények.)

- [S1] Hózer, Z.: Simulation of leaking fuel rods in a VVER reactor, Ann.Nucl.Energy, 70 (2014) 122-129.
- [S2] Hózer Z, Gadó J, Somfai B, Szabó E: Safety Analysis of a VVER-440 Spent Fuel Storage Pool, Int. J. Nucl. Energy Sci. Technol., 3 (2007) 302-312.
- [S3] **Z. Hózer Z, Cs. Győri, M. Horváth, I. Nagy, L. Maróti, L. Matus, P. Windberg, J. Frecska: Ballooning experiments with VVER cladding, Nucl.Technol., 152 (2005) 273-285.**
- [S4] **Z. Hózer, M. Horváth, M. Kunstár, L. Matus, I. Nagy, T. Novotny, E. Perez-Feró, A. Pinter-Csordás, N. Vér, A. Vimi, P. Windberg: Experimental simulation of the Paks-2 cleaning tank incident through separate effect and integral tests, Nucl.Eng.Des., 241 (2011) 573-581.**
- [S5] **Z. Hózer, E. Perez-Feró, T. Novotny, I. Nagy, M. Horváth, A. Pintér-Csordás, A. Vimi, M. Kunstár, T. Kemény: Experimental Comparison of the Behavior of E110 and E110G Claddings at High Temperature, Zirconium in the Nuclear Industry, 17th International Symposium, STP 1543, Robert Comstock and Pierre Barberis, Eds., ASTM International, West Conshohocken, PA 2015.3 (2015) 932-951.**
- [S6] E. Perez-Feró, Cs. Győri, L. Matus, L. Vasáros, Z. Hózer, P. Windberg, L. Maróti, M. Horvát, I. Nagy, A. Pintér-Csordás, T. Novotny: Experimental database of E110 claddings exposed to accident conditions, J.Nucl.Mater., 397 (2010) 48-54.
- [S7] Z. Hózer, I. Nagy, P. Windberg, A. Vimi: Coolability of Ballooned VVER Bundles with Pellet Relocation, Proceedings of Top Fuel 2009. Paris, 552-557.
- [S8] Van Uffelen P, Győri Cs, Schubert A, van de Laar J, Hózer Z, Spykman G: Extending the application range of a fuel performance code from normal operating to design basis accident conditions, J.Nucl.Mater., 383 (2008) 137-143.
- [S9] **Z. Hózer, Cs. Győri, L. Matus, M. Horváth: Ductile-to-brittle transition of oxidized Zircaloy-4 and E110 claddings, J.Nucl.Mater., 373 (2008) 415-423.**
- [S10] **Z. Hózer, L. Maróti, P. Windberg, L. Matus, I. Nagy Gy. Gyenes, M. Horváth A. Pinter, M. Balaskó, A. Czitrovsky, P. Jani, A. Nagy, O. Prokopiev, B. Tóth B: Behavior of VVER fuel rods tested under severe accident conditions in the CODEX facility, Nucl.Technol., 154 (2006) 302-317.**
- [S11] I. Sheperd, B. Adroguer, M. Buchmann, O. Gleisberg, T. Haste, P. Hofmann, Z. Hózer, R. Hummel, R. Kaltöfen, J. Knorr, N. Kourtí, M. Leonardi, F. Oriolo, R. Schneider, L. Maróti, L. Matus, G. Schanz, P. Windberg: Oxidation Phenomena in Severe Accidents", Proc. FISA-99, Luxemburg 29 November - 1 December, 1999, EUR 19532 EN, p. 69, G. Van Goethem, J.M. Bermejo, A. Zurita, H. Bischoff, G. Keinhorst, Eds., European Communities (2000).
- [S12] B. Adroguer, F. Bertrand, P. Chatelard, N. Cocuau, J.P. Van Dorsselaere, L. Bellenfant, D. Knocke, D. Bottomley, V. Vrtilkova, L. Belovsky, K. Mueller, W. Hering, C. Homann, W. Krauss, A. Miasoedov, G. Schanz, M. Steinbrück, J. Stuckert, Z. Hózer, G. Bandini, et al: Core loss during a severe accident (COLOSS), Nucl.Eng.Des., 235 (2005) 173-198.

- [S13] Z. Hózer, P. Windberg, I. Nagy, L. Maróti, L. Matus, M. Horváth, A. Pintér, M. Balaskó, A. Czitrovsky, P. Jani: Interaction of failed fuel rods under air ingress conditions, Nucl. Technol., 141 (2003) 244-256.
- [S14] M. Kunstár, L. Matus, N. Vér, A. Pintér, Z. Hózer, M. Steinbrück, J. Stuckert: Experimental Investigation of the Late Phase of Spent Fuel Pool Accidents, Int. J. Nucl. Energy Sci. Technol., 3 (2007) 287-301.
- [S15] Z. Hózer, A. Aszódi, M. Barnak, I. Boros, M. Fogel, V. Guillard, Cs. Győri, Gy. Hegyi, G.L. Horváth, I. Nagy, P. Junninen, V. Kozbar, G. Légrádi, A. Molnár, K. Pieterinen, L. Perneczky, Y. Makihara, P. Matejovic, E. Perez-Fero, E. Slonszki, I. Tóth, K. Trambauer, N. Tricot, I. Trosztel, J. Verpoorten, C. Vitanza, A. Voltchek, K.C. Wagner, Yu. Zvonarev: Numerical analyses of an ex-core fuel incident: Results of the OECD-IAEA Paks Fuel Project, Nucl.Eng.Des. 240 (2010) 538-549.
- [S16] Z. Hózer, E. Szabó, T. Pintér, I. Baracska Varjú, T. Bujtás, G. Farkas, N. Vajda: Activity release from damaged fuel during the Paks-2 cleaning tank incident in the spent fuel storage pool, J.Nucl. Mater. 392 (2009) 90-94.
- [S17] E. Slonszki, Z. Hózer, T. Pintér, I. Baracska Varjú: Activity release from the damaged spent VVER-fuel during long-term wet storage, Radiochimica Acta, 98 (2010) 231-236.
- [S18] L. Sepold, Z. Hózer, A. Miasoedov, G. Schanz, U. Stegmaier, L. Steinbock, M. Steinbrück, J. Stuckert: Results of air ingress experiment QUENCH-10, In: Jahrestagung Kerntechnik 2005. Nürnberg, 209-213.
- [S19] L. Sepold, Z. Hózer, G. Schanz, U. Stegmaier, M. Steinbrück, J. Stuckert: A QUENCH experiment including an air ingress phase prior to flooding, T.Am.Nucl.Soc., 94 (2006) 140-141.
- [S20] J. Stuckert, M. Grosse, Z. Hózer, M. Steinbrück: Results of the QUENCH-16 Bundle Experiment on Air Ingress, Karlsruhe: KIT Scientific Publishing, 2013. 186 p., (KIT Scientific Reports; 7634.) (ISBN:978-3-7315-0008-7)
- [S21] N. Vér, L. Matus, M. Kunstár, J. Osán, Z. Hózer, A. Pintér A: Influence of fission products on ruthenium oxidation and transport in air ingress nuclear accidents, J.Nucl.Mater., 396 (2010) 208-217.
- [S22] N. Vér, L. Matus, A. Pintér, J. Osán, Z. Hózer: Effects of different surfaces on the transport and deposition of ruthenium oxides in high temperature air, J.Nucl.Mater., 420 (2012) 297-306.
- [S23] Vimi A., Hózer Z., Nagy I., Windberg P., Perezné Feró E., Novotny T., Pintérné Csordás A.: A paksi üzemzavarhoz kapcsolódó rugós és kazetta-felütközéses kísérletek, Nukleon, 2 (2009) 46.
- [S24] Hózer Z., Kunstár M., Matus L., Vér N., Nagy I., Windberg P.: Kísérletek a sérült kazetták tárolótokjaiból várható kikerülés becslésére, Magyar Energetika, 14 (2006) 19-21.
- [S25] D. Bottomley, J. Stuckert, P. Hofmann, L. Tocheny, M. Hugon, C. Journeau, B. Clément, S. Weber, S. Guentay, Z. Hózer, L. Herranz, A. Schumm, F. Oriolo, E. Altstadt, M. Krause, M. Fischer, V.B. Khabensky, S.V. Bechta, M.S. Veshchunov, A.V. Palagin, A.E. Kiselev, V.I. Nalivaev, A.V. Goryachev, V. Zhdanov, V. Baklanov: Severe accident research in the core degradation area: An example of effective international cooperation between the European Union (EU) and the Commonwealth of Independent States (CIS) by the International Science and Technology Center, Nucl.Eng.Des., 252 (2012) 226-241.
- [S26] Hózer Z., Windberg P., Nagy I., Vimi A., Kunstár M., Vér N., Matus L., Perezné Feró E., Novotny T., Balaskó M.: A paksi üzemzavar modellezése a CODEX berendezésen, Magyar Energetika, 15 (2007) 20-23.

- [S27] Z. Hózer, M. Balaskó, M. Horváth, M. Kunstár, L. Matus, I. Nagy, T. Novotny, E. Perez-Feró, A. Pintér, N. Vér, A. Vimi, P. Windberg: **Quenching of high temperature VVER fuel after long term oxidation in hydrogen rich steam**, **Ann.Nucl. Energy**, 37 (2010) 71-82.
- [S28] Szabó E., Somfai B., Hózer Z.: A sérült kazetták tokjaiból várható kikerülés üzemzavarok során, *Magyar Energetika*, 15 (2007) 43-47.
- [S29] Hózer Z., Vimi A.: Súlyos balesetek kezelése az új paksi blokkokon *Magyar Energetika*, 21 (2014) 13-15.