



ÓBUDAI EGYETEM  
ÓBUDA UNIVERSITY

## DOKTORI (PhD) ÉRTEKEZÉS

---

**FARKAS RÓBERT**

Atomerőművi fűtőelemek anyagszerkezetének  
változása baleseti körülmények között

Témavezető: Dr. Hózer Zoltán

Készült a HUN-REN Energiatudományi Kutatóközpontban

Komplex vizsga bizottság:

Elnök: Réger Mihály DSc egyetemi tanár, ÓE-BGK

Tagok: Balácsi Csaba DSc, HUN-REN EK MFA

Marosné Berkes Mária PhD egyetemi tanár, ÓE

Nyilvános védés teljes bizottsága:

Elnök: Réger Mihály DSc egyetemi tanár, ÓE-BGK

Titkár: Varga Péter, PhD egyetemi adjunktus, ÓE-BGK

Tagok: Brolly Áron PhD medior reaktorfizikus, MVM Paksi Atomerőmű Zrt.

Slonszki Emese PhD tudományos munkatárs, HUN-REN EK

Réti Tamás DSc egyetemi tanár, ÓE

Bírálok: Petrik Péter DSc tudományos tanácsadó, HUN-REN EK

Gonda Viktor PhD egyetemi docens, ÓE-BGK

Nyilvános védés időpontja:

# TARTALOMJEGYZÉK

1	BEVEZETÉS .....	6
2	IRODALMI ÁTTEKINTÉS .....	8
2.1	A fűtőelemek cirkónium burkolata .....	8
2.1.1	Mikroszerkezet, fázisátmenet .....	9
2.1.2	Ötvözők, ötvözetek .....	11
2.1.3	Gyártástechnológia .....	12
2.1.4	Normál üzemelés: a besugárzás hatása, korrózió .....	14
2.1.5	Jelenségek magas hőmérsékletű üzemzavarok, balesetek során ....	15
2.2	Az üzemzavarok és a balesetek kísérleti vizsgálata.....	17
2.2.1	Kisléptékű kísérletek egyes jelenségek vizsgálatára és modellfejlesztéshez.....	17
2.2.2	Integrális mérések reaktorban és reaktoron kívül.....	18
3	CÉLKITŰZÉSEK.....	22
4	A CODEX BERENDEZÉS MŰSZAKI MEGOLDÁSAI.....	23
4.1	A CODEX berendezés .....	23
4.1.1	A kísérleti köteg és a mérőszakasz .....	24
4.1.2	A gőzfejlesztő .....	33
4.1.3	A kondenzátor és a csapadékgyűjtő tartály.....	35
4.2	Méréstechnika és adatgyűjtés .....	36
4.2.1	Adatgyűjtő rendszer.....	36
4.2.2	Hőmérsékletmérések.....	37
4.2.3	Nyomásmérések.....	39
4.2.4	Elektromos fűtőteljesítmény .....	40
4.2.5	A kilépő gáz összetételének mérése.....	40
5	A CODEX MÉRÉSEK ÉS FŐ EREDMÉNYEIK .....	42
5.1	A CODEX-LOCA kísérletek .....	42
5.1.1	A CODEX-LOCA-200 kísérlet .....	43
5.1.1.1	A CODEX-LOCA-200 kísérlet végrehajtása .....	43
5.1.1.2	A CODEX-LOCA 200 kísérleti eredmények kiértékelése.....	46
5.1.2	A CODEX-LOCA-200B kísérlet.....	50
5.1.2.1	A CODEX-LOCA-200B kísérlet végrehajtása .....	50
5.1.2.2	A CODEX-LOCA-200B kísérleti eredmények kiértékelése.....	53
5.1.3	A CODEX-LOCA-E4 kísérlet .....	54
5.1.3.1	A CODEX-LOCA-E4 kísérlet végrehajtása.....	54
5.1.3.2	CODEX-LOCA-E4 kísérleti eredmények kiértékelése.....	59
5.1.4	CODEX-LOCA kísérletek összefoglalása.....	61
5.2	A CODEX-AIT-3 kísérlet.....	63

5.2.1	Egy rúddal végzett vizsgálat .....	63
5.2.2	A CODEX-AIT-3 kísérlet végrehajtása.....	65
5.2.3	A mérések főbb eredményei .....	70
5.2.4	Utóvizsgálati eredmények.....	71
5.2.5	Az oxidréteg vastagsága a fűtőelempálcákon.....	76
5.2.6	A nitridréteg vastagsága a fűtőelempálcákon .....	77
5.2.7	A CODEX-AIT-3 mérés összefoglalója .....	78
5.3	A CODEX-NITRO kísérlet .....	80
5.3.1	A kísérlet végrehajtása.....	80
5.3.2	A köteg metallográfiai vizsgálata .....	85
5.3.3	Az oxidréteg vastagsága a fűtőelempálcákon.....	87
5.3.4	A nitridréteg vastagsága a fűtőelempálcákon .....	88
5.3.5	A CODEX-NITRO mérés összefoglalása.....	89
5.4	A CODEX- SBO kísérlet.....	89
5.4.1	A kísérlet végrehajtása.....	89
5.4.2	A köteg endoszkópos vizsgálata .....	92
5.4.3	A köteg metallográfiai vizsgálata .....	94
5.4.4	Az oxidréteg vastagsága a fűtőelempálcákon.....	94
5.4.5	A CODEX-SBO kísérlet összefoglalása.....	95
5.5	A CODEX- SLIM kísérlet .....	96
5.5.1	A kísérlet végrehajtása.....	96
5.5.2	A köteg vizsgálata.....	98
5.5.3	A CODEX-SLIM kísérlet összefoglalása .....	100
5.6	A CODEX- ATF kísérlet .....	101
5.6.1	A CODEX-ATF kísérlet végrehajtása .....	102
5.6.2	A kísérlet főbb eredményei.....	105
5.6.3	A köteg endoszkópos vizsgálata.....	107
5.6.4	A köteg metszeteinek optikai és elektronmikroszkópos vizsgálata 110	
5.6.5	CODEX-ATF összefoglalás .....	113
6	ÖSSZEFOGLALÁS .....	115
6.1	Az eredmények hasznosíthatósága .....	116
7	TÉZISPONTOK .....	118
1.	tézispont.....	118
2.	tézispont.....	118
3.	tézispont.....	118
4.	tézispont.....	118
5.	tézispont.....	119

6. tézispont.....	119
7. tézispont.....	119
8 SUMMARY.....	120
9 PUBLIKÁCIÓK .....	121
9.1 A tézispontokhoz kapcsolódó publikációk .....	121
9.2 Egyéb publikációk .....	122
10 FELHASZNÁLT IRODALOM.....	123
11 RÖVIDÍTÉSJEGYZÉK.....	127
12 TÁBLÁZATJEGYZÉK.....	128
13 ÁBRAJEGYZÉK.....	129
14 KÖSZÖNETNYILVÁNÍTÁS .....	133

# 1 BEVEZETÉS

Az atomenergia a globális villamosenergia-termelés egyik meghatározó pillére, amely alacsony szén-dioxid-kibocsátás mellett biztosítja a nagy mennyiségű, folyamatos energiatermelést. A nukleáris technológia alkalmazása azonban kiemelt biztonsági követelményekkel jár, mivel az atomerőművi üzemzavarok és balesetek potenciális következményei rendkívül súlyosak lehetnek. A biztonság szempontjából kulcsszerepet tölt be a fűtőelemek burkolata, amelyek elsődleges feladata a hasadási termékek visszatartása, valamint az üzemanyag és a hűtőközeg közötti közvetlen kapcsolat megakadályozása.

A könnyűvízes reaktorokban a burkolati anyagként alkalmazott cirkóniumötvözetek egyedülálló nukleáris és anyagtudományi tulajdonságaik révén váltak általánosan elterjedtté. Alacsony neutronbefogási keresztmetszetük, jó korrózióállóságuk és magas olvadáspontjuk hozzájárul a reaktorok hatékony és biztonságos működéséhez. Baleseti körülmények között ugyanakkor – például hűtőközegvesztéses-balesetek (LOCA- Loss-of-Coolant Accident), reaktivitásvezérelt tranziensek (RIA- Reactivity-Initiated Accident) vagy teljes feszültségkiesések (SBO- Station Blackout) során – a burkolat extrém mechanikai, termikus és kémiai igénybevételnek van kitéve. Az oxidáció, a nitridképződés, a hidrogénfelvétel és a mikroszerkezeti átalakulások együttesen a burkolat integritásának elvesztéséhez, szerkezetének károsodásához vezethetnek, amely veszélyeztetheti az erőmű és a lakosság biztonságát. A fukusimai baleset tapasztalatai világosan igazolták, hogy a burkolatanyagok baleseti viselkedése meghatározó tényező a súlyos következmények kialakulásában. E tapasztalatok indokolták olyan új nemzetközi kutatási programok elindítását, amelyek célja az úgynevezett balesettűrő üzemanyagok (angolul: Accident Tolerant Fuel, ATF) fejlesztése volt. Az ATF-burkolatok a hagyományos cirkóniumötvözetekhez képest nagyobb ellenálló-képességet biztosítanak extrém körülmények között, ezáltal növelve az atomerőművek biztonsági tartalékait. Az értekezés célja a cirkónium alapú burkolatok anyagszerkezeti változásainak részletes vizsgálata baleseti körülmények között. A kutatás középpontjában különböző összetételű, gyártástechnológiájú és falvastagságú burkolatok (E110, E110G, vékonyfalú E110G, OptZirlo<sup>TM</sup>, valamint krómbevonatos változatok) összehasonlító elemzése áll. A vizsgálatok a HUN-REN Energetikai Tudományi Kutatóközpontban működő CODEX kísérleti berendezésen zajlottak, amelyen lehetőség van az atomreaktorok súlyos baleseti folyamatainak integrális, laboratóriumi szimulációjára.

A kísérletek célja annak feltárása, hogy a különböző burkolatok szerkezeti, mikroszerkezeti és kémiai változásai miként befolyásolják az oxidációt, a nitridizációt, a hidrogénfelvételt, valamint a mechanikai stabilitást extrém körülmények között. Az eredmények hozzájárulnak a hagyományos cirkóniumötvözetek baleseti viselkedésének pontosabb megértéséhez, valamint közvetlen inputot biztosítanak az új balesetálló burkolatok fejlesztéséhez és értékeléséhez, ezáltal a nukleáris biztonság további növeléséhez.

## 2 IRODALMI ÁTTEKINTÉS

Ebben a fejezetben áttekintettem a nukleáris fűtőelemek cirkónium alapú burkolatanyagával kapcsolatos legfontosabb szakirodalmi eredményeket. Bemutatom a burkolatanyag mikroszerkezeti jellemzőit és fázisátmeneteit, az alkalmazott ötvözőelemek szerepét, valamint a gyártástechnológiai sajátosságokat. Ezt követően tárgyalom a normál üzemelés során fellépő hatásokat – különösen a besugárzás és a korrózió jelentőségét –, valamint azokat a jelenségeket, amelyek magas hőmérsékletű üzemzavarok és baleseti körülmények között jelentkezhetnek.

### 2.1 A fűtőelemek cirkónium burkolata

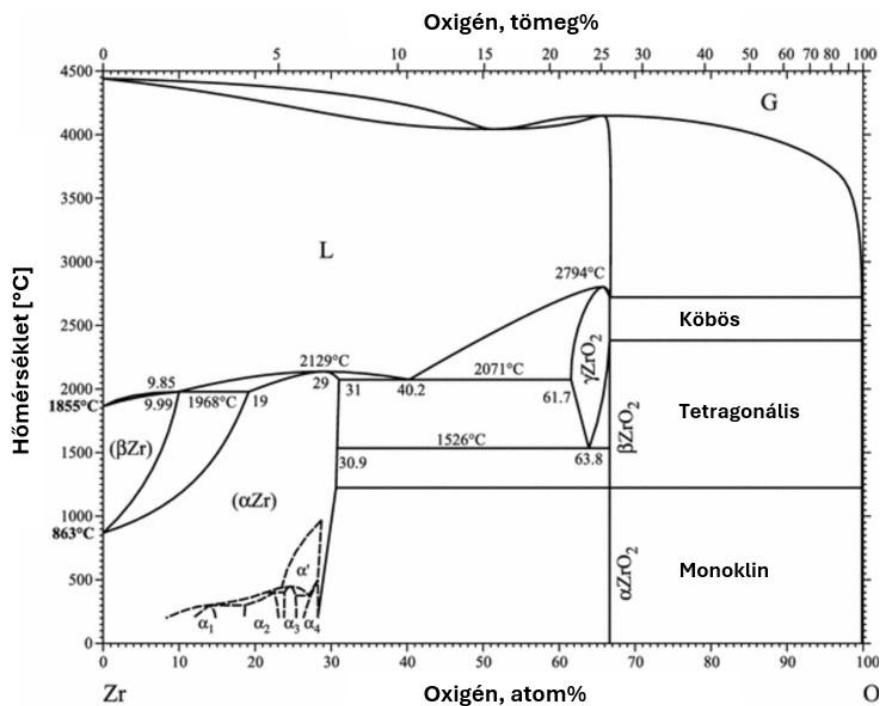
A cirkónium felhasználása az iparban az 1950-es évekig elenyésző volt. Ebben az időben jöttek rá az amerikai haditengerészet nukleáris programja keretében, hogy a nukleáris fűtőelemek burkolataként addig használt acéllal és alumíniummal szemben a cirkónium sokkal előnyösebb. Ez a program a haditengerészet nukleáris meghajtású hajóinak és tengeralattjáróinak kifejlesztésére, üzemeltetésére és karbantartására összpontosított. A cirkónium alkalmazása a fűtőelemek burkolataként több kulcsfontosságú tulajdonságának köszönhető. Az első számú, hogy alacsony a neutronbefogási hatáskeresztmetszete. Ez az egyik legfontosabb jellemzője, ami miatt a nukleáris ipar a mai napig használja. Ez azt jelenti, hogy a reaktorban keletkező neutronok nagy része akadálytalanul halad át rajta, ami elengedhetetlen a fenntartható láncreakcióhoz és a reaktor hatékony működéséhez. A következő a kiváló korrózióállóság. A cirkónium ellenáll a magas hőmérsékletű víz és gőz korróziós hatásainak, amelyek a könnyűvízes reaktorokban jelen vannak. Ez a tulajdonság biztosítja a burkolat hosszú távú integritását és megbízhatóságát. Nagyon fontos a magas olvadáspontja, ami körülbelül 1855 °C. Ez lehetővé teszi, hogy extrém hőmérsékleti körülmények között is megőrizze szerkezeti stabilitását. A cirkóniumötvözetek megfelelő mechanikai tulajdonságokkal rendelkeznek, beleértve a szakítószilárdságot és a rugalmassági moduluszt, ami biztosítja a fűtőelemek strukturális integritását a reaktor üzemelése során. A cirkónium hővezető képessége megfelelő az üzemanyagból származó hő hatékony elvezetéséhez, ami hozzájárul a reaktor hőmérsékletének szabályozásához és a biztonságos üzemeltetéshez. A cirkónium kémiaiailag stabil a reaktorban jelen lévő anyagokkal szemben, ami minimalizálja a nem kívánt kémiai reakciók kockázatát, és hozzájárul a rendszer általános stabilitásához. A hosszú távú üzemeléshez az is fontos tulajdonság, hogy a cirkóniumötvözetek jól tűrik a sugárzás okozta károsodásokat mint

például a neutronbesugárzás miatti duzzadást, növekedést vagy ridegedést, Továbbá a cirkóniumötvözetek képlékenyek és jól megmunkálhatók, ami lehetővé teszi a precíziós gyártást és a fűtőelemek pontos illeszkedését a reaktorban.

Ezek a tulajdonságok együttesen teszik a cirkóniumot ideális választássá vízhűtéses reaktorok fűtőelemeinek burkolataként, biztosítva a reaktor hatékony és biztonságos működését.

### 2.1.1 Mikroszerkezet, fázisátmenet

A cirkónium mikroszerkezete és fázisátmenetei jelentős hatással vannak az anyag tulajdonságaira, különösen a nukleáris iparban való alkalmazás során. A tiszta cirkónium alacsony hőmérsékleten (862 °C alatt) hexagonális szoros illeszkedésű (angolul: hexagonal close-packed, hcp) kristályszerkezetű, amelyet  $\alpha$ -fázisnak neveznek. Magas hőmérsékleten (862 °C felett) a cirkónium átalakul a tércentrált köbös (angolul: body-centered cubic, bcc) szerkezetű  $\beta$ -fázisba. Oxigén vagy ötvözők hozzáadásával a fázisátalakulás hőmérséklete változik, és van egy átmeneti szakasz, amikor inkább fázis jelen van. A lehetséges fázisátmenetek a következők lehetnek: az  $\alpha$ -fázisból  $\beta$ -fázisba történő átalakulás, amely hőmérséklettől és időtől függ. A hőmérséklet csökkenésével a  $\beta$ -fázis visszaalakul  $\alpha$ -fázisba.



1. ábra: Kétkomponensű Zr-O rendszer fázisdiagram

Az 1. ábra [1] tartalmazza az  $\alpha$ -Zr (hexagonális) és  $\beta$ -Zr (kübös) fázisok stabilitási határvonalait, valamint a magasabb oxigéntartalmú tartományokra jellemző oxidfázisokat is.

A diagramon megfigyelhető a 10–30 at.% oxigéntartomány, ahol metastabil fázisok alakulhatnak ki. Ebben a tartományban gyors hűtés vagy intenzív sugárzás hatására nem egyensúlyi szerkezetek jöhetnek létre, például túltelített  $\alpha'$  vagy  $\alpha$  fázisok, illetve különböző szuboxidok ( $ZrO_x$ ), amelyek csak később, hőkezelés vagy hosszabb idő alatt alakulnak  $\alpha$ -Zr +  $ZrO_2$  keverékké. Ezek a metastabil formák általában keményebbek és merevebbek, de jóval törékenyebbek, csökkentve az anyag szívósságát és deformációs képességét. 30 at.% oxigén felett már a stabil oxid-fázis dominál, jellemzően  $ZrO_2$  formájában, amely a hőmérséklet függvényében monoklin, tetragonális vagy kübös kristályszerkezetben fordul elő.

Ez a fázisdiagram különösen releváns a nukleáris ipar számára, mert a cirkónium ötvözeteiből álló burkolatok normál üzem vagy súlyos üzemzavarok során gyakran oxigénfelvételnek vannak kitéve. A 10–30 at.% O tartomány megfelel az oxidált  $\alpha$ -rétegnek ( $\alpha$ -case), amely a  $ZrO_2$  oxidréteg alatt jellemző. Ez a réteg kemény, de rideg mikrostruktúrát eredményezhet, jelentősen befolyásolva a fűtőelemburkolat repedésállóságát és képlékenységét.

Bizonyos ötvözőelemek, mint például a nióbbium (Nb), stabilizálhatják a  $\beta$ -fázist szobahőmérsékleten is, ami befolyásolja az anyag mechanikai tulajdonságait és a fázisátmenet hőmérsékleti tartományát. Ugyanakkor a szén jelenléte a cirkóniumban kemény, rideg karbidfázisok kialakulásához vezethet, ami csökkenti az anyag alakíthatóságát.

A cirkónium szemcsemérete befolyásolja az anyag mechanikai tulajdonságait, például a szilárdságot és a szívósságot. Az  $\alpha$ -fázisban ikresedés léphet fel, ami befolyásolja az anyag deformációs viselkedését. Ikresedésről (ikerösszenövésről) akkor beszélünk, ha olyan szabályos módon nőnek össze a kristályok, amely során ugyanannak az ásványfajnak két vagy több kristálya meghatározott törvények szerint nő össze egymással úgy, hogy az egymással összenőtt kristályok szimmetrikusan helyezkednek el egymáshoz képest.

A hidrogén megjelenésének igen komoly hatása van, bediffundálhat a cirkóniumba, és az oldhatósági határ fölött cirkónium-hidrideket képez. Ezek a hidridek ridegebbé teszik magát az anyagot, ezáltal csökkentik az anyag szívósságát, ami természetesen növeli a sérülés kockázatát.

A sugárzásnak is lényeges hatása van, neutronbesugárzás hatására a cirkónium mikroszerkezete megváltozhat, ami duzzadáshoz, a burkolat hosszának növekedéséhez vezet. A sugárzás hatására megváltoznak a burkolat mechanikai tulajdonságai is: csökken a cirkónium képlékenysége és megnő a szakítószilárdsága.

Az üzemelés során a cirkónium felületén védő oxidréteg alakul ki, amely megvédi az anyagot a további korróziótól. Az így kialakult kompakt oxidréteg miatt a cirkónium kiváló korrózióállósággal rendelkezik, ami fontos a nukleáris alkalmazásokban.

Ezek a mikroszerkezeti jellemzők és fázisátmenetek alapvetően meghatározzák a cirkónium viselkedését és alkalmazhatóságát a nukleáris iparban.

### 2.1.2 Ötvözők, ötvözetek

Az atomerőművek fűtőelemeiben különböző cirkónium-ötvözeteket használnak burkolatként. A leggyakrabban használt ötvözőelemek a nióbbium (Nb), az ón (Sn), a vas (Fe) és a króm (Cr). A nióbbium és az ón hozzáadása javítja a cirkónium-ötvözetek mechanikai szilárdságát és korrózióállóságát. Továbbá stabilizálja az ötvözet mikroszerkezetét, ami előnyös a reaktorokban tapasztalható magas hőmérsékleteken. A vas kis mennyiségben történő hozzáadása javítja az ötvözetek mechanikai tulajdonságait és elősegíti a finom szemcseszerkezet kialakulását. A króm szintén növeli a korrózióállóságot és javítja az ötvözetek oxidációs ellenállását magas hőmérsékleten.

Gyakori cirkónium-ötvözetek:

- Zircaloy-2: Ez az ötvözet körülbelül 1,5% ón, 0,15% vas, 0,1% króm és 0,05% nikkelt hozzáadásával készül. Széles körben alkalmazzák forralóvízes reaktorokban (BWR) a kiváló korrózióállósága miatt.
- Zircaloy-4: Hasonló a Zircaloy-2-höz, de nem tartalmaz nikkelt. Összetétele körülbelül 1,5% ón, 0,2% vas és 0,1% króm. Ezt az ötvözetet elsősorban nyomottvízes reaktorokban (PWR) használják, mivel jobb korrózióállóságot mutat magas hőmérsékleten, és a nikkelt hiánya csökkenti a hidrogénfelvételt [2].
- E110, E125: Ezek az ötvözetek 1% és 2,5% nióbbiumot tartalmaznak ón helyett, és különösen az orosz tervezésű nyomottvízes reaktorokban (VVER) alkalmazzák őket már az 1960-as évektől [3].
- ZIRLO™, M5™: A Westinghouse Electric Corporation és az Areva/Framatome legújabb fejlesztésű ötvözetei. Nagyrészt ezek a csökkentett óntartalmú ötvözetek váltották fel a nyugati atomerőművekben a Zircaloy ötvözeteket. A ZIRLO™

hozzáadott nióbiumot tartalmaz, ami javítja a mechanikai tulajdonságokat és a korrózióállóságot. Az optimalizált ZIRLO™ (optZIRLO™) a ZIRLO™ továbbfejlesztett változata. A fő különbség közöttük, hogy az optZIRLO™ csökkentett ón tartalmú cirkóniumötvözet, ami jobb korrózióállóságot és kisebb hidrogénfelvételt biztosít nagyobb kiégés mellett. Az M5™ ötvözet összetétele nagyon hasonlít a VVER nyomottvizes reaktorokban használt E110 ötvözetre [4].

A leggyakrabban használt burkolatötvözetek elemösszetételét az 1. táblázat tartalmazza [5].

1. táblázat A leggyakoribb fűtőelemburkolat-ötvözetek összetétele tömeg%-ban

Ötvözet	Zry-2	Zry-4	E110	E110G	ZIRLO™	M5™
Zr	alap	alap	alap	alap	alap	alap
Sn	1,2-1,7	1,2-1,7	-	-	0,96	-
Fe	0,07-0,2	0,18-0,24	0,005	0,005	0,1	0,0003- 0,0005
Cr	0,05-0,15	0,07-0,13	0,02	0,02	-	-
Ni	0,03-0,08	-	-	-	-	-
Nb	-	-	1	1	0,99	1
O	0,1-0,14	0,1-0,14	0,09-0,13	0,09-0,13	0,09-0,16	0,12
C	0,03	0,03	0,02	0,02	0,01	-

Az ötvözőelemek kombinációi lehetővé teszik a cirkónium alapú anyagok tulajdonságainak finomhangolását, hogy megfeleljenek a különböző reaktortípusok és üzemeltetési feltételek követelményeinek. Az újabb ötvözetek keresése és a meglévők továbbfejlesztése nagyon aktív kutatási irány a mai napig.

### 2.1.3 Gyártástechnológia

A cirkóniumötvözetek gyártástechnológiája kulcsfontosságú a reaktorokban használt fűtőelemek előállításában. A cirkóniumot általában cirkon ( $ZrSiO_4$ ) ásványból nyerik ki. Az E110 jelű fűtőelemburkolat-ötvözet előállítása 60–40% arányban jodidos, illetve elektrolitikus úton előállított cirkóniumból történik. A jodidos technológia – az ún. van Arkel–de Boer eljárás – során a gázalmazott cirkónium-tetrajodidot izzó

volfrámszálon bontják termikusan, amelynek eredményeként a cirkónium fém a szál felületén kiválik. Az elektrolitikus módszer ezzel szemben kálium-hexafluoro-cirkonát ( $K_2[ZrF_6]$ ) és olvadt sók (például KCl, NaCl) elegyének elektrolízisével állítja elő a fémet, amely az elektródfelületen csapódik ki.

Az orosz pálcaburkolat-ötvözetek gyártásában új technológiára térnek át, a fejlesztések 2003 óta intenzíven zajlanak. A cél a hosszabb üzemanyag-kampányok és a nagyobb kiégés követelményeinek való megfelelés, valamint az üzemzavari és a baleseti körülményekkel szembeni ellenállóképesség növelése. Az egyik fontos fejlesztési irány a szennyezőanyag-tartalom csökkentése, mivel ezek nagymértékben befolyásolják az ötvözet oxidációs és korróziós viselkedését, a hidrogénfelvételt, illetve a mikrostruktúra alakulását [6]. A Paksi Atomerőmű VVER-440 blokkjait ellátó gyártó a közelmúltban áttért az elektrolitikus útról a Kroll-féle fémszivacsos eljárásra, amely az új E110G ötvözet alapját képezi. Ebben az esetben a szivacsos szerkezetű cirkóniumot, amelyet a Kroll-eljárással állítanak elő, 70–30% arányban kombinálják a jodidos cirkóniummal. A Kroll-eljárás során a cirkónium-tetrakloridot ( $ZrCl_4$ ) magnéziummal redukálják, majd a feleslegben maradt magnéziumot vákuumos tisztítással választják le. Az E110G ötvözet összetétele alapvetően azonos maradt a korábbi változatával (99% Zr, 1% Nb), de a nyomelemekre vonatkozó specifikációk módosultak. A HUN-REN Energiatudományi Kutatóközpont szikraionforrásos tömegspektrométeres (MS-702R) vizsgálatai azt mutatták, hogy az új ötvözet valamivel nagyobb vastartalommal, ugyanakkor alacsonyabb hafniumtartalommal rendelkezik a korábbi E110-hez képest [7]. Az orosz üzemanyaggyártó által szolgáltatott információk alapján az E110 és az E110G burkolatötvözetek gyártása egységes technológiai sorrendet követ. Első lépésként az 1,2 tonnás öntvényt vákuumozott ívkemencében hevítik, ahol a különböző eljárásokkal előállított cirkóniumot összeolvasztják. A folyamat során az ötvözet végső kémiai összetétele is beállításra kerül. A mikroszerkezet kialakítása kovácsolással történik, két különböző hőmérsékleti tartományban. Először a  $\beta$ -fázis tartományában (900–1070 °C) végeznek alakítást, majd hirtelen lehűtve stabilizálják az így kialakított szerkezetet. Ezt követően alacsonyabb hőmérsékleten (600–650 °C) ismételt kovácsolást alkalmaznak. Az öntvényből kiindulva a burkolatcsövek hideg hengerléssel készülnek, négy-öt alakítási lépésben. Az egyes hengerlési ciklusok között az anyagot 560–610 °C közötti hőmérsékleten feszültségmentesítő hőkezelésnek vetik alá. A gyártási folyamat záró fázisa egy hosszabb feszültségmentesítő hőkezelés, amely szintén az  $\alpha$ -fázis tartományában (560–610 °C) zajlik, és amelynek célja a burkolatcsövek végleges

mikroszerkezetének kialakítása [8]. A kialakított ötvözet finom szemcseszerkezete bizonyos mértékű anizotrop mechanikai viselkedést mutat, ugyanakkor kedvező képlékeny és rugalmas tulajdonságokkal ruházta fel az anyagot. A csövek pontos geometriai méreteit – a külső átmérőt és az ovalitást – húzással alakítják ki. A felületkezelés több lépcsőben zajlik: finomszemcsés polírozás, majd híg folyvasavas (HF) maratás biztosítja a kész burkolatcsövek megfelelő minőségű végső felületét.

A végtermékeket roncsolásmentes vizsgálatoknak vetik alá, mint például ultrahangos vagy röntgenes ellenőrzés, hogy biztosítsák a hibamentességet és a megfelelő minőséget. A kész cirkónium csöveket üzemanyaggal töltik meg és lezárják, hogy elkészüljenek a fűtőelemek, amelyeket később reaktorokban használnak fel. A gyártási folyamat minden lépése szigorú minőségellenőrzés alatt kell hogy álljon, ezzel lehet biztosítani a végtermékek megbízhatóságát és biztonságát a nukleáris alkalmazásokban.

#### **2.1.4 Normál üzemelés: a besugárzás hatása, korrózió**

Normál üzemelés során a reaktorban a neutronsugárzás a cirkóniumötvözetekben diszlokációkat és vakanciákat hoz létre, amelyek megváltoztatják az anyag mikroszerkezetét. Ezek a hibák idővel felhalmozódnak, ami a mechanikai tulajdonságok módosulásához vezet. A besugárzás elősegíti a kúszást, ami az anyag lassú alakváltozását eredményezi állandó terhelés alatt. Emellett a neutronsugárzás duzzadást okozhat, ami a térfogat növekedéséhez vezet, és befolyásolja a fűtőelemek méretstabilitását.

A besugárzás hatására a mechanikai tulajdonságok is változhatnak, az anyag keményebbé és ridegebbé válhat, ami csökkenti a szívósságot és növeli a törékenységet. Ez különösen fontos a fűtőelemek biztonságos üzemeltetése szempontjából.

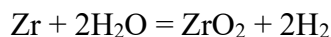
Normál üzemi körülmények között korrózió is felléphet. Ilyenkor a cirkóniumötvözetek felületén a reaktor hűtőközegével való érintkezés során oxidréteg alakul ki. Ez az oxidréteg kezdetben védő hatású, de idővel vastagabbá válhat, ami repedésekhez és leváláshoz vezethet. A hőmérséklet, a hűtőközeg kémiai összetétele és az áramlási viszonyok mind befolyásolják a korrózió mértékét és sebességét. Magasabb hőmérsékleten és oxidáló környezetben a korróziós sebesség növekedhet. A korróziót azonban tudjuk befolyásolni. Egyik lehetőség a csökkentésre a vízkémia. Adalékanyagokkal ugyanis tudjuk csökkenteni a primerköri berendezésekből származó korróziós termékek lerakódását a hőátadási területeken, így megakadályozzuk a lokális túlhevüléseket, ami akár burkolatkárosodáshoz is vezethet. A primer körben tisztított,

bórsavval és lítium- vagy kálium-hidroxiddal kondicionált víz kering, amely korrózióvédelmet és pH-szabályozást biztosít. Az ötvözőelemek, mint például az ón és a nióbbium, jelentős hatással vannak a korrózióállóságra. A korrózió és a radiolízis során hidrogén keletkezik, amely bediffundálhat az ötvözetbe, ahol előbb szilárd oldatot, majd hidrideket képez. Ez a folyamat csökkenti az anyag szívósságát és növeli a törékenységet, ami potenciális repedéshez vezethet.

A korrózió és a besugárzás egymásra is hatnak. A sugárzás által okozott mikroszerkezeti hibák befolyásolják a korróziós viselkedést is. A diszlokációk és a vakanciák növelhetik a diffúziós sebességet, ami gyorsabb oxidációhoz és hidrogénfelvételhez vezethet.

### **2.1.5 Jelenségek magas hőmérsékletű üzemi zavarok, balesetek során**

Egy üzemi zavar során előforduló magas hőmérsékleten (600 °C felett) a cirkónium és a vízgőz között erősen exoterm reakció zajlik le, amely során cirkónium-dioxid ( $ZrO_2$ ) képződik, és hidrogéngáz szabadul fel:



Ez a reakció jelentős hőmennyiséget termel (6,4 MJ/kg Zr), ami tovább növelheti a rendszer hőmérsékletét, és súlyosbíthatja a baleset következményeit. A felszabaduló hidrogéngáz felhalmozódhat a reaktortartályban vagy a konténmentben, és levegővel keveredve robbanásveszélyes elegyet alkothat. Az ilyen hidrogénrobbanások jelentős szerkezeti károkat okozhatnak, mint ahogy azt a fukusimai baleset során is tapasztalták.

A levegő jelenléte a vízgőzhöz képest gyorsabb baleseti eszkalációhoz vezet, mivel a  $Zr+O_2$  reakció során termelődő hő nagyobb (12,1 MJ/kg Zr), hűtőhatása pedig kisebb mint a vízgőzé, továbbá a nitrogén gyorsítja a cirkónium-ötvözet degradációját. Magas hőmérsékleten a cirkóniumon kompakt  $ZrO_2$ -réteg képződik, amely kezdetben parabolikus oxidációs kinetikát eredményez, ám felrepedése esetén „breakaway” oxidáció indul meg. Az így felhasadó oxidrétegek miatt a levegő ismét közvetlen kontaktusba kerülhet a fémfelülettel. Ez különösen 950–1050 °C között valószínű, amikor a tetragonális–monoklin fázisátmenet térfogatváltozást okoz. 1050 °C felett stabil, kompakt oxidréteg alakul ki, de oxigénhiány esetén nitridképződés ( $ZrN$ ) indulhat meg, amely jelentős térfogatnövekedéssel és lokális repedésekkel jár. A  $ZrN \rightarrow ZrO_2$  átalakulás porózus rétegek kialakulását eredményezi. A nitridizáció és az oxidáció egymást erősítve

önfenntartó degradációhoz vezetnek, amely 800 °C felett már lineáris vagy annál gyorsabb kinetikát mutat [9][10][11][12].

Baleseti körülmények között a burkolat előzetes vízgőzös oxidációja átmenetileg lassíthatja a levegős degradációt, de az oxigénhiány miatt a nitridizáció korán megindulhat. A cirkónium-ötvözetek tranziens oxidációja levegőatmoszférában akkor vált át a gyorsított kinetikába, ha a tranziens megfelelően lassú ahhoz, hogy breakaway-típusú oxidáció kialakulhasson. Összességében a levegő jelenléte a burkolat drámaian gyors degradációját okozza, így a hasadási termékek visszatartása a burkolat belsejéből hamarabb megszűnhet, mint vízgőz-atmoszférában. Munkám során részletesen kitérek ilyen baleseti körülmény vizsgálatára, a CODEX-AIT-3 kísérlet tárgyalásánál [S1].

Magas hőmérsékleten a mechanikai tulajdonságok is változhatnak. A magas hőmérsékleten kialakuló oxidréteg kezdetben védő hatású, de vastagodásával repedések jelenhetnek meg benne, amelyek az anyag mechanikai integritásának csökkenéséhez vezetnek. Az oxidrétegből az oxigén egy része bediffundál a fém cirkóniumba, és magas oxigéntartalmú, rideg  $\alpha$ -réteg jön létre az oxid alatt. A kémiai reakciók során keletkezett hidrogén diffúziója a cirkónium-ötvözetbe hidridek képződését eredményezi, ami elridegedést és a szívósság csökkenését okozza. Ezt a folyamatot a fejlesztés során próbálják csökkenteni, például ötvözőelemek hozzáadásával.

A legújabb fejlesztési irány a balesetálló fűtőelemek (angolul: Accident Tolerant Fuel) megalkotása és vizsgálata. Az egyik lehetséges megoldás króm réteggel ellátni a fűtőelemburkolatot [13][14][15][16].

A HUN-REN Energiatudományi Kutatóközpont Fűtőelem és Reaktoranyagok Laboratóriumában számos kísérleti berendezést fejlesztettek ki a tervezési üzemzavarok és a súlyos balesetek során fellépő jelenségek vizsgálatára. Ezek a kísérletek hozzájárulnak a cirkónium-ötvözetek viselkedésének jobb megértéséhez ilyen extrém körülmények között. Az atomenergetika történetében bekövetkezett súlyos balesetek, mint például a fukusimai események, rávilágítottak a cirkónium-ötvözetek magas hőmérsékletű viselkedésének kritikus aspektusaira. Ezekből a balesetekből származó tapasztalatok alapján folyamatosan fejlesztik a biztonsági protokollokat és az anyagtechnológiát.

A hidrogénfelhalmozódás kockázatának csökkentésére különböző technikákat alkalmaznak, mint például a hidrogén-rekombinátorok, amelyek a hidrogént vízzé alakítják, így minimalizálva a robbanásveszélyt. Folyamatos kutatások zajlanak új, jobb

hő- és korrózióállóságú cirkóniumötvözetek kifejlesztésére, amelyek jobban ellenállnak a magas hőmérsékletű üzemzavarok során fellépő oxidációnak és hidrogénfelvételnek.

A numerikus modellezés nagyon fontos része a nukleáris iparnak is, hiszen a modern számítógépes modellezési technikák lehetővé teszik a cirkóniumötvözetek viselkedésének előrejelzését magas hőmérsékletű baleseti forgatókönyvekben, ami segíti a tervezést és a biztonsági elemzéseket.

Összességében a cirkóniumötvözetek magas hőmérsékletű üzemzavarok és balesetek során bekövetkező viselkedésének alapos megértése kulcsfontosságú az atomerőművek biztonságos üzemeltetése szempontjából.

## **2.2 Az üzemzavarok és a balesetek kísérleti vizsgálata**

Az atomerőművi üzemzavarok és balesetek a nukleáris berendezések működésében bekövetkező nem tervezett események, melyek radioaktív anyagok kijutásával járhatnak.

Főbb kategóriák:

Üzemzavarok: Kisebb működési eltérések, amelyek nem okoznak komoly radioaktív kibocsátást (pl. LOCA, RIA).

Balesetek: Komolyabb üzemzavari szint, amely a reaktor zónájának sérülésével járhat.

Súlyos balesetek: A zóna olvadásával, a radioaktív anyagok környezetbe jutásával járó események.

### **2.2.1 Kisléptékű kísérletek egyes jelenségek vizsgálatára és modellfejlesztéshez**

Ha az atomerőműben üzemzavar történik, a fűtőelemekben különböző események zajlanak le extrém körülmények között. Például egy hűtőközeg-vesztéses-üzemzavar során, amikor a hűtőközeg szivárgása vagy teljes elvesztése miatt a zóna szárazra kerül, a reaktor hőmérséklete hirtelen emelkedik, ami az üzemanyag és a burkolat károsodásához vezethet. Ebben az esetben a burkolat oxidációja, a mechanikai integritás csökkenése és a hidrogénfelszabadulás a fő veszélyforrások. Reaktivitás üzemzavar esetén gyors és nagy mértékű reaktivitásváltozás következik be, amely hirtelen hőmérséklet-emelkedést és nagy termikus feszültségeket eredményez: a tabletták gyors hőtágulása nyomást fejt ki a burkolat belső felületére. A burkolatban repedések jöhetnek létre, vagy ha nagyon magas a hőmérséklet, akkor az ötvözet megolvadhat. Súlyos

balesetek (angolul: Severe Accidents) esetén már a burkolat és az üzemanyag szerkezeti integritása elveszik, például egy teljes zónaolvadás során. Magas hőmérsékleten a cirkónium-víz reakció következtében nagy mennyiségű hidrogén szabadul fel, amely, ha egy levegős térben fel tud gyűlni, robbanásveszélyes lehet.

Az ilyen események kísérleti vizsgálata kulcsfontosságú a reaktorok biztonságos üzemeltetésének biztosításához. A kísérleti vizsgálatok célja az üzemanyag és a burkolatanyagok viselkedésének tanulmányozása extrém körülmények között, a biztonsági korlátok meghatározása, valamint a szimulációs modellek validálása a kísérleti adatok (pl. hőmérséklet, idő, nyomás, oxidáció) alapján. Minél több kísérleti eredmény gyűlik össze, annál pontosabb szimulációs modellt lehet kifejleszteni. A legegyszerűbb és legolcsóbb kísérletek a kisléptékű kísérletek. Ezeknek az az előnye, hogy sok mérés végezhető ugyanolyan körülmények között, és néhány paraméter vizsgálható a különböző gyártók által előállított mintákon. Így könnyen összehasonlíthatóvá válnak az egyes, jelen esetben különböző cirkónium-ötvezetek egymással, az adott kísérleti paraméterek függvényében. A vizsgált jelenségek közé tartozik például a burkolat oxidációs viselkedésének vizsgálata magas hőmérsékleten, valamint a hidrogén beépülése a burkolatba és annak hatása az anyag tulajdonságaira, vagy a mechanikai tulajdonságok változása, amikor az anyagok szilárdságának (húzó-, nyomó- és ütővizsgálatok) és alakíthatóságának változását vizsgálják különböző körülmények között [17][18][19].

A kisléptékű kísérleteket gyakran szeparált effektus teszteknek (angolul: Separate Effect Test, röviden SET) is nevezik, mivel ezek jellemzően egyetlen folyamat vizsgálatára irányulnak, miközben az atomerőművi balesetek során a fűtőelemekben egyszerre, párhuzamosan több jelenséggel is számolni kell. A kisléptékű kísérletek adataiból az egyes folyamatokról (például oxidáció, hidrogénfelvétel, felhasadás, elridegedés) részletes, általában paraméterfüggő ismeretek szerezhetők. A kísérletek eredményeiből összeállított adatbázisok lehetővé teszik a számítógépes kódokban használt numerikus modellek és korrelációk létrehozását, illetve validálását.

### **2.2.2 Integrális mérések reaktorban és reaktoron kívül**

Az integrális kísérletekben lehetőség van a különböző baleseti folyamatok egyidejű vizsgálatára, ami alapján meghatározható, hogy mely körülmények dominánsak a fűtőelemek degradációjára szempontjából. Az ilyen kísérletek során nagyobb méretű fűtőelemeket vagy teljes kötegeket alkalmaznak, ami lehetővé teszi a folyamatokat jellemző paraméterek térbeli eloszlásának nyomon követését is.

Az ún. in-pile tesztek közvetlenül a kutatóreaktorokban végzett kísérletek, amelyek a feltételezett valós baleseti körülményekhez nagyon hasonló állapotokat reprodukálnak eredeti üzemanyagokkal. Ezekben a mérésekben elsősorban a besugárzás és a kiégés hatását vizsgálják. Az in-pile tesztek a legdrágább kísérletek, és ezekből is van a legkevesebb számú. Ilyenek például a PHEBUS [31][32], Halden [33], FR2 [34][35] reaktorokon végzett kísérletek.

Az out-of-pile tesztek laboratóriumi környezetben végzett kísérletek, ahol szintén nagyon fontos paraméterek (pl. hőmérséklet, nyomás, idő) hatását modellezik. Ezek is igen költséges kísérletek, de ezekből már sokkal több kísérleti mérés létezik. Ezekben a mérésekben nem használnak besugárzott üzemanyagot, ezért sokkal egyszerűbb a mérések végrehajtása. A kísérletek egy részében az urán-dioxid üzemanyag-tablettákat más, hasonló anyagi jellemzőkkel rendelkező kerámiákkal helyettesítik, ami további könnyítést jelent a kísérletek végrehajtásához.

A CORA (Core Melt Progression) kísérleti program [36] a nukleáris biztonsági kutatások egyik fontos eleme volt, amelyet a németországi Karlsruhe Kutatóközpontban hajtottak végre. Manapság az ugyanitt megtalálható QUENCH berendezésen folytatják ezt a kutatómunkát (2. táblázat). A program célja az, hogy részletes információkat szerezzen a forralóvizes reaktorok és nyomottvizes reaktorok súlyos balesetei során bekövetkező folyamatokról, különösen a fűtőelemek és a szerkezeti anyagok degradációjáról. A kísérletek során fűtőelem-kötegeket hevítettek magas hőmérsékletre elektromos fűtéssel, majd hirtelen vízzel hűtötték vissza, hogy megfigyeljék a hőmérséklet-változás, az oxidáció és a hidrogénképződés hatásait.

A CODEX (COre Degradation EXperiment) egy magyar fejlesztésű, integrált kísérleti berendezés, amelyet a KFKI Atomenergia Kutatóintézetben (ma: HUN-REN Energiatudományi Kutatóközpont) hoztak létre 1995-ben (3. táblázat). A berendezés célja a könnyűvizes reaktorok, különösen a VVER-440 típusúak súlyos baleseti folyamatainak szimulálása és tanulmányozása volt. A kezdetekben a kísérletek során valós urán-dioxid ( $UO_2$ ) fűtőelemeket használtak, amelyeket elektromosan hevítettek, így lehetőség volt az  $UO_2$  és a burkolat közötti kölcsönhatásnak, vagy az  $UO_2$  oxidációjának a vizsgálatára extrém körülmények között. A dolgozatomban részletesen kifejtem néhány kísérlet eredményét.

A kísérleti adatok hozzájárulása jelentős előrelépést jelentett a nukleáris biztonsági kutatások terén, különösen a súlyos balesetek során bekövetkező folyamatok megértésében és modellezésében.

2. táblázat A QUENCH berendezésen elvégzett kísérletek

Kísérlet	Burkolat típusa	Max. hőmérséklet (°C)	Kísérlet típusa	Időpont
QUENCH-01	Zircaloy-4	≈1557 °C	vízbefecskendezés, részleges előoxidáció	1998.02.26.
QUENCH-02	Zircaloy-4	≈2127 °C	Quench magas hőmérsékletről, előoxidáció nélkül	1998.07.07.
QUENCH-03	Zircaloy-4	≈2077 °C	késleltetett vízbefecskendezés (240 s késleltetés)	1999.01.20.
QUENCH-04	Zircaloy-4	≈1887 °C	hideg gőz bevezetésével végzett quench	1999.06.30.
QUENCH-05	Zircaloy-4, előoxidált	≈1747 °C	előoxidált burkolat + gőz quench	2000.03.29.
QUENCH-06	Zircaloy-4	≈1787 °C	OECD-ISP teszt, hidrogéntermelés vizsgálata	2000.12.13.
QUENCH-07	Zircaloy-4 B <sub>4</sub> C abszorber	≈1827 °C	B <sub>4</sub> C abszorber rúd hatásának vizsgálata	2001.07.25.
QUENCH-08	Zircaloy-4	≈1817 °C	referencia kísérlet a QUENCH-07-hez (abszorber nélkül)	2003.07.24.
QUENCH-09	Zircaloy-4	≈1827 °C	B <sub>4</sub> C hatás gőzhiányos körülmények között	2002.07.03.
QUENCH-10	Zircaloy-4	≈1927 °C	légbetöréses (air ingress) forgatókönyv	2004.07.21.
QUENCH-11	Zircaloy-4, DX-D4	≈1767 °C	elforrás + vízbefecskendezés	2005.12.08.
QUENCH-12	E110	≈1827 °C	VVER burkolat viselkedése hűtésnél	2006.09.27.
QUENCH-13	Zircaloy-4	≈1547 °C	abszorber rúd / aeroszol vizsgálat, quench	2007.11.07.
QUENCH-14	M5 <sup>®</sup>	≈1827 °C	ACM-sorozat, quench/reflood tesztek	2008.07.02.
QUENCH-15	ZIRLO™	≈1880 °C	ACM-sorozat, előoxidált ZIRLO viselkedése	2009.05.27.
QUENCH-16	Zircaloy-4	≈1597 °C	LACOMECO projekt, légbetörés+ quench	2011.07.27.
QUENCH-17	Zircaloy-4	≈1527 °C	debris képződés és hűthetőség	2013.01.31.
QUENCH-18	M5 <sup>®</sup> , Ag-In-Cd abszorber	≈2157 °C (quench során rövid csúcs 2430 °C)	ALISA projekt, légbetörés, burkolat olvadás	2017.09.27.
QUENCH-19	FeCrAl	≈1527–1800 °C	ATF burkolatok értékelése	2018.08.29.
QUENCH-20	Zircaloy-2 B <sub>4</sub> C abszorber	≈2000–2300 °C	BWR köteg viselkedése, vezérlőrúd hatás	2019.10.09.

Nemzetközi kutatócsoportok a CODEX berendezésen elért eredményeink alapján fejlesztik és validálják a számítógépes programjaikat, így ők is aktív résztvevői a kutatási programjainknak. Az újabb és újabb mérésekre azért van szükség, hogy összehasonlíthatóvá váljon a piacon megtalálható új ötvözetek viselkedése a már meglévő ötvözetekkel végzett kísérletek adataival. Ebből lehet következtetni, hogy egy adott fejlesztési irány javítja-e a burkolat baleseti tulajdonságait. Erre nagyon jó példa az új generációs balesetálló burkolatokon, például krómbevonatú cirkóniumötvözetekkel végzett kísérletek, amelyek megmutatják, hogy valóban megelőzhető-e egy baleset az új

burkolatokkal. Továbbá az új kísérletekkel az eddig nem vizsgált eseménysorok is megismerhetők.

3. táblázat A CODEX berendezésen elvégzett kísérletek

Név	Köteg típusa	Pellet	Burkolat típusa	Max. hőm.	Kísérlet típusa	Mérés ideje
CODEX-1	7-rod VVER	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	E110	>2000 °C	a berendezés működésének vizsgálata	1995 nyara
CODEX-2	7-rod VVER	UO <sub>2</sub>	E110	2400 °C	hőmérséklet megszaladás és lassú lehűtés	1995.12.29.
CODEX-3/1	7-rod VVER	UO <sub>2</sub>	E110	1158 °C	gyors lehűtés vizes elárasztással 1150 °C-ról	1996.11.28.
CODEX-3/2	7-rod VVER	UO <sub>2</sub>	E110	1643 °C	gyors lehűtés vizes elárasztással 1500 °C-ról	1997.01.29.
CODEX-AIT-1	9-rod PWR	UO <sub>2</sub>	Zircaloy-4	2000 °C	légbetörés	1998.05.07.
CODEX-AIT-2	9-rod PWR	UO <sub>2</sub>	Zircaloy-4	1880 °C	vízgőzös oxidáció és légbetörés	1999.01.28.
CODEX-B4C	7-rod VVER	UO <sub>2</sub> , B <sub>4</sub> C	E110, rozsdamentes acél	2300 °C	szabályzórud tönkremenetele	2001.03.29.
CODEX-CT-1	7-rod VVER	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	E110	1245 °C	hosszú oxidáció és gyors vizes lehűtés	2006.07.05.
CODEX-CT-2	7-rod VVER	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	E110	1384 °C	hosszú távú oxidációt hidrogénben gazdag gőz atmoszférában és gyors vizes elárasztás	2006.12.18.
CODEX-LOCA-200	7-rod VVER	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	E110, E110G	908 °C	200% LOCA konzervatív feltételek mellett	2015.11.30.
CODEX-LOCA-E4	7-rod VVER	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	E110, E110G	874 °C	LOCA leállás korlátozott vészűtővíz ellátással	2016.07.12.
CODEX-LOCA-200B	7-rod VVER	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	E110, E110G	1089 °C	200% LOCA	2016.11.09.
CODEX-LOCA-SFP1	7-rod VVER	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	E110, E110G	924 °C	pihentető medence LOCA gőzhiánnyal és korlátozott vészűtővíz ellátással	2017.02.16.
CODEX-LOCA-SFP2	7-rod VVER	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	E110, E110G	896 °C	pihentető medence LOCA gőzzel és korlátozott vészűtővíz ellátással	2017.07.03.
CODEX-AIT-3	7-rod VVER	ZrO <sub>2</sub>	E110G	1625 °C	légbetörés oxigén és gőzhiánnyal	2018.06.13.
CODEX-NITRO	7-rod VVER	ZrO <sub>2</sub>	E110, E110G	1748 °C	LOCA nitrogén befecskendezéssel a hidroakkumulátorokból	2018.12.07.
CODEX-SBO	7-rod VVER	ZrO <sub>2</sub> , Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	E110, E110G	1900 °C	feszültségkiesés	2019.10.11.
CODEX-SLIM	7-rod VVER	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	E110G	900 °C	200% LOCA vékonyfalú burkolattal	2021.09.28.
CODEX-ATF	7-rod VVER	ZrO <sub>2</sub> , Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	optZIRLO™, Cr bevont optZIRLO™	1655 °C	súlyos baleset balesettűrő burkolattal	2023.08.23.
CODEX-ATF-AIT	7-rod VVER	ZrO <sub>2</sub> , Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Cr bevont optZIRLO™	1544 °C	légbetörés balesettűrő burkolattal	2024.10.29.

### 3 CÉLKITŰZÉSEK

Jelen kutatás fő célja az atomerőművi fűtőelemek burkolatát alkotó cirkóniumötvözetek anyagszerkezeti változásainak átfogó és rendszerezett vizsgálata baleseti körülmények között. Az üzemzavarok és a súlyos balesetek során fellépő extrém hőmérséklet-, nyomás- és kémiai hatások nagymértékben befolyásolják a fűtőelem burkolatának mechanikai és kémiai stabilitását, ezért e folyamatok megértése kiemelt jelentőségű a nukleáris biztonság szempontjából. A kutatás törekvése, hogy feltárja a különböző összetételű, gyártástechnológiájú és falvastagságú burkolati anyagok (E110, E110G, vékonyfalú E110G, OptZirlo™) viselkedését a tervezési határértékeket meghaladó baleseti körülmények között, és részletes képet adjon a szerkezetükben, mikroszerkezetükben, oxidációs mértékükben, valamint hidrogénfelvételi tulajdonságaikban bekövetkező változásokról.

Célul tűztem ki, hogy megtervezem és létrehozom a CODEX berendezésen azokat a kísérleti konfigurációkat, amelyek lehetővé teszik a különböző üzemzavari és baleseti körülmények vizsgálatát. Ehhez kísérleti kötegeket állítottam össze eltérő ötvözetű fűtőelempálcákból, különböző geometriai elrendezésekben.

Az adott kísérletek célja sokrétű volt. Egyrészt vizsgáltuk, hogy egy hűtőközegvesztéses-üzemzavar nem vezet-e a fűtőelemek sérüléséhez. Másrészt súlyosbaleseti, légbetöréses folyamatot modelleztünk extrém körülmények között, gőz- és oxigénhiányos környezetben. Metallográfiai vizsgálatokkal és online mérési adatok segítségével vizsgáltuk, hogy eközben milyen kémiai reakciók mennek végbe a cirkóniumburkolatban, milyen mértékű a cirkónium oxidációja és nitridizációja a folyamat során, továbbá végbemegy-e a cirkónium-nitridek újraoxidációja is.

Az említett kísérleti berendezésen modelleztem egy olyan üzemzavart is, amely során nitrogén kerül a reaktor aktív zónájába. Ebben az esetben azt vizsgáltam, hogy nitrogén jelenlétében heterogén nitrid- és oxidrétegek létre jönnek-e a fűtőelem burkolatában, és ez felgyorsítja-e a cirkóniumkomponensek vízgőzös oxidációját. Továbbá, hogy a nitrogén magashőmérsékleten (1000 °C felett) komoly kémiai reakciót eredményez-e a cirkóniummal, vagy csak nemkondenzálódó gázként jelenik meg?

Integrális kísérlettel vizsgáltam, hogy magas hőmérsékletű súlyosbaleseti körülmények között a burkolat milyen degradációt mutat. A kísérleti kötegben kétféle burkolat típust használtunk, majd összehasonlítottam a kétféle ötvözetet a nagyon magas

hőmérsékletű tranziens során. Célom volt, hogy meghatározzam az oxidáltságuk mértékét.

Hűtőközegvesztés-mérést végeztem a VVER-440 reaktorokban nemrég bevezetett új típusú, vékonyfalú burkolattal annak ellenőrzésére, hogy a vékonyabb burkolattal sem következik be a fűtőelem felhasadása üzemzavari körülmények között. Továbbá vizsgáltuk a szivacsos technológiával készült újfajta burkolat oxidációs viselkedését is.

Krómbevonatos (balesetálló) és hagyományos cirkóniumburkolatból összeállított köteggel is végeztem méréseket egyrészt annak vizsgálatára, hogy 1300 °C fölött mindkét típusú burkolat megsérülhet-e, másrészt, hogy milyen degradációs folyamatok jönnek létre az egyes típusoknál. Bizonyítani szerettem volna, hogy amíg a hagyományos burkolatnál a cirkónium oxidációja miatt a ridegedés a meghatározó folyamat, addig a krómbevonatos burkolat esetében a króm-cirkónium eutektikum képződése vezet a burkolat sérüléséhez.

## **4 A CODEX BERENDEZÉS MŰSZAKI MEGOLDÁSAI**

A jelen fejezetben bemutatom a CODEX berendezés fő komponenseit, a kísérleti köteg összeállítását, a mért paramétereket és a kísérlet során használt adatgyűjtés módját.

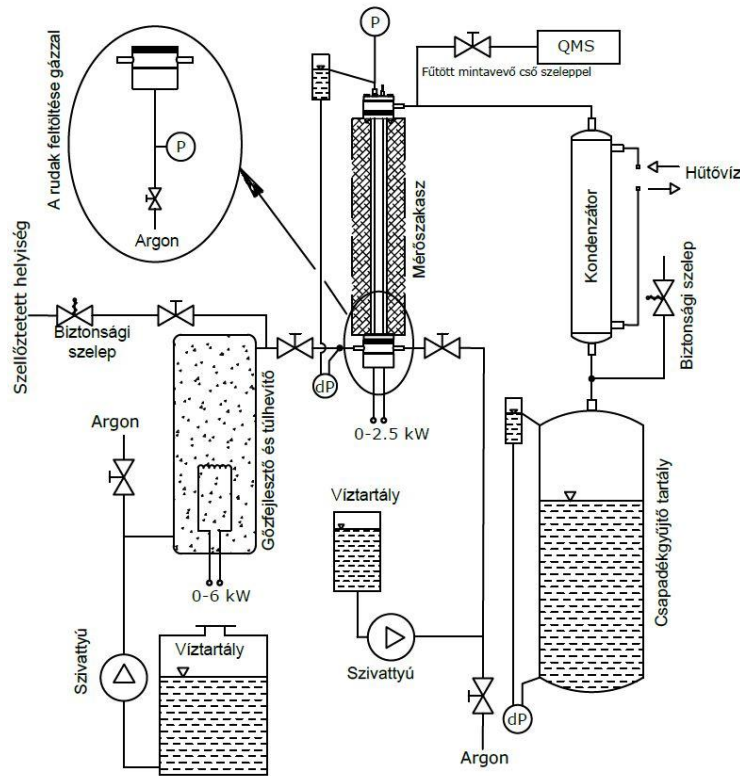
### **4.1 A CODEX berendezés**

A különböző kísérletekhez használt CODEX berendezés fő elemei azonosak az egyes kísérletek esetén. Az új köteg összeállítása mellett azonban számos változtatásra van szükség a berendezésen minden egyes CODEX mérés esetében.

A berendezés központi eleme a kísérleti köteg, amelyet olyan terheléseknek kell alávetni a vizsgálatok során, ami a vizsgált tranziensállapotokban várható. A mérési körülmények létrehozásához a kísérleti köteghez több részegység is csatlakozik (2. ábra):

- A mérőszakasz, amely magában foglalja a kísérleti köteget, a fűtéshez és a nyomásszabályozáshoz szükséges csatlakozásokat, valamint a hőszigetelést, ami lehetővé teszi a kívánt magas hőmérsékletek elérését. A mérőszakaszon külső fűtést is alkalmaztunk a mérésekben.
- A gőzfejlesztő a mérőszakasz aljához csatlakozik és biztosítja a megfelelő állapotú és összetételű közegek beáramoltatását. A gőzfejlesztőben levő túlhevítő nemcsak a megtermelt gőz, de a rajta átvezetett argon gáz hevítését is elvégzi.

- A kondenzátor a mérőszakasz kilépő részéhez csatlakozik és fő feladata a kényszerítetten áramló és a kísérlet során a vizsgált kötegben keletkező kémiaiag módosult anyagáramok hűtése, illetve kondenzáltatása.



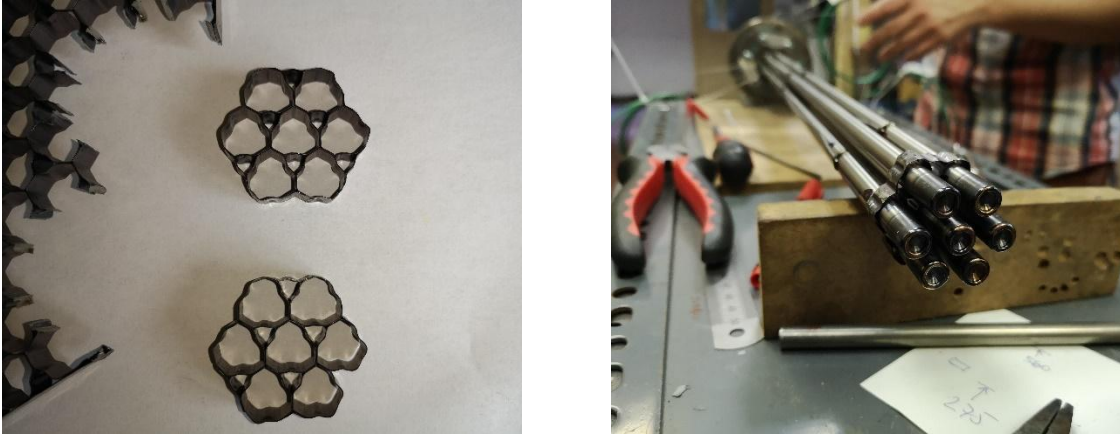
2. ábra: A CODEX berendezés fő komponensei

#### 4.1.1 A kísérleti köteg és a mérőszakasz

A mérőszakasz tartalmazza mindazokat az eszközöket, amelyek a vizsgált fűtőelemrudakat fizikailag összetartják, és a valós reaktortechnikai geometriát és hőtechnikai viselkedést a lehető legpontosabban modellezik.

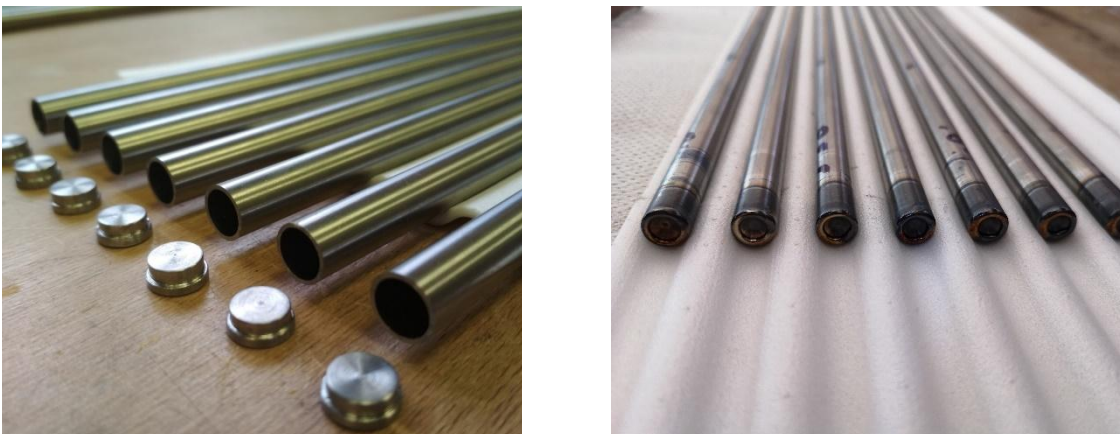
A kísérleti köteg hét darab, elektromosan fűtött fűtőelem-szimulátorból áll. Az egyes kísérleteknél különböző ötvözetekből készült rudakat használtunk. A vizsgált rudak között a kísérlettől függően volt hagyományos E110 ötvözetből készült rud, a legújabb fejlesztésű, a Paksi Atomerőműben bevezetésre kerülő vékonyfalú E110G (Zr1%Nb) ötvözetből készült SLIM rúd, vagy a nyugati erőművekben használt OptZirlo™ ötvözetből készült rúd. Az egyes kísérletek leírásánál részletezem, hogy melyik típusú burkolattal történt a vizsgálat.

A köteg alsó végét a szerelőtárcsa tartja fixen. Magasabb szinteken ezt a feladatot a köteg hosszától függően két, illetve három távtartórács végzi el. A megfelelő geometriai elrendezés kialakításához szintén eredeti, az orosz gyártótól beszerzett, 10 mm magas Zr1%Nb anyagú távtartórácsot használtunk fel (3. ábra).



3. ábra: A kivágott cirkónium távtartórácsok (balra), és elhelyezésük a köteg végén (jobbra)

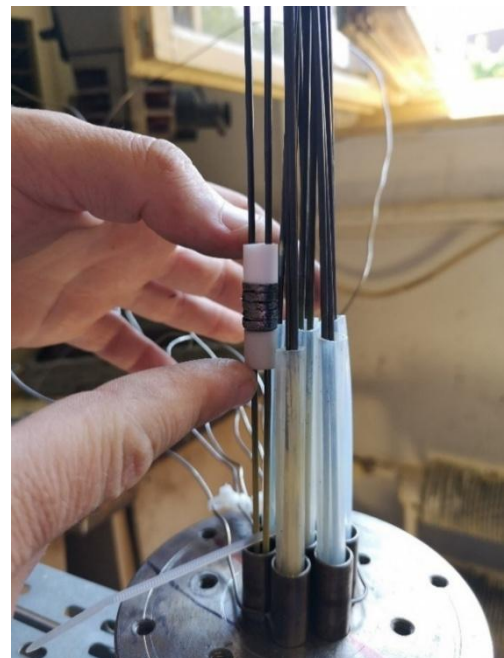
A nyomásállóság biztosítása érdekében mind a hét pálcá egyik végére cirkónium dugót hegesztettem, így hermetikusan lezárt csöveket kaptunk. Ezeket a dugókat esztergálással állítottuk elő nagy tisztaságú cirkóniumrudakból. A 4. ábra a hegesztés előtt álló hét fűtőelem cső és a hozzájuk tartozó hét lezáró dugó, valamint a hegesztés utáni állapotuk láthatóak.



4. ábra: A hegesztés előtt álló fűtőelemrudak és a végüket lezáró cirkónium dugók (balra), valamint a hegesztés utáni állapotuk (jobbra)

A másik végük lezárása már összetettebb megoldást kívánt, mert a volfrám fűtőszál kivezetéseit és a csövek végeit együtt kell tömíteni, továbbá az egyedi belső nyomás,

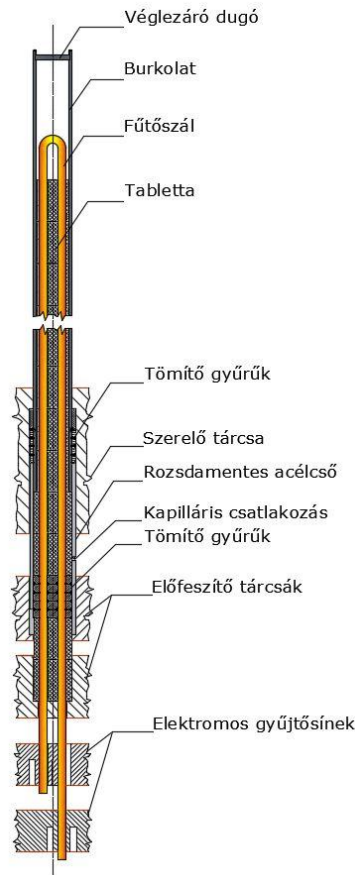
öblítés kialakítása még egy kapilláris cső csatlakoztatását is igényli. Ezeken a kapillárisokon keresztül öblíteni lehet a rudak belső térfogatát argonnal vagy kriptonnal, illetve ezzel érhető el a nyomásnövelés is az adott csőben. A nyomásállóság mellett szükséges elektromosan is szigetelni az egyes volfrámszállakat a fűtőelem pálcáktól és a mérőszakasz többi részétől. A magas hőmérséklet miatt nyomásálló grafit tömítés használata szükséges, azonban a grafit kiváló elektromos vezető, ezért egy elektromosan szigetelő réteget kell kialakítani a volfrám fűtőszál felületén. Kísérleteim alapján a magas hőmérsékletet egy kerámia réteg képes elviselni anélkül, hogy az elektromosan átvezetne, és emellett a pálcá is nyomástartó marad. A volfrám fűtőszálakat az alsó fej magasságában nagyon vékony ( $\approx 20$  mikrométer vastag) kerámia réteggel vontuk be (5. ábra).



5. ábra: A volfrám fűtőszál a sárga kerámia bevonattal (balra), illetve a grafit tömítőkorongok beépítése (jobbra)

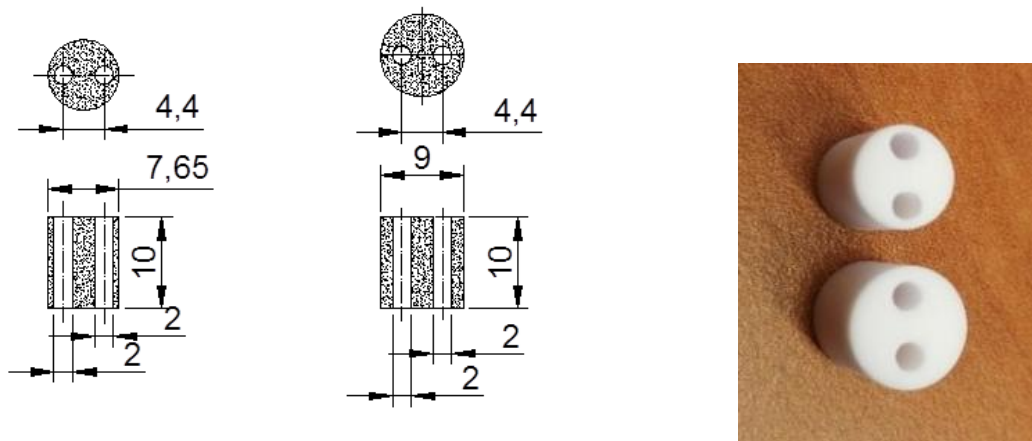
Az 5. ábrán látható, hogy a szerelőtárcsában végződő  $Zr1\%Nb$  cső tömítetten csatlakozik egy 41 mm hosszú rozsdamentes acél csőhöz, ami keményforrasztással fogadja az említett nyomásbeállító kapillárist, és tartalmazza a fűtés két volfrám elektródájának a tömítését is. A mérőszakasz alsó fejében található valamennyi tömítést 2 mm vastag, alakítható grafitlapból készítettük. Ezek biztosítják a  $Zr1\%Nb$  cső és a rozsdamentes acélcső közötti átmenet (6. ábra), valamint a volfrám fűtőszál elektródái és a rozsdamentes acélcső fala közötti átmenet nyomásállóságát (5. ábra). A plasztikus

grafitlapokból a különböző méretű és formájú tömitések méretre szabása helyben történt egyedi kivágó szerszámok segítségével.



6. ábra: A modell fűtőelemrúd felépítése

A fűtőelemrudakat  $\text{Al}_2\text{O}_3$  és  $\text{Zr}_2\text{O}$  tablettákkal töltöttük fel, amelyek hőtechnikai paraméterei hasonlóak az  $\text{UO}_2$  tablettáéhoz. Az  $\text{Al}_2\text{O}_3$  tabletták feladata az  $\text{UO}_2$  tabletták modellezésén túl, hogy a rajtuk áthaladó fűtőszálakat a magas hőmérséklet ellenére mechanikailag megtartsák. A fűtőszálak áthaladását biztosítani kell a szerelőtárcsán úgy, hogy a tárcsák a tömitésként alkalmazott grafitgyűrűket megfelelő erővel préseljék a helyükre.



7. ábra: A 7,65 mm átmérőjű és a 9 mm átmérőjű  $\text{Al}_2\text{O}_3$  tabletták rajza és képe

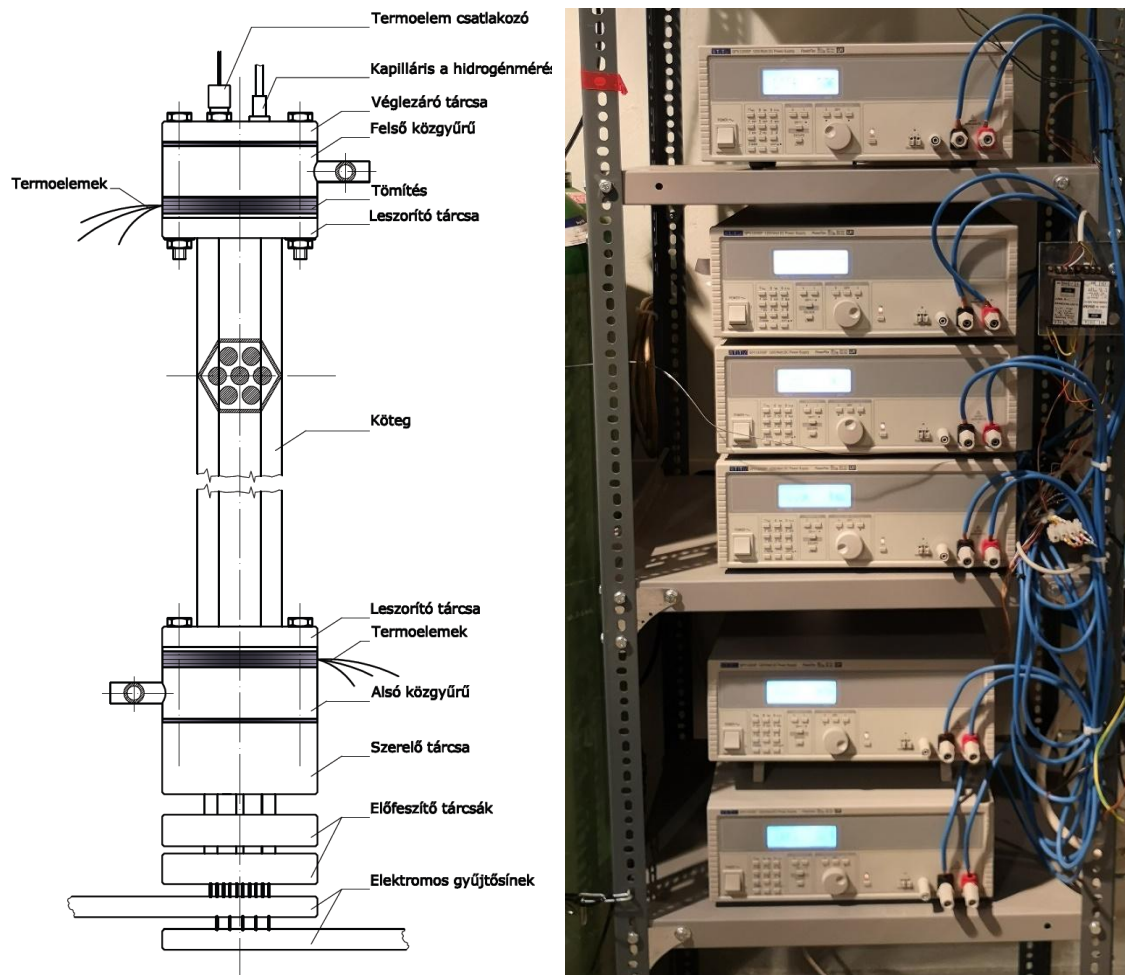
Ezeket a feladatokat kétféle méretű tablettával oldottuk meg, amelyek rajzait és képét a 7. ábra mutatja. A 7,65 mm átmérőjű tablettákat a fűtőelemrudakban, míg a 9 mm átmérőjű tablettákat a mérőszakasz alsó fejében alkalmaztuk (az alsó fej a szerelőtárcsát is tartalmazza).



8. ábra: A fűtőszálra felfűzött kerámia pelletek

A fűtőelemrudak fűtését egy 1,3 m hosszú volfrám szál (vezetőképessége szobahőmérsékleten  $0,049 \Omega/m$ ) biztosítja (8. ábra), amely a köteg alján csatlakozik a tápegységekhez. Az egyes rudak fűtése párhuzamosan kapcsolt. A kísérleti köteget egyenáramú tápegységek (9. ábra) fűtik, a teljesítmény a kísérlet során 0 és 2500W között változtatható. Ez a teljesítménytartomány lefedi az egyes CODEX mérések fűtési teljesítményét.

Minden fűtőelemhez tartozik egy puffertartály, amelyeknek szintén 100 baros méréshatárú nyomástavadókkal mérhető a belső nyomása (19. ábra). A puffertartályokra azért van szükség, hogy az egyes fűtőelemrudak egyedileg beállított, egymástól független nyomásértékei könnyebben beállíthatók legyenek, továbbá a rudak szivárgása esetén a puffertartály segítségével egy ideig tartani lehessen a rudak belső nyomását.



9. ábra: A mérőszakasz rajza a hőszigetelés nélkül (balra), valamint a rudak fűtéséhez használt tápegységek (jobbra)

A köteg rúdjaiknak belső nyomását külön-külön be tudtuk beállítani. Egy argon gázpalack csapokon és egy-egy puffertartályon keresztül csatlakozik a hét darab kapilláris csőhöz és a csövenként csatlakoztatott nyomástávadókhoz. Néhány mérésben nem argont, hanem nitrogént vagy kriptongázt használtunk, hogy a fűtőelemek felhasadását tömegspektrométerrel is lehessen detektálni.

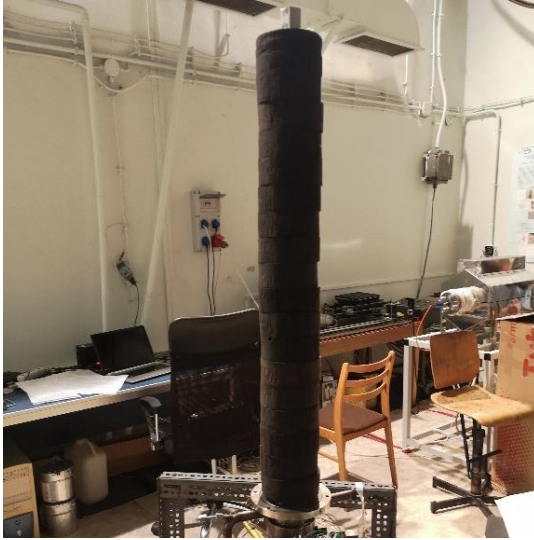
A hét rúdból álló kísérleti köteget E125 (Zr-2,5%Nb) anyagú köpeny (kazettafal) veszi körbe. A köpeny a vízzel és gázzal való eláraszthatóságot, és a berendezés mindenkori nyomásának a megtartását is szolgálja, továbbá kellő merevséget biztosít a hőszigetelés és a köteg szerelhetőségéhez. Úgy terveztük, hogy a köpeny a rendszernyomást 0-6 bar tartományban képes legyen elviselni. A hőveszteségek csökkentésére a köpenyt  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -fiber lapból kialakított, 6 cm vastag szigeteléssel borítottuk (10. ábra).

A kazettafal úgy jött létre, hogy hat darab, egyenként 22 mm széles, 1 m hosszú, a két hosszanti oldalán a jobb illeszkedés érdekében  $30^\circ$ -ra mart E125 lemezt összehegesztettünk (10. ábra). Ezek a lemezek a Paksi Atomerőműben is használt kazettafal feldarabolásával keletkeztek. A megfelelő hatszög geometria összeállítása és a lemezek hegesztése után a köpeny készen állt az összerelésre. A CODEX-ATF mérésnél, ahol krómmal bevont balesetálló fűtőelemekkel történt a kísérlet, a kazettafal szintén krómozott réteggel volt ellátva.



10. ábra: A kazettafal cirkóniumlemezeinek megmunkálása (marás, geometria összeállítás, hegesztés)

A hőszigeteléssel körülvett kazettát az alsó és felső fejhez tömítetten csatlakozó acél köpenycső foglalja magában (11. ábra). A köpenycső falvastagsága 2 mm, külső átmérője 139,7 mm. Ennek felületére van feltekercselve a külső fűtést adó fűtőszál és a további szigetelést biztosító hőszigetelő réteg. A kazettafal és a köpenycső közötti teret, amelyet az  $\text{Al}_2\text{O}_3$  szigetelés tölt ki, a mérés során argon védőgázzal (5 l/min) öblítünk, hogy a kazettafal esetleges külső levegős oxidációját megakadályozzuk.

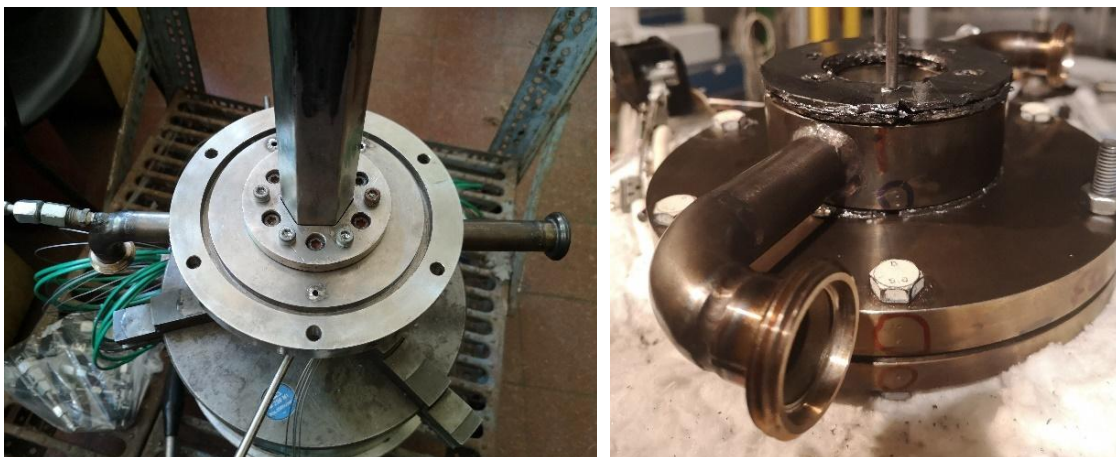


11. ábra: A kazettafal szigetelése (balra) és köpeny a külső szigeteléssel és a köpenyfűtéssel (jobbra)

Az alsó és felső fej közgyűrűn és grafit tömítéseken keresztül csatlakozik a köpeny peremeihez. Az alsó közgyűrűhöz csatlakozik a víz és a gáz bevezetésére szolgáló cső, míg a felső közgyűrű vezet el a kilépő gázokat a kondenzátorhoz (12. ábra). A mérőszakasz alulról argonnal, túlhevített gőzzel, vagy bármilyen más gázzal és vízzel elárasztható, míg a keletkezett gázok és a vízgőz a szakasz tetején tudnak távozni. A kísérleti kötegek fő jellemzőit a 4. táblázat foglalja össze.

4. táblázat A CODEX kísérleti kötegek fő jellemzői

Kísérlet neve		LOCA-200	LOCA-200B	LOCA-E4	NITRO	SBO	AIT-3	SLIM	ATF
A burkolat anyaga		E110, E110G				E110G		optZIRLO™, Krómozott optZIRLO™	
A fűtőelemrudak hossza a kötegben (mm)		580				1000	580	650	
A kötegben lévő fűtőelemrudak száma		7							
Fűtött rudak száma		7				6	5	7	
A burkolat	külső átmérője	9,1					8,9	9,1	
	falvastagsága	0,69 mm (E110), 0,65 mm (E110G), 0,57 mm (optZirlo™)							
A tabletták	anyaga	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>			ZrO <sub>2</sub> , Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>		Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	ZrO <sub>2</sub> , Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	
	külső átmérője	7,65 mm (ZrO <sub>2</sub> ) és 9 mm (Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )							
	magassága	10 mm							
	lyukak száma és átmérője	2 db és 2 mm							
A távtartó rácsok	száma	2				3	2		
	anyaga	Zr1%Nb							
	magassága	10 mm							
	falvastagsága	0,4 mm							
A kazettafal	anyaga	Zr2,5%Nb (E125)							
	vastagsága	2 mm							
	hossza	1000 mm							
A kazettafejek anyaga		rozsdamentes acél							



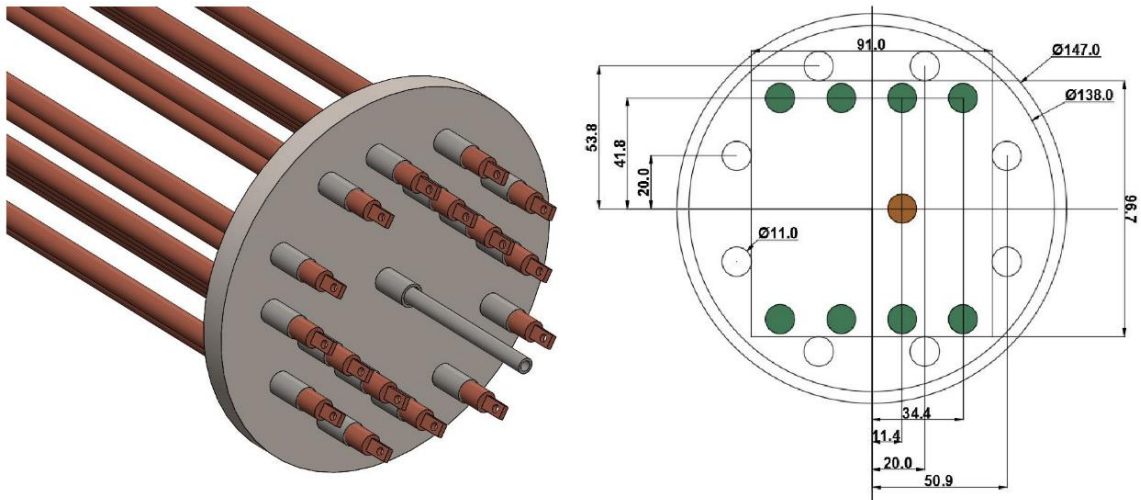
12. ábra: Az alsó közgyűrű víz és gáz csatlakozásai (balra), illetve a felső közgyűrű kivezetései (jobbra)

#### 4.1.2 A gőzfejlesztő

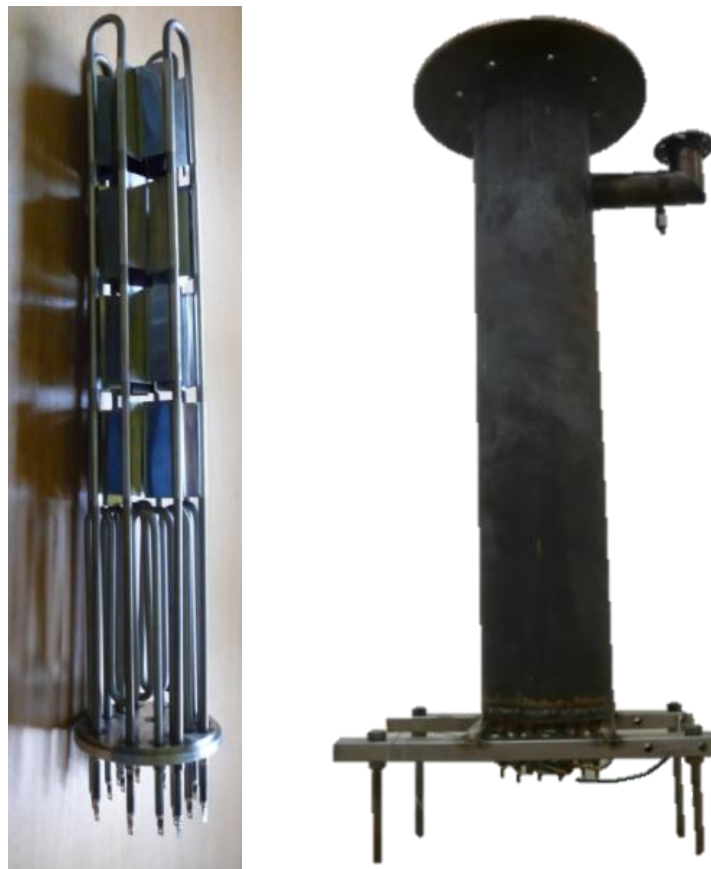
A baleseti körülmények modellezéséhez szükséges magas hőmérsékletű gőzt a gőzfejlesztő berendezés biztosítja, amely tartalmazza a túlhevítő egységet is. A fűtésről a gőzfejlesztő alsó részében 4 db rövid (216 mm), míg a felső (túlhevítő) részében 4 db hosszabb (700 mm) fűtőtest gondoskodik (13. ábra). Mindkét egység teljesítménye egymástól függetlenül 0-3 kW között változtatható. A gőzfejlesztőbe két termoelem került beépítésre, egy az alsó (gőzfejlesztő), egy pedig a felső (túlhevítő) részbe. A termoelemek segítségével nyomon követhetjük a fűtőtestek aktuális felületi hőmérsékletét. A fűtőtesteken rozsdamentes lapokat helyeztünk el, ami egyrészt a fűtőfelület növelésére szolgál, másrészt segít a fűtőtestek pozíciójának megtartásában. További fűtőfelület-növelőnek a gőzfejlesztő alsó részében rozsdamentes rugókat helyeztünk el. A rugók átmérője 1,4 mm, magasságuk 1,3-2 mm között változik. A kisméretű acélrugók segítségével a beérkező tápvíz könnyebben szétterül a fűtőtestek között, így biztosítva az egyenletes gőztermelést. A keletkezett gőz túlhevítés után csatlakozik a rendszerhez. A gőzfejlesztő fűtőtesteinek és tartályának fényképe a 14. ábra látható. A gőzfejlesztő külső hőszigeteléséről 100 mm vastag dróthálós üveggyapot paplan gondoskodik.

A vízbetáplálás OBL típusú precíziós adagoló szivattyúval a gőzfejlesztő alján történik egy bevezető csövön keresztül. A víz itt felmelegszik és gőzzé válik, majd bejut a túlhevítő részbe, ahol tovább emelkedik a gőz hőmérséklete, majd a mérőszakasz alsó bemeneti csövén belépve a mérőszakaszon át a kondenzátorba, és végül a csapadékgyűjtő tartályba jut. A gőzfejlesztő hidegvíz belépési pontjánál argon vivőgázt adagolunk a

gőzáramhoz. Amelyik kísérletnél történt levegő- vagy nitrogén-betáplálás a mérőszakaszba, azt ezen a belépési ponton juttattuk be.



13. ábra: A gőzfejlesztő fűtőtestek elhelyezkedése. A jobb oldali ábrán a zöld körök mutatják a gőzfejlesztő fűtőtesteinek csatlakozását, a fehér körök a túlhevítő fűtőtestek csatlakozásait jelzik. A tárcsa közepén a hidegvíz- és argonbetáplálás csöve látható



14. ábra: A gőzfejlesztő fűtőtestek (balra) és a gőzfejlesztő tartály (jobbra) fényképe

### 4.1.3 A kondenzátor és a csapadékgyűjtő tartály

A kondenzátor feladata, hogy a kísérlet során a mérőszakaszból kilépő magas hőmérsékletű gázokat, gőzöket és csapadékot a primer körben lehűtse, lehetőleg szobahőmérsékletre (15. ábra). A kondenzátor egy 70 kW-os EHC-3-70 típusú, rozsdamentes acélból készült csököteges hőcserélő, amely viszonylag sok szekunderköri csapvizet tud tárolni, így a rövid ideig tartó, de nagyon magas hőmérsékletű tranziens anyagáramot károsodás nélkül el tudja viselni. A hőcserélő primer oldala a mérőszakasz kilépő csonkjához és a csapadékgyűjtő tartály belépő csonkjához csatlakozik, míg a szekunder oldal ellenáramúan fogadja a csapvíztömlőket. A csapadékgyűjtő egy 50 literes rozsdamentes tartály, amely a rendszernyomást 0-8 bar tartományban képes elviselni.

A mérés végén a vízzel való elárasztást, tehát a gyors lehűtési szakaszt két nagy kapacitású (115 l/óra) OBL típusú precíziós adagolószivattyúval végezzük el. Az elárasztás alulról, a csapadékgyűjtő tartályból, az alsó fejen keresztül valósul meg.



15. ábra: A kondenzátor és a csapadékgyűjtő tartály

## 4.2 Méréstechnika és adatgyűjtés

### 4.2.1 Adatgyűjtő rendszer

Az adatgyűjtő és vezérlő rendszer gyűjti és tárolja a mérési eredményeket a kísérletek során, valamint részt vesz a kísérleti paraméterek szabályozásában is.

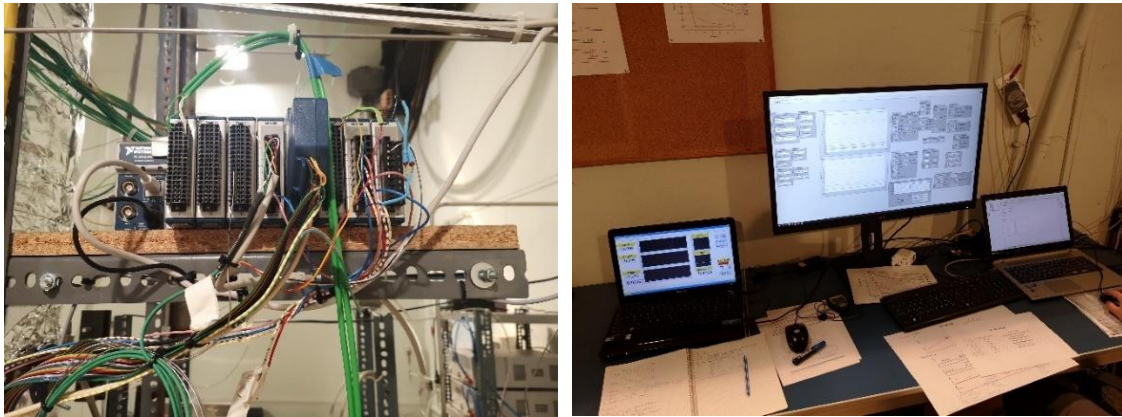
A National Instruments (NI) által gyártott Compact DAQ és Compact RIO önjáró FPGA (Angolul: Field-Programmable Gate Array) alapú adatgyűjtő-vezérlő modulok biztosítják a tranziens mérések során szükséges legalább 0,5 s-os mintavételi időt. Az FPGA alapú adatgyűjtő a szenzorokról érkező jeleket valós időben, párhuzamosan feldolgozza és rögzíti hardveres logikával, lehetővé téve a gyors mintavételt és előfeldolgozást. Az így gyűjtött adatokat a rendszer a számítógép felé továbbítja elemzésre. Az egységekhez kötött számítógépek – ugyancsak az NI által forgalmazott – LABVIEW program segítségével tudják az adott feladatnak megfelelően beállítani a csatornák jellemzőit. Digitális I/O modulok szolgálnak a vezérlési biztonsági feladatok ellátására.

A Compact DAQ különböző jelek fogadására és kondicionálására alkalmas modulokat képes fogadni. Ezekből a modulokból állítottuk össze azt a konfigurációt, ami alkalmas a kísérleti köteg hőmérséklet-, nyomás- és szintméréseinek feldolgozására (5. táblázat).

5. táblázat: Az adatgyűjtő-vezérlő rendszer részegységei

Eszköz	Tulajdonságok	Leírás	Mennyiség
Compact cDAQ	Típus: 9188 (8 modul)	C-sorozatú modulok fogadására alkalmas keret	1 db
NI 9213	16 csatorna/24 bit Termoelem bemeneti modul	K-típusú termoelemek jelkondicionálója	3 db
NI 9208	16 csatorna/24 bit 20mA Bemeneti modul	Általános áram bemeneti modul (nyomástávadók és áramlás szabályozók mérése)	1 db
NI 9211	4 csatorna/24 bit 80 mV bemeneti modul	Bemenő áramerősség mérése	1 db
NI 9265	4 csatorna/16 bit, 0 - 20 mA Analóg kimeneti modul	Áramlás szabályozók és fűtés irányítása	2 db
NI 9205	16 diff. / 32 single csatorna, 16 bit, 200mV - 10V Analóg bemeneti modul	Bemenő feszültség mérése	1 db

A CODEX kísérletnél használt Compact DAQ dokkoló egység és a benne található modulok megegyeznek minden egyes kísérletnél használtakkal, csupán a bekötött termoelemek száma különbözik az aktuális mérés paramétereinek megfelelően. A kísérlethez szükség van a korábban használt vezérlő szoftver aktualizálására, fejlesztésére is. A dokkoló egységet a modulokkal, illetve a vezérlő számítógépeket a 16. ábra szemlélteti.

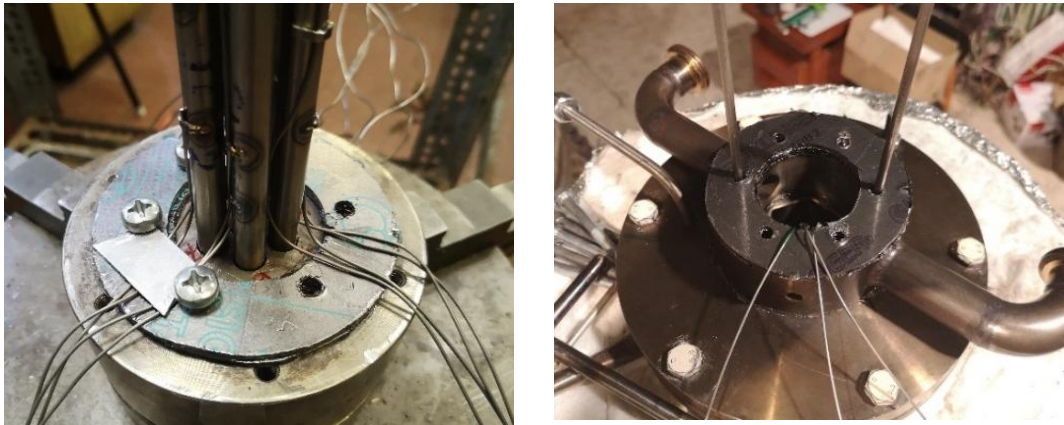


16. ábra: Az adatgyűjtő modulok (balra) és a vezérlő számítógépek képe (jobbra)

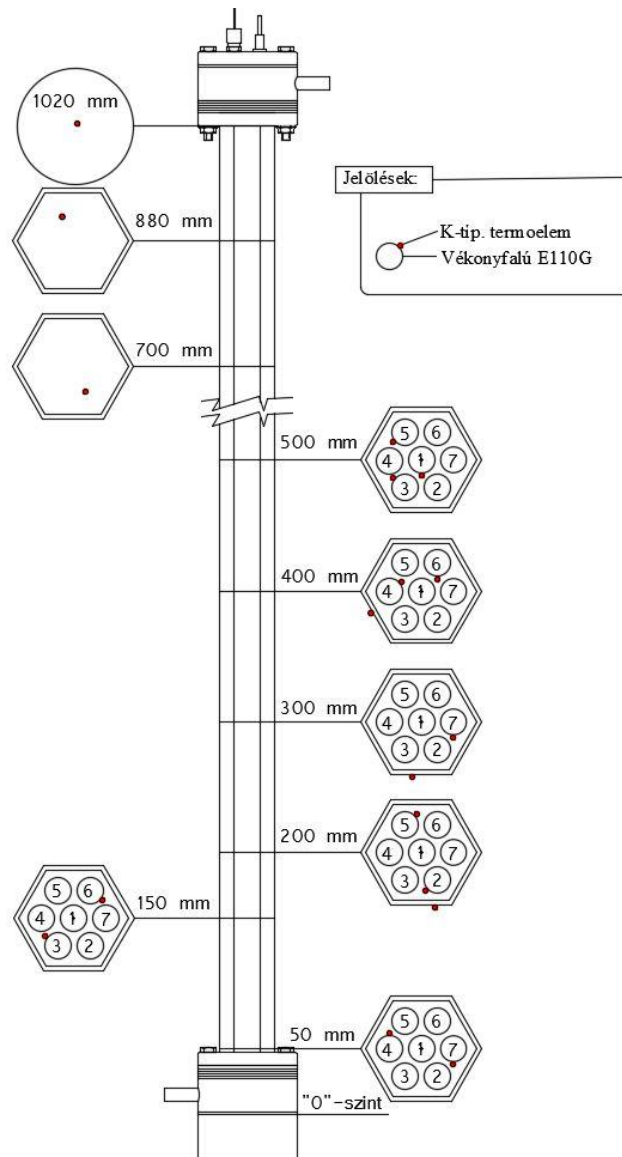
#### 4.2.2 Hőmérsékletmérések

A CODEX kísérleteket úgy terveztük, hogy a kísérleti köteg hőmérséklete lokálisan akár 1000-1700 °C fölötti értéket is elérhet. A mérések során magas hőmérsékletű C-típusú és K-típusú termoelemeket alkalmaztunk, amelyek ebben a hőmérséklet-tartományban is megfelelően működnek. A kísérletek során mért hőmérsékletek abszolút hibája ( $\Delta T$ ) a C típusú hőmérők esetében 2000 °C-on  $\pm 20$  °C, a K-típusú hőmérők esetében 1400 °C-on  $\pm 5$  °C. A hőmérsékletek relatív hibája 2000 °C-on 1 % ( $\delta T = \Delta T / T_{\text{mért.}} \cdot 100$  %, tehát  $\delta T = (20 \text{ °C} / 2000 \text{ °C}) \cdot 100 \text{ \%} \approx 1 \text{ \%}$ ).

A termoelemeket a köteg hosszától függően különböző szinten helyeztük el. Nulla szintnek a szerelőtárcsa köteg oldali felszínét tekintettük. További termoelemeket helyeztünk el a kazettafalon belül, szintén a köteg hosszától függően a 700 mm, 880 mm és 1020 mm szinteken azért, hogy a köteg feletti szabad tér hőmérsékletét is ismerjük. Az 1020 mm-es szint megfelel a felső fej kilépő terének. A kötegben elhelyezett termoelemeket két helyen, az alsó és a felső fejben, a köpeny és közgyűrű közötti tömítések között vezettük ki a mérőszakaszból (17. ábra). A termoelemek elrendezését a kötegben a 18. ábra mutatja.



17. ábra: Termoelemek kivezetései az alsó (balra) és felső tárcsák között (jobbra)



18. ábra: A termoelemek kiosztása a kötegen

A kötegen kívül mérni tudtuk továbbá a kazettafal külső felületének (200, 300, 400 mm magasságban), valamint a köpenycső külső felületének (150, 500, 850 mm magasságban), illetve a belépő gőz és a szerelőtárcsa hőmérsékletét is.

### 4.2.3 Nyomásmérések

A rendszernyomást a mérőszakasz felső részén a véglezáró tárcsa megfelelő csatlakozóján mértük egy 6 baros méréshatárú nyomástávadóval. A rendszernyomás tartására egy lehetséges megoldás, ha a szobahőmérsékletű csapadéktartály gázterét egy túláramszelepen keresztül a környezethez kötjük. Túláramszelepként egy, a hőcserélő után elhelyezett rugóterhelésű biztonsági szelepet használtunk úgy, hogy azt 0,6 bar túlnyomás esetén történő lefúvatásra állítottuk be. Ha egy beállított argon árammal átmoszuk a rendszert, és ez az áram nyitva tartja a túláramszelepet, akkor ez a szelep gondoskodik a nyomás állandóan tartásáról. Természetesen tranziensesetben ez nem igaz, ilyenkor a rendszernyomás ad tájékoztatást a történetekről.

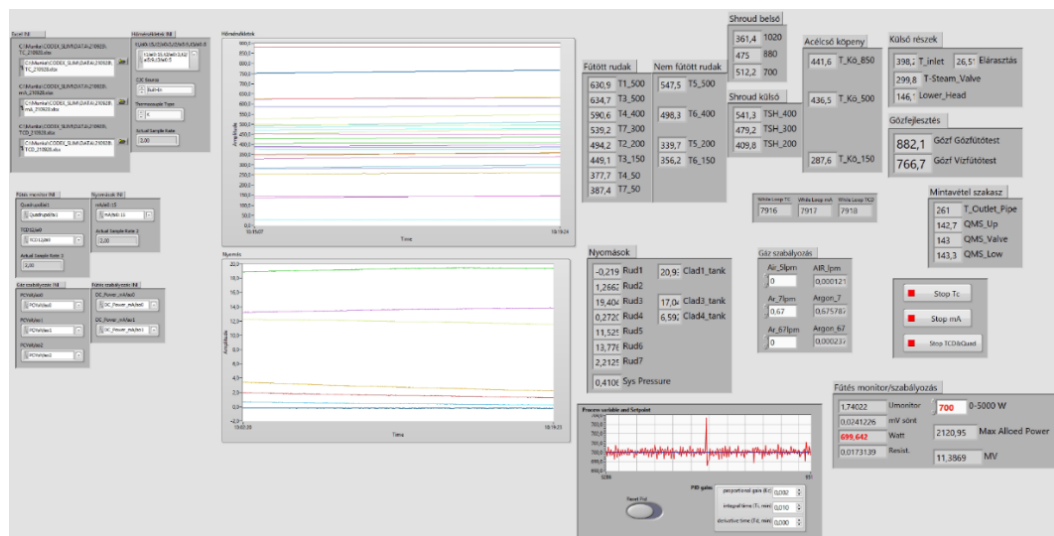


19. ábra: Az egyes pálcák nyomását vezérlő szelepek, puffertartályok és nyomástávadók

A fűtőelem-rudak kezdeti belső nyomásának a beállítását, majd a kísérlet során a belső nyomások változását a kapillárisokhoz illesztett 100 baros méréshatárú nyomástávadókkal mértük. A csapokat külön-külön megnyitva, és az adatgyűjtővel mért nyomást online ellenőrizve a kívánt érték beállítható. A mérés során használt 100 báros nyomástávadóknál az abszolút hiba  $\pm 0,1-0,3$  bar.

#### 4.2.4 Elektromos fűtőteljesítmény

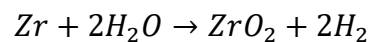
A párhuzamosan kapcsolt fűtőtestek elektromos fűtőteljesítményét egy kalibrált analóg szorzó áramkör segítségével mértük. A kalibrációt kétsatornás FFT-analizátorral (Angolul: Fast Fourier Transform) végeztük. A kötegre adott feszültségek szabályozása és a teljesítmény adatok ellenőrzése a vezérlő szoftverben történt (20. ábra).



20. ábra: A mérés vezérlő szoftver képernyőképe a mérés során

#### 4.2.5 A kilépő gáz összetételének mérése

A LOCA üzemzavar során a cirkóniumkomponensek vízgőzös oxidációja következtében hidrogén fejlődik a következő reakcióegyenlet szerint:



A keletkező hidrogén mennyisége a folyamat egyik fontos jellemzője. A 2015-ben és 2016-ban végrehajtott CODEX-LOCA-200 és CODEX-LOCA-200B [S1] mérések alkalmával a mintavételre szolgáló kapillárisok eltömődése miatt nem sikerült mérni a keletkező gáz mennyiségét az online adatgyűjtő rendszerben.

A 2018 után elvégzett kísérletekben a kilépő gázelegy összetételét egy Pfeiffer OmniStar GSD 320 O2 típusú kvadrupól tömegspektrométerrel mértük. A mintavevő cső a mérőszakasz felső kilépő csomójához közel csatlakozott a berendezéshez. A mintavevő

cső több furattal is rendelkezett, hogy különböző magasságokból egyszerre történjen a mintavétel. A tömegspektrométer acél kapillárisa (melynek előnye a kvarccal szemben, hogy elzárható) a mintavevő csőbe volt behelyezve. A mintavevő vezeték fűthető, ennek hőmérséklete 150 °C-on, a vákuum előtti térrész (inlet) pedig 120 °C-on tartottuk a mérés során. Faraday detektort használtunk (EP 422 erősítővel), mivel ez időben stabilabb értékeket ad. Ezt az új berendezést használtuk a CODEX-SLIM kísérletben is. A mérés előtt kalibrálást végeztünk különböző összetételű gázkeverékekkel. A hidrogén és nitrogén kalibrálás ismert tömegarányú gázkeverékekből, az oxigéné pedig szintetikus levegő elegyből történt. A vízgőz és víztartalom kalibrálásához a pontosabb és egyszerűbb mérés érdekében a korábbi gyakorlattal szakítva egy új mérőágot építettünk ki a mintavevő szakasz felé. A termelt gőzt elvezető szakaszon, mely megkerüli a kísérleti köteget, kiépítettünk egy leágazást, melyet hőszigetelő bevonattal láttunk el és fűteni is tudunk annak érdekében, hogy elkerüljük a kondenzációt a cső belsejében. Igény szerint ez a szakasz gyorsan felszerelhető és el is távolítható. A kalibráció végeztével ezt a szakaszt egy lezárt végű csőszakasszal helyettesítjük. A két szakasz csatlakoztatását és a hőszigeteléssel borított ideiglenes ágot a 21. ábra mutatja.



21. ábra: A mintavételi szakaszok csatlakozása

## 5 A CODEX MÉRÉSEK ÉS FŐ EREDMÉNYEIK

A CODEX kísérleti berendezésen a dolgozatban szereplő, a vezetéssel elvégzett kísérletek megnevezése és a modellezett forgatókönyv leírása a 6. táblázatban található.

Kísérlet megnevezése	Modellezett forgatókönyv
CODEX-LOCA-200	Hűtőközeg-vesztéses tervezési üzemzavar
CODEX-LOCA-200B	Hűtőközeg-vesztéses tervezési üzemzavar
CODEX-LOCA-E4	Hűtőközegvesztéses-üzemzavar a nyitott reaktornál
CODEX-AIT3	Légbetöréses baleset gőz- és oxigénhiányos atmoszférában
CODEX-NITRO	Nitrogén bekerülése a hidroakkumulátorból baleseti körülmények között
CODEX-SBO	Teljes feszültségkiesés kis átmérőjű primerköri csővezeték törése után
CODEX-SLIM	Hűtőközeg-vesztéses tervezési üzemzavar vékonyfalú burkolattal
CODEX-ATF	Súlyos baleset balesetálló burkolattal

6. táblázat: A CODEX berendezésen a vezetéssel végrehajtott mérések

### 5.1 A CODEX-LOCA kísérletek

A CODEX-LOCA kísérletsorozat célja a paksi atomerőműben feltételezett hűtőközegvesztéses-üzemzavarok modellezése volt. A CODEX-LOCA-200 és a CODEX-LOCA-200B kísérletekben a primerköri csővezeték normál üzemelés során, nominális teljesítménynél feltételezett 200%-os törését tételeztük fel. A CODEX-LOCA-E4 kísérletben a leállított reaktor csőtöréses üzemzavarát modelleztük. A kísérletek egyik fontos célja az volt, hogy pontosítsuk a fűtőelemek burkolatának felhasadásáról rendelkezésre álló ismereteket a tervezési és a tervezési alapon túli üzemzvari körülmények között. A kísérleti program végrehajtása előtt kezdődött meg az átállás a fűtőelemgyárban az E110 burkolatról az E110G-re. Ezért a mérések másik fontos motivációja a két ötvözet viselkedésének összehasonlítása volt.

Az integrális mérések előtt az MTA EK számos kisléptékű kísérletet hajtott végre az E110 és E110G burkolatok üzemzvari viselkedésének tanulmányozására [23][24][25][26][27][28][29][30]. Ezek a mérések azt jelezték, hogy számottevő különbség van az E110 és E110G viselkedése között magas hőmérsékletű vízgőz atmoszférában. Az E110G esetében nem lép fel az oxidréteg felhasadása, így jóval

kevesebb hidrogént vesz fel, mint az E110, és kevésbé ridegedik el az oxidáció következtében. A kisléptékű mérések hozzájárultak ahhoz, hogy megbízhatóbb numerikus modellek álljanak rendelkezésünkre az atomerőművi biztonsági analízisekhez. A mérések logikus folytatásaként tettünk javaslatot integrális mérésekre, amelyekben több folyamat együttes hatását is tudjuk vizsgálni. Ezekhez a mérésekhez az erőművi biztonsági elemzésekre támaszkodva határozzuk meg a kísérleti feltételeket azzal a céllal, hogy minél jobban közelítsük a reaktorra számított körülményeket.

Az integrális kísérletekhez hét rúdból álló, elektromosan fűtött kötegeket használtunk az erre a célra előkészített CODEX berendezésen (2. ábra). A kötegekben egy időben vizsgáltuk az E110 és az E110G burkolatok viselkedését (4. táblázat). A kötegekhez szükséges E110 és E110G burkolatokat az atomerőmű szerezte be az orosz fűtőelemgyárból.

### **5.1.1 A CODEX-LOCA-200 kísérlet**

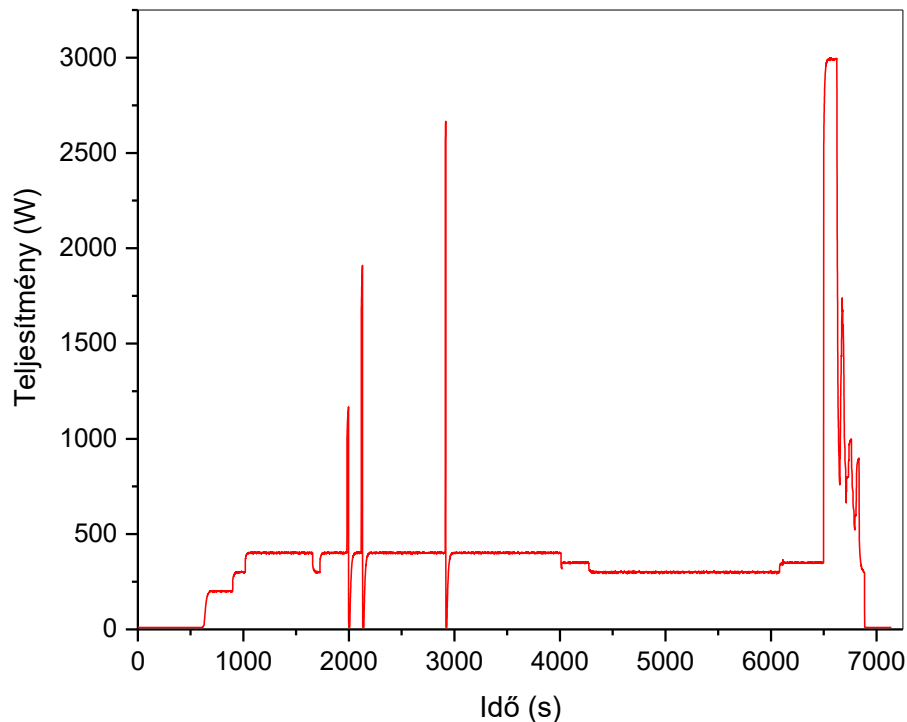
A kísérleti paraméterek kiválasztásához referenciaként a paksi atomerőműre végzett ATHLET-elemzéseket használtuk [22]. Az ATHLET egy termohidraulikai számítási kód, amely a reaktor hűtőközeg-áramlását és hőátadását modellezi. Az erőművi számítások során a reaktorzóna 4,7%-os átlagos dúsítású, kazettánként 6 darab gadolíniumos kiegészítő mérget tartalmazó, orosz gyártmányú, profilírozott fűtőelemekből állt, a reaktor névleges teljesítménye pedig 1485 MW volt. A vizsgált, teljes keresztmetszetű, kétoldali törés a primerköri 4-es számú hurok hideg ágának, a 492 mm átmérőjű cső reaktortartályhoz csatlakozó pontjánál helyezkedett el. A 200%-os csőtörés következtében a primerköri nyomás gyors ütemben esett vissza, ami intenzív hűtőközeg-kigőzölgést idézett elő. A tranziens során a legmagasabb burkolathőmérséklet a lefűvási fázis 5,3. másodpercében alakult ki, amelynek értéke 865 °C volt.

#### **5.1.1.1 A CODEX-LOCA-200 kísérlet végrehajtása**

Hideg állapotban a rudakat Ar gázzal az alábbi nyomásokra töltöttük fel:

- 14 bar: 4-es (E110) és 7-es számú (E110G) rúd,
- 11 bar: 2-es (E110) és 5-ös számú (E110G) rúd,
- 8 bar: 6-os (E110) és 3-as számú (E110G) rúd,
- 6 bar: középső, 1-es számú (E110G) rúd.

A köteget argon áramban ( $40 \text{ l/h} = 0,02 \text{ g/s}$ )  $600 \text{ °C}$ -ra fűtöttük fel. A köteg fűtésével egy időben elindítottuk a gőzfejlesztő fűtését is, hogy az az üzemi hőmérsékletét elérje és a gőzfejlesztés bármikor indítható legyen. A köteg fűtőteljesítményét úgy választottuk meg, hogy lehetőleg lassan fűtsük fel a köteget  $350\text{-}400 \text{ °C}$ -ra, minimálisra csökkentve ezzel a hő- és mechanikai stressz mértékét.

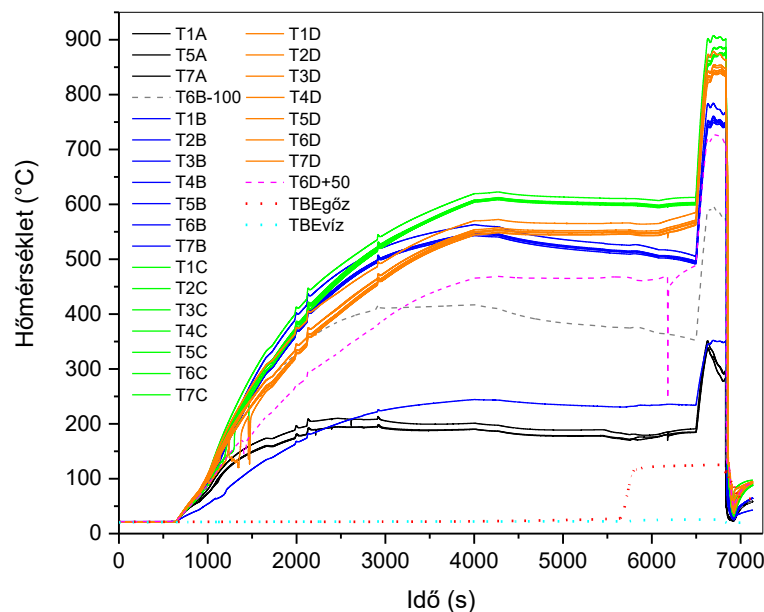


22. ábra A kötegre adott teljesítmény változása a CODEX-LOCA-200 kísérlet során

A köteg  $400\text{-}500 \text{ °C}$ -os hőmérsékleténél több teljesítmény értéket is kipróbáltunk azért, hogy lássuk, hogy a tápellátás és a köteg az adott értéken működtethető. Erre azért volt szükség, mert a köteg intenzív hőmérséklet emelése a tranziens során lényegesen nagyobb teljesítményt igényelhet, mint a hőmérsékleten tartása  $600 \text{ °C}$ -on. A teljesítmény görbén ezek a próbálkozások tüskék formájában láthatók (22. ábra).

Ezt követően a köteg hőmérsékletét felemeltük a tervezett  $600 \text{ °C}$ -ra, és ott tartottuk mindaddig, amíg a mérőszakasz termikus egyensúlyi állapotba nem került. Ezen állapot elérését követően elindítottuk a gőzbetáplálást ( $0,78 \text{ g/s}$ ), és ismét megvártuk a mérőszakasz termikus egyensúlyi állapotának beállítását a tranziensszakasz indítása előtt. A köteg különböző szintjein mértünk hőmérséklet értékeket: az A szint  $50 \text{ mm}$ -en, a B szint  $250 \text{ mm}$ -en, míg a C és D szintek a köteg felső részén,  $400 \text{ mm}$  és  $500 \text{ mm}$  magasságban helyezkedtek el.

A köteg felfűtése során szerzett tapasztalatok alapján úgy döntöttünk, hogy 3000 W elektromos teljesítménnyel fogjuk indítani az előszámításnak megfelelő hőmérsékletemelkedési sebességet. Ezt a teljesítményt addig alkalmaztuk, amíg a köteg legmagasabb hőmérsékletű pontja el nem érte a tervezett 900 °C-ot. Ekkor kézi vezérléssel úgy igyekeztünk a teljesítményt változtatni, hogy a köteg legmagasabb hőmérsékletű pontja 3 percig megtartsa ezt az értéket, azaz a 900 °C-ot. A kötegen mért legmagasabb hőmérséklet 907,5 °C volt, amit a középső, 1-es számú rúdon a C-szinten (400 mm) mértünk (23. ábra). Az azonos mérési szinthez tartozó görbéket egy színnel jelöltük a könnyebb azonosíthatóság kedvéért.



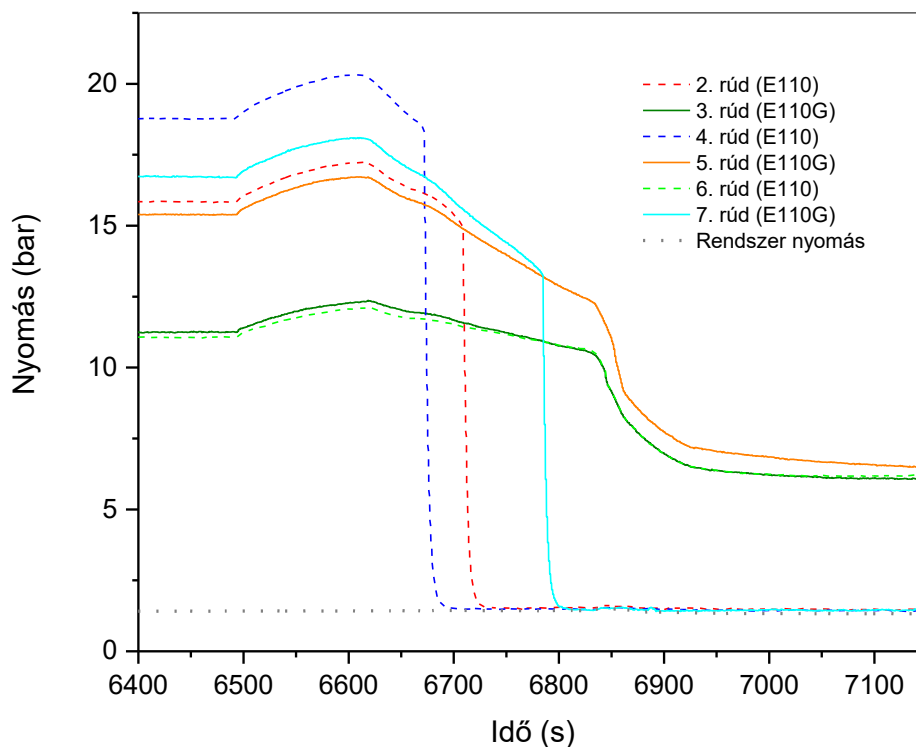
23. ábra: A hőmérséklet változása a CODEX-LOCA-200 kísérlet során pálcánként, az A (50 mm), B (250 mm), C (400 mm) és D (500 mm) szinteken

Az elárasztás előkészítése a következőképpen történt. Lekapcsoltuk a gőzfejlesztő elektromos teljesítményét és a gőzfejlesztő szivattyút is. Ezt követően elzártuk a gőzszelepet és a köteg aljában esetlegesen összegyűlt kondenzátumot a csapadéktartályba visszavezető ág csapját. A gőzfejlesztőben kialakuló nagy nyomás elkerülésére egy ponton légkörre nyitottuk a gőzfejlesztő terét. Ezt követően elindítottuk az elárasztó szivattyút, ami az előzetesen a csapadékgyűjtő tartályba töltött vizet 28,75 g/s sebességgel a köteg aljába nyomta. (A 28,75 g/s elárasztási sebességgel a köteg hideg feltöltéséhez szükséges idő kb. 10 s.) A szivattyú indításával egy időben a köteg elektromos teljesítményét visszavettük a hőveszteséget fedező 300 W-ra. Az elárasztás egészen addig tartott, amíg a kötegen mért hőmérsékletek a hűtővíz hőmérsékletére zuhantak vissza. Ekkor lekapcsoltuk az elárasztó szivattyút és a köteg fűtését.

### 5.1.1.2 A CODEX-LOCA 200 kísérleti eredmények kiértékelése

A 23. ábra a köteg 4(+2) szintjén és 7 rúdján mért hőmérsékleteket, valamint a belépő gőz és belépő hűtővíz hőmérsékleteket mutatja. Az ábrából látható, hogy a köteg tervezett hőmérséklet-történetét sikerült pontosan megközelíteni.

Az adatok kiértékelése során (lásd 24. ábra nyomástörténet), arra jutottunk, hogy három fűtőelem cső esetében vagy a csövek, vagy a csövek tömítése sérült. Látható, hogy a legmagasabb, 14 barra előnyomott csövek mindkét tagja, illetve a 11 bar párosnak az E110 tagja elszenvedett valamilyen sérülést. Mivel a sérült csövek nyomása nem a külső, hanem a rendszernyomásra esett vissza, ezért feltételezhető, hogy a csövek burkolata sérült, és nem a csövek tömítése. A köteg lehűlését követően a köteget kisereltük a kísérleti hurokból, majd a köpeny eltávolítását követően a köteget vizuális megfigyelésnek vettük alá. Ennek során kiderült, hogy a 25. és 26. ábrán látható módon, az E110G típusú csövek hosszan és egyenletesen fűvódtak fel, míg az E110 csövek sokkal kisebb mértékben, és inkább lokálisan. A felfűvódások geometriai közepe a köteg 410-430 mm-es magasságára esik. A csöveket egyenként Ar gázzal nyomás alá helyeztük, és megvizsgáltuk az esetleges sérülést. Kiderült, hogy a 23. ábrán is látható, a 900 °C-os hőmérsékleten tartás ideje alatt bekövetkező nyomásvesztés oka mindhárom cső esetében a burkolat felhasadása volt.



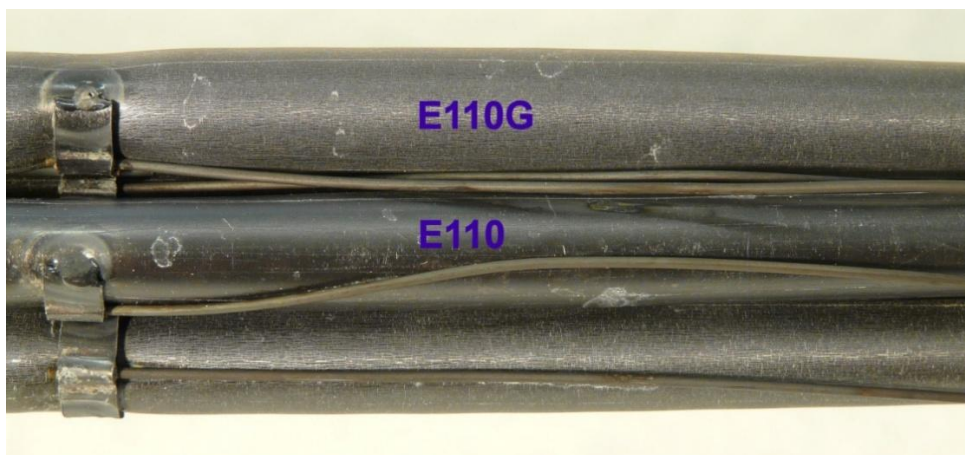
24. ábra: A nyomás változása a CODEX-LOCA-200 kísérlet során

Először a két, 14, illetve 11 bar nyomásra előtöltött E110-es, majd a 14 baros kezdőnyomással rendelkező E110G burkolat ment tönkre. A 24. ábra nyomásgörbéi alapján látható, hogy a 8 barral töltött páros két tagja teljesen azonos viselkedést mutatott. A 11 barral töltött páros szintén hasonló nyomástörténetet produkált addig, amíg az E110-es cső fel nem repedt. A 14 bar kezdeti töltőnyomásnál az új és a régi típusú csövek szignifikáns eltérést mutattak a tranziens során. Az E110G a nyomásbeállító rendszer szivárgása miatt a hőmérsékleti tranziens indulásakor lényegesen alacsonyabb nyomásra állt be, mint az E110 párja. A csövek alakváltozásai és sérülései jól egyeztethetők ezzel a nyomástörténettel.

Az E110G típusú fűtőelem csövek színe a kísérletet követően az erősebb fokú oxidációra jellemző szürkés, míg az E110 típusú burkolatok a kisebb oxidációs fokra és a még kompakt oxidrétegre jellemző fekete színt mutatták (26. ábra).



25. ábra: A teljes kísérleti köteg a CODEX-LOCA-200 kísérletet követően



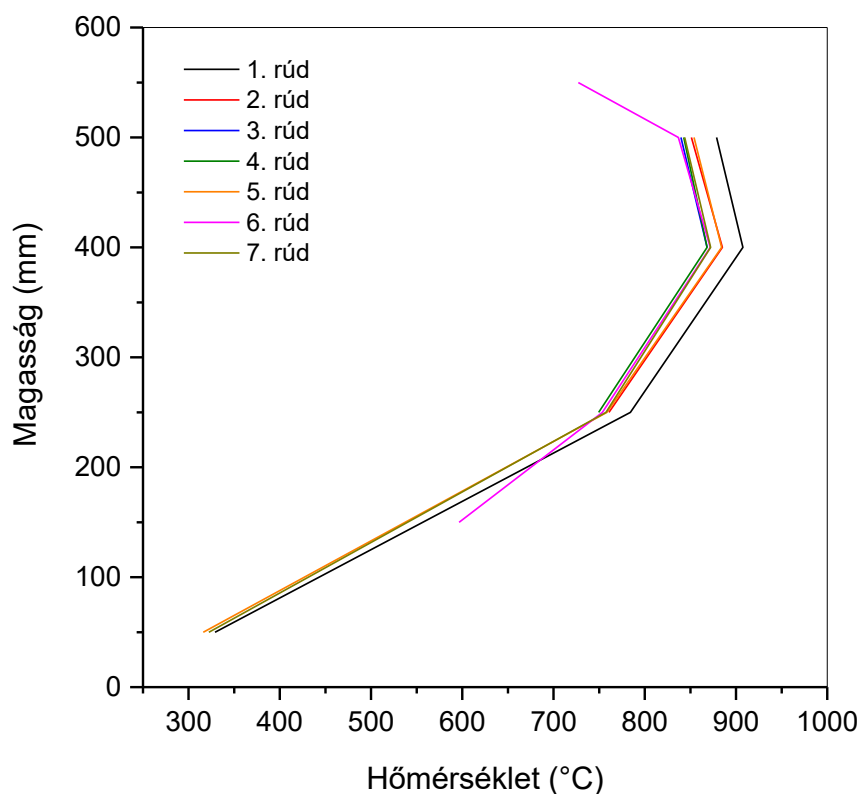
26. ábra: A kísérleti köteg legmagasabb hőmérsékletű, felfűvódott szakasza

Az 1-es számú cső esetében a csőhöz csatlakozó nyomásbeállító kapilláris feltételezhetően eltömődött, ami csak a mérés után derült ki, így ennél a csőnél nyomástörténetet nem detektáltunk. Ugyancsak eltömődött a mérőszakaszból a gázanalizátor-egységhez vezető kapilláris, így a burkolatok vízgőzös oxidációja során keletkező hidrogén mennyiségi meghatározása sajnos meghiúsult.

7. táblázat: A fűtőelemek felhasadásának jellemző körülményei.

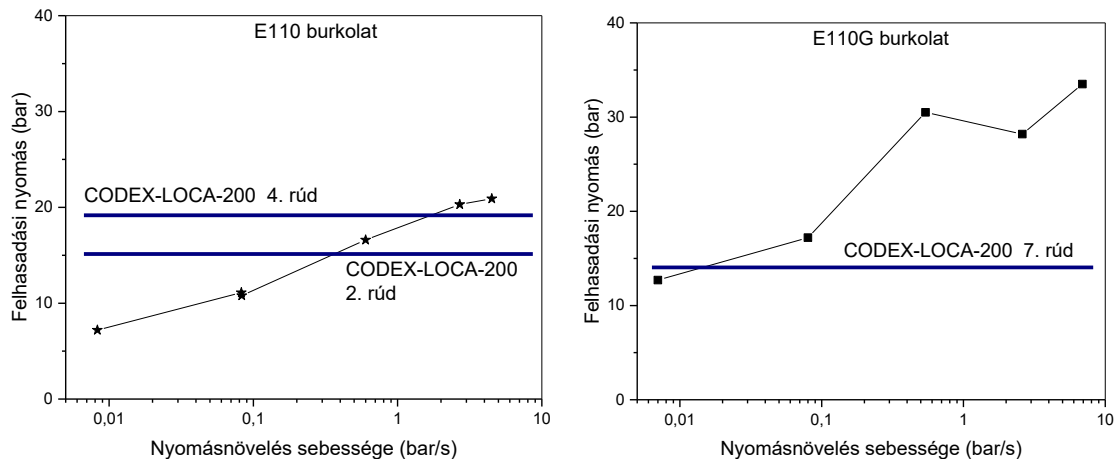
Rúd száma	Burkolat anyaga	Kezdeti töltőnyomás (bar)	Max. nyomás (bar)	Nyomás a felhasadás pillanatában (bar)	A felhasadás időpontja (s)	Hőmérséklet a felhasadás pillanatában (°C)
4	E110	14	20,3	18,4	6672	833-859
7	E110G	14	18,1	13,3	6785	841-875
2	E110	11	17,2	15,0	6709	851-886
5	E110G	11	16,7	-	-	-
6	E110	8	12,1	-	-	-
3	E110G	8	12,4	-	-	-

A kötegben kialakult maximális hőmérséklethez tartozó axiális hőmérsékleteloszlást a 27. ábra mutatja. A köteg legmelegebb szakasza 400-500 mm magasságban volt. Ezen a szakaszon hasadt fel mind a három fűtőelem. Az axiális profilok alapján valószínűsíthető, hogy a 400 mm-es és az 500 mm-es mért pontok között magasabb hőmérséklet jött létre, mint a termoelemeknél. Így a felhasadáshoz tartozó tényleges hőmérséklet is valamivel magasabb lehetett, mint az 7. táblázat utolsó oszlopában megadott két mért adat.



27. ábra: A rudak axiális hőmérséklet profilja 6694 s-nál

A mérések egyik fő kérdése az volt, hogy a burkolat megőrzi-e integritását a LOCA tranziens alatt, vagy sem. A maximális hőmérséklet elérése után mind a hét rúdnál megkezdődött egy lassú deformáció, amit a belső nyomás változása jelzett. A hét rúdból a három legmagasabb belső nyomású felhasadt. A felhasadási nyomás összhangban van a korábbi kisléptékű mérések tapasztalataival [26][27]. A CODEX-LOCA-200 és a kisléptékű mérések közvetlen összevetése nem egyszerű, mivel a kisléptékű mérésekben lineáris nyomásnövekedést alkalmaztunk, míg az integrális mérésben a kezdeti töltőnyomásból a térfogatoknak és a hőmérsékletváltozásnak megfelelően jött létre az a nyomás, ami a felhasadást okozta. Ugyanakkor jól látszik (28. ábra), hogy mind az E110, mind az E110G esetében a CODEX felhasadási nyomások beleesnek abba a tartományba, ahol a kisléptékű mérések mintadarabjai felhasadtak.



28. ábra: Az E110 és az E110G burkolat felhasadása 900 °C-on kisléptékű kísérletekben és a CODEX-LOCA-200 mérésben

A hidrogénmérés meghibásodása miatt az oxidáció mértékéről csak a vizuális megfigyelés adott információt. Az E110G valamivel gyorsabban oxidálódik 900 °C-on az oxidációs folyamat elején, mint az E110. Ez megfigyelhető volt a kötegen is: az E110 rudakon vékonyabb oxidréteg jött létre. Kisléptékű mérésekben azt tapasztaltuk, hogy 900 °C-on 2 perc oxidáció után az E110G esetében 1,2%, míg az E110 ötvözetnél 0,8% oxidáció lépett fel gyűrű alakú mintáknál. A CODEX-LOCA-200 köteg esetében a legmelegebb szakaszon kb. 1% lokális oxidáció jöhetett létre.

### 5.1.2 A CODEX-LOCA-200B kísérlet

E kísérlet fő paramétereit úgy választottuk ki, hogy kevésbé konzervatívan fedjék le az erőművi biztonsági számításokban szereplő hőmérséklet és fűtőelem belső nyomás tartományokat, mint a korábban végrehajtott CODEX-LOCA-200 mérés.

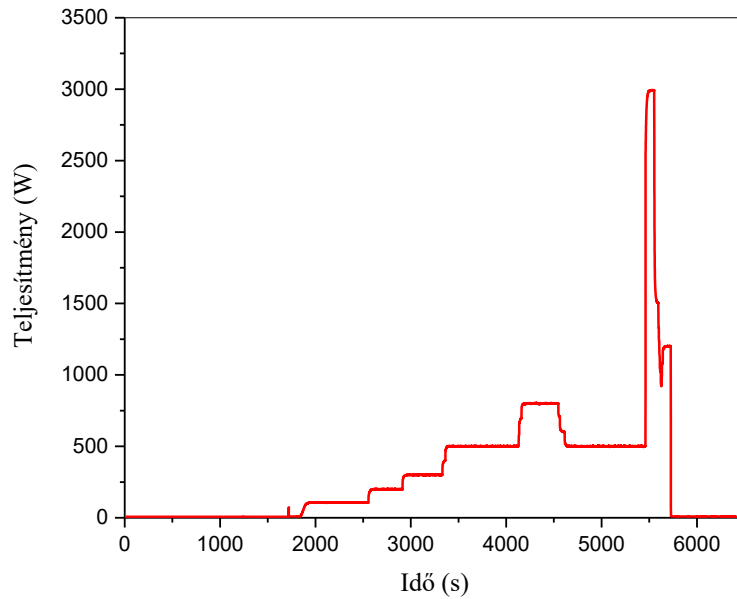
#### 5.1.2.1 A CODEX-LOCA-200B kísérlet végrehajtása

Hideg állapotban a rudakat Ar gázzal az alábbi nyomásokra töltöttük fel:

- 12 bar: 4-es (E110) és 7-es számú (E110G) rúd,
- 10 bar: 2-es (E110) és 5-ös számú (E110G) rúd,
- 8 bar: 6-os (E110) és 3-as számú (E110G) rúd,
- 6 bar: középső, 1-es számú (E110G) rúd.

A köteget argon áramban ( $40 \text{ l/h} = 0,02 \text{ g/s}$ ), elektromos fűtéssel  $600 \text{ °C}$ -ra hevítettük fel. A köteg fűtésével egy időben a gőzfejlesztő fűtését is elindítottuk, azért hogy a  $600 \text{ °C}$ -os plató eléréséig a gőztermelés stabilizálódjon. Az argon gázt a gőzfejlesztőn keresztül juttattuk a mérőszakaszba. A jellemző villamos teljesítmény  $500\text{-}800 \text{ W}$  volt (29. ábra).

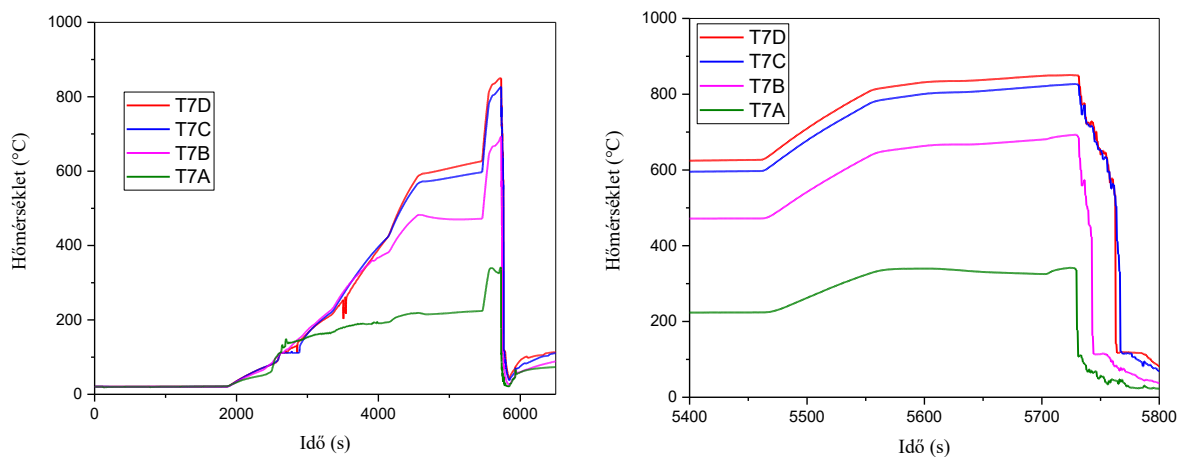
A gőzfejlesztő tehát a felfűtés kezdetén fokozatosan beállt a  $0,78 \text{ g/s}$  forgalomra, így a köteg felmelegítése gőzben történt. Ennek oxidációs szempontból nem volt jelentősége, mivel a vízgőz-cirkónium reakció  $600 \text{ °C}$  alatt gyakorlatilag nem indul be. Ugyanakkor a gőzáramban történt felmelegítéssel elkerülhető volt az az átmeneti lehűlés, amit a korábbi mérésekben akkor tapasztaltunk, ha a  $600 \text{ °C}$ -ról induló felfűtésnél kapcsoltuk be a gőzellátást.



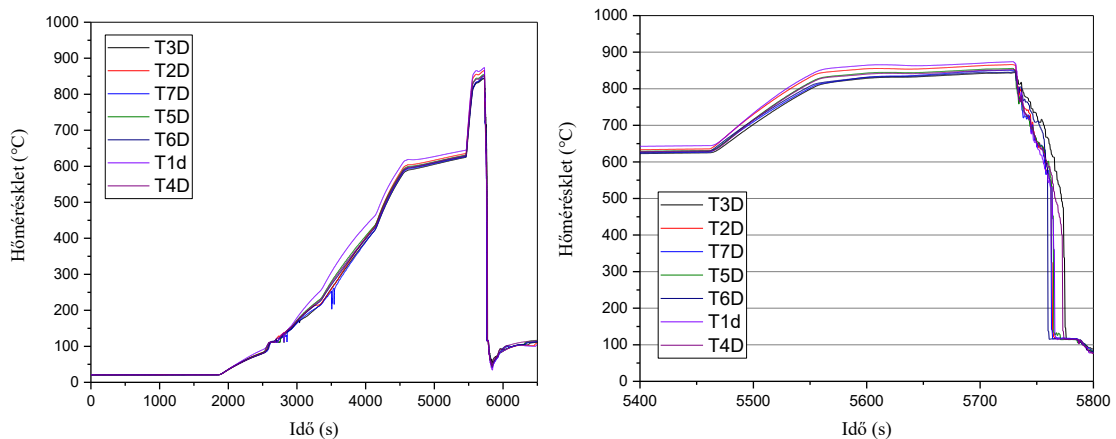
29. ábra: A kötegre adott teljesítmény változása a CODEX-LOCA-200B kísérlet során

A következő szakaszban (5461 s után) a köteg hőmérsékletét felemeltük a tervezett 850 °C-ra. Ekkor a fűtőteliesség 3000 W volt (29. ábra). A köteg felső része a C (400 mm) és D (500 mm) szinteken 800-850 °C között volt, míg a B (250 mm) szinten 650 °C-ot ért el és az A (50 mm) szinten a burkolat hőmérséklete nem sokkal haladta meg a 300 °C-ot (30. ábra).

A 850 °C elérése után a teljesítményt visszavettük, hogy elkerüljük a további felmelegedést.



30. ábra: A hőmérséklet változása a CODEX-LOCA-200B kísérlet során a 7-es számú rúd felületén az A (50 mm), B (250 mm), C (400 mm) és D (500 mm) szinteken



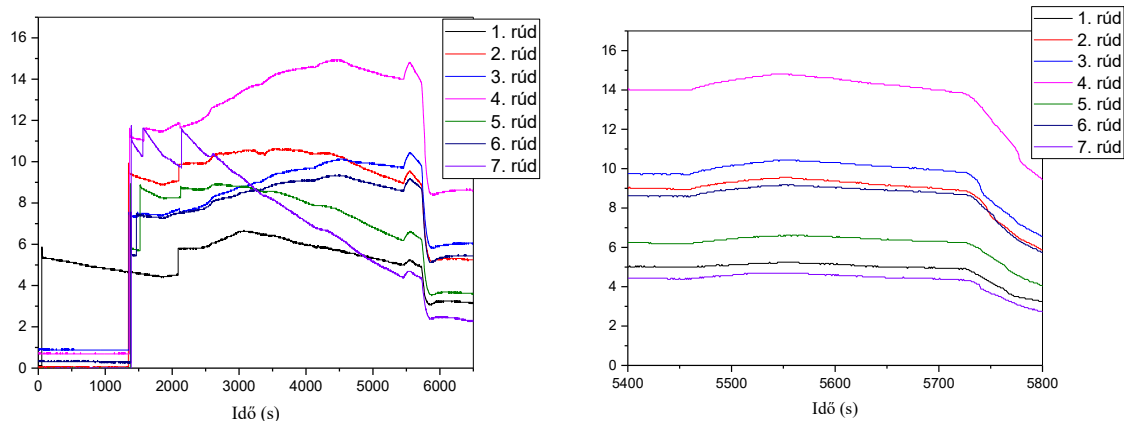
31. ábra: A hőmérséklet változása a hét fűtőelem legmelegebb pontján (D) a CODEX-LOCA-200B kísérlet során

A legmagasabb hőmérséklet 874 °C volt, amit az 1-es rúd D szintjén (400 mm) mértünk. A hét rúd hőmérséklete nagyon közel volt egymáshoz (31. ábra).

A mérés utolsó szakaszában – 150 másodperccel a 850 °C-os hőmérséklet elérése után – elárasztottuk a köteget. Lekapcsoltuk a gőzfejlesztő elektromos teljesítményét, és kikapcsoltuk a gőzfejlesztő szivattyút. Utána elindítottuk az elárasztó szivattyút, ami az előzetesen a csapadékgyűjtő tartályba töltött vizet 28,75 g/s sebességgel a köteg aljába nyomta. Az elárasztás akkor ért véget, amikor a hőmérsékletek a hűtővíz hőmérsékletére csökkentek.

A kísérlet során a fűtőelemek belső nyomása a felmelegedés hatására a 850 °C-os hőmérséklet-tartományban számottevően megnőtt (32. ábra). A legmagasabb nyomást a 4-es számú (E110) rúdon értük el, értéke 14,8 bar volt. A többi rúdon ennél alacsonyabb nyomások alakultak ki. Valamennyi rúd megőrizte épségét, egyetlen burkolat sem hasadt fel a kísérlet során.

A hideg állapotban történt feltöltés után a 7-es számú (E110G) rúdon kismértékű szivárgást tapasztaltunk, így ennek a rúdnak a nyomása a hideg állapotban feltöltött 12 barról lecsökkent és a 850 °C-os szakaszban csak 4,7 bart ért el (32. ábra).

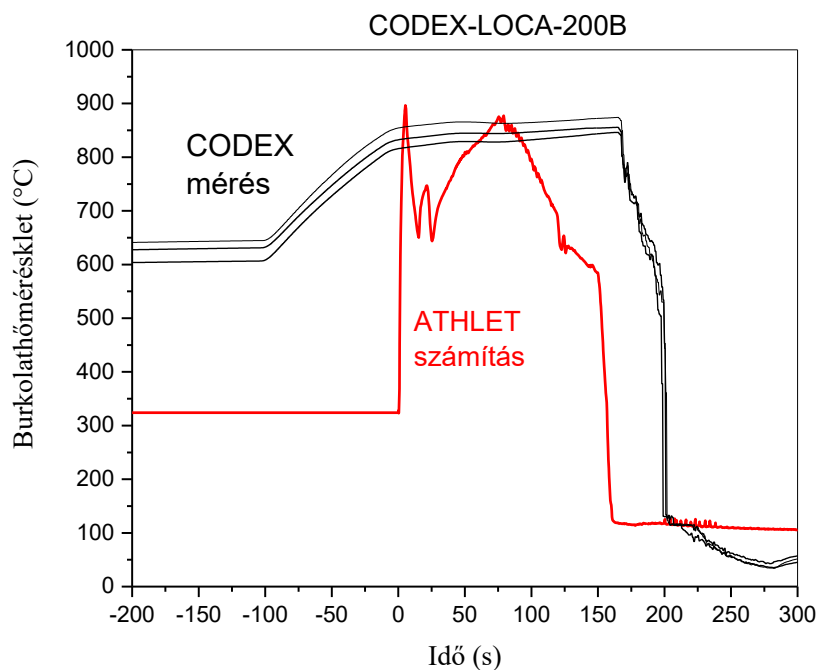


32. ábra: A nyomás változása a CODEX-LOCA-200B kísérlet során

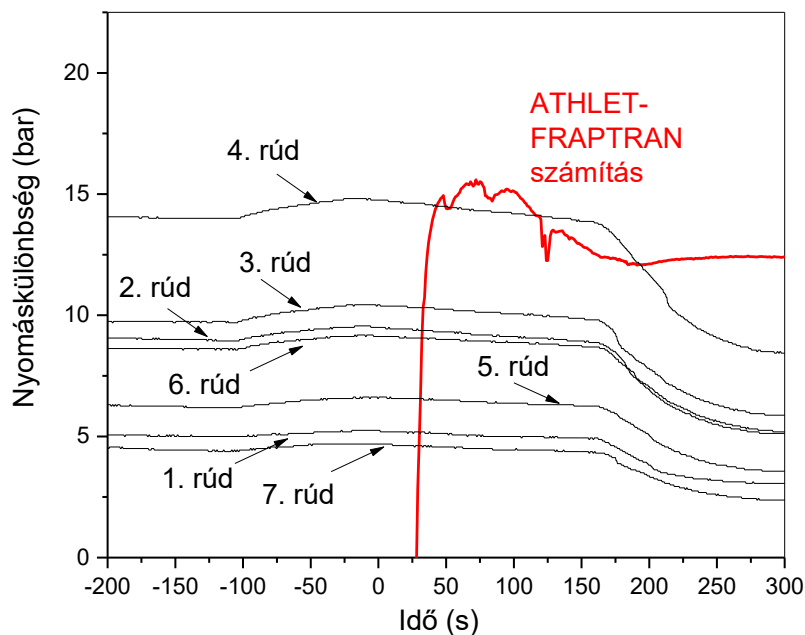
### 5.1.2.2 A CODEX-LOCA-200B kísérleti eredmények kiértékelése

A CODEX-LOCA-200B kísérlet során 874 °C maximum hőmérsékletet értünk el, ami valamivel kisebb, mint a referenciaszámításban szereplő maximum érték, de magasabb, mint a száraz állapotra jellemző átlagos burkolat-hőmérséklet. A magas hőmérsékletű száraz állapot a kísérletben kb. 40 másodperccel hosszabb volt, mint a referenciaszámításban (33. ábra).

A CODEX-LOCA-200B kísérlet során egyetlen fűtőelem sem hasadt fel és a cirkónium burkolat csak kismértékű oxidációt szenvedett (34. ábra).



33. ábra: A fűtőelem hőmérséklete 400 mm (C) és 500 mm (D) magasságban, valamint a referenciahőmérséklet történet (ATHLET)



34. ábra: A fűtőelemek belső túlnyomása, valamint a referencia nyomáskülönbség a CODEX-LOCA-200B kísérlet során (ATHLET-FRAPTRAN)

### 5.1.3 A CODEX-LOCA-E4 kísérlet

E kísérletnél a fő paramétereket úgy választottuk ki, hogy azok lefedjék a leállási (E4 üzemmódot) erőművi LOCA üzemzavarra végzett elemzések azon eredményeit, amelyek meghatározóak a fűtőelemek épsége szempontjából. A maximális burkolathőmérsékletet és az ott eltöltött időt az ATHLET számítások alapján tűztük ki. A kötegekben egy időben vizsgáltuk az E110 és az E110G burkolatok viselkedését.

#### 5.1.3.1 A CODEX-LOCA-E4 kísérlet végrehajtása

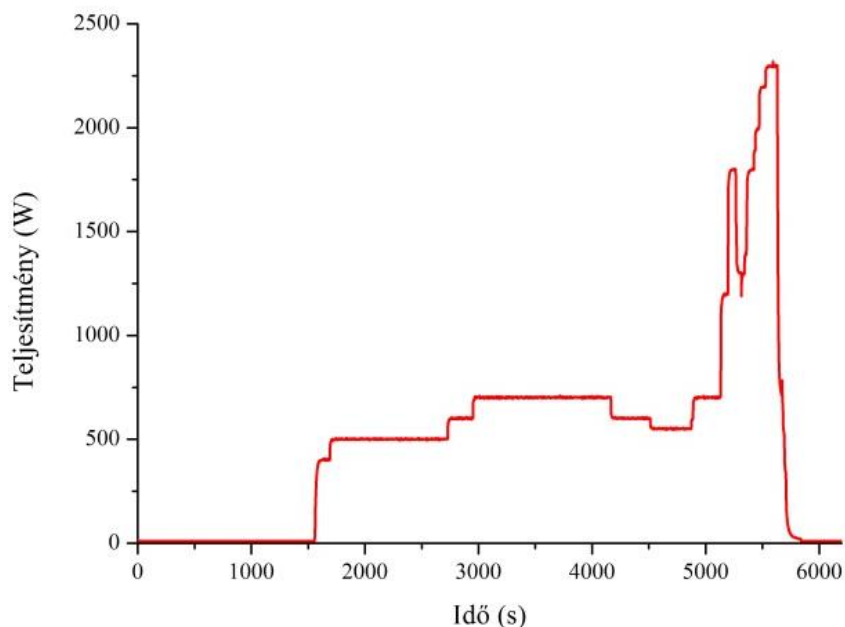
Hideg állapotban a rudakat Ar gázzal az alábbi nyomásokra töltöttük fel:

- 12 bar: 4-es (E110) és 7-es számú (E110G) rúd,
- 10 bar: 2-es (E110) és 5-ös számú (E110G) rúd,
- 8 bar: 6-os (E110) és 3-as számú (E110G) rúd,
- 6 bar: középső, 1-es számú (E110G) rúd.

A köteg elárasztására szolgáló szivattyú a csapadékgyűjtő tartályból üzemel, így azt a mérést megelőzően feltöltöttük 30 l ioncserélt vízzel.

A köteget argon áramban (40 l/h = 0,02 g/s), elektromos fűtéssel 600 °C-ra hevítettük fel. A köteg fűtésével egy időben elindítottuk a gőzfejlesztő fűtését is, hogy az

az üzemi hőmérsékletét elérje, és a gőzfejlesztés bármikor indítható legyen. Az argon gázt a gőzfejlesztőn keresztül juttattuk a mérőszakaszba. A köteg fűtőteljesítményét úgy választottuk meg, hogy lehetőleg lassan fűtsük fel a köteget 350-400 °C-ra, minimálisra csökkentve ezzel a hő- és mechanikai stressz mértékét. A jellemző villamos teljesítmény 500 W volt (35. ábra). A ráadott teljesítménynél jó látszott, hogy az 5-ös számú rúd fűtése zárlatos lett. Később kiderült, hogy a fűtőszál alsó kivezetésénél jött létre rövidzárlat a volfrám szál vékony kerámia szigetelésén keresztül (a többi fűtőszálon vastagabb szigetelés volt). Mivel a köteg többi pálcája hősugárzás révén úgy is felmelegítette a fűtetlen pálcát, hogy azon nem volt teljesítmény, a kísérletet ezzel a fűtési konfigurációval hajtottuk végre.

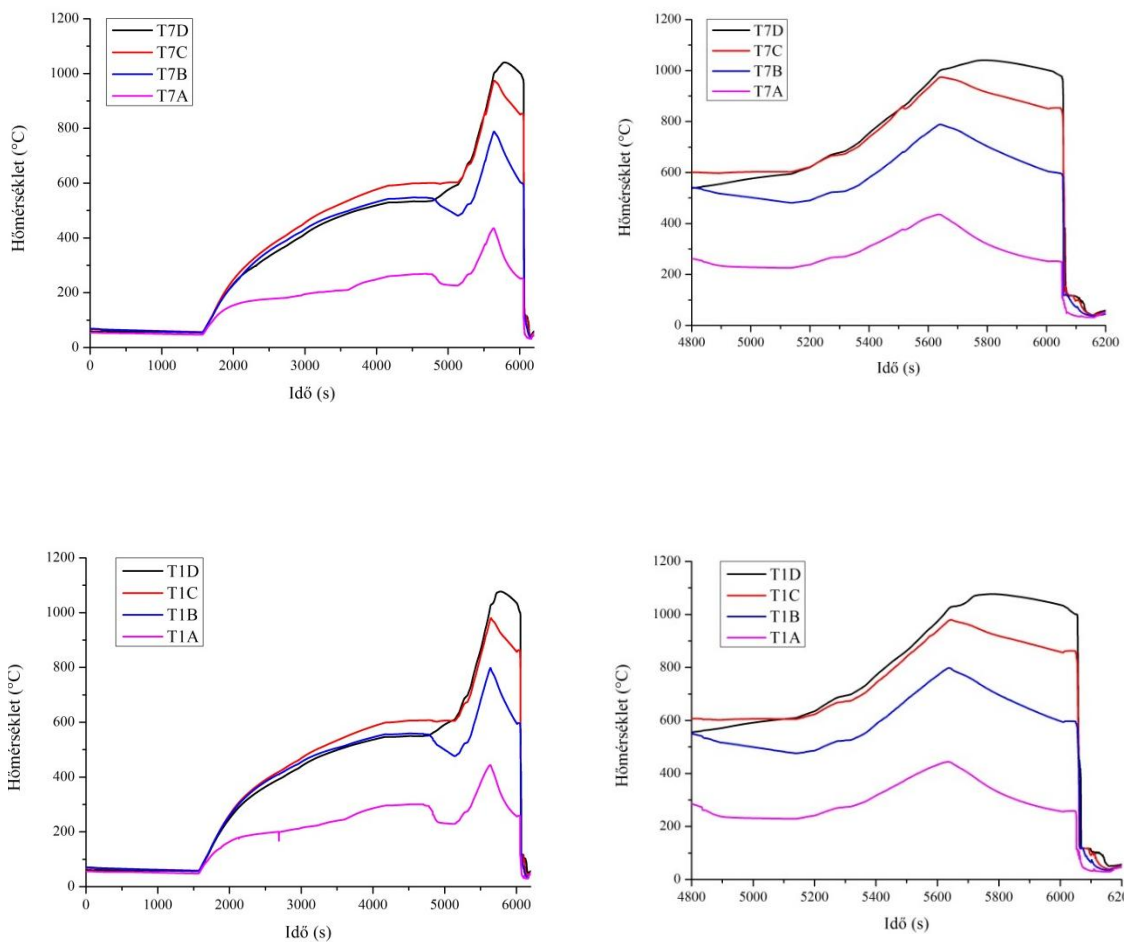


35. ábra: A kötegre adott teljesítmény változása a CODEX-LOCA-E4 kísérlet során

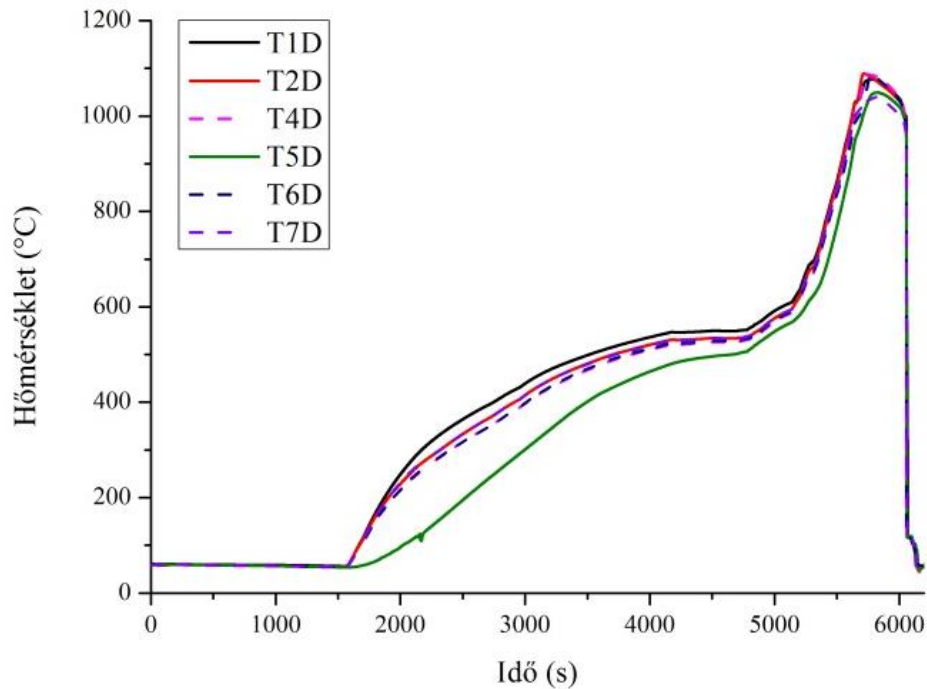
A következő szakaszban a köteg hőmérsékletét felemeltük a tervezett 600 °C-ra, és ott tartottuk mindaddig, amíg a mérőszakasz termikus egyensúlyi állapotba nem került. Ekkor a fűtőteljesítmény 700 W érték körül volt. A köteg felső része a B (250 mm), C (400 mm) és D (500 mm) szinteken 500-600 °C között volt, míg az A (50 mm) szinten a burkolat hőmérséklete nem sokkal haladta meg a 200 °C-ot. Ezen állapot elérése után elindítottuk a gőzbetáplálást (0,78 g/s), és ismét megvártuk a mérőszakasz termikus egyensúlyi állapotának beállítását a tranziens szakasz indítása előtt. A gőz megjelenése maga után vonta a köteg – már kialakult egyensúlyi hőmérsékletű – alsó részének az átmeneti lehűlését. Ez a jelenség jól látható a 36. ábra A (50 mm) és B (250 mm) szinteken mért görbéin 4800 s után.

A további felfűtéshez tervezett 1200 W teljesítményről gyorsan kiderült, hogy nem valósítható meg vele a tervezett felfűtési sebesség, ezért a teljesítményt megnöveltük.

Az 1000 °C-os maximum hőmérsékletet a tervezett ütemhez közel (380 s helyett 500 s alatt) sikerült elérni (36. ábra). A felhevült köteg fűtését a következő szakaszban vissza kellett venni, hogy elkerüljük a további felmelegedést. A fűtés kikapcsolása után az A (50 mm), B (250 mm) és C (400 mm) szinteken csökkentek a hőmérsékletek, míg a D szinten (500 mm) további emelkedés volt megfigyelhető. Ezt a felmelegedést egyértelműen a cirkónium-vízgőz reakció beindulása okozta. A legmagasabb hőmérséklet 1089 °C volt, amit a 4-es rúd D szintjén (400 mm) mértünk (37. ábra). A fűtés nélkül maradt 5-ös pálca hőmérséklete ebben a magasságban 1048 °C-ot ért el. A köteg alsó részében 400 °C körül voltak a maximum burkolat-hőmérsékletek.



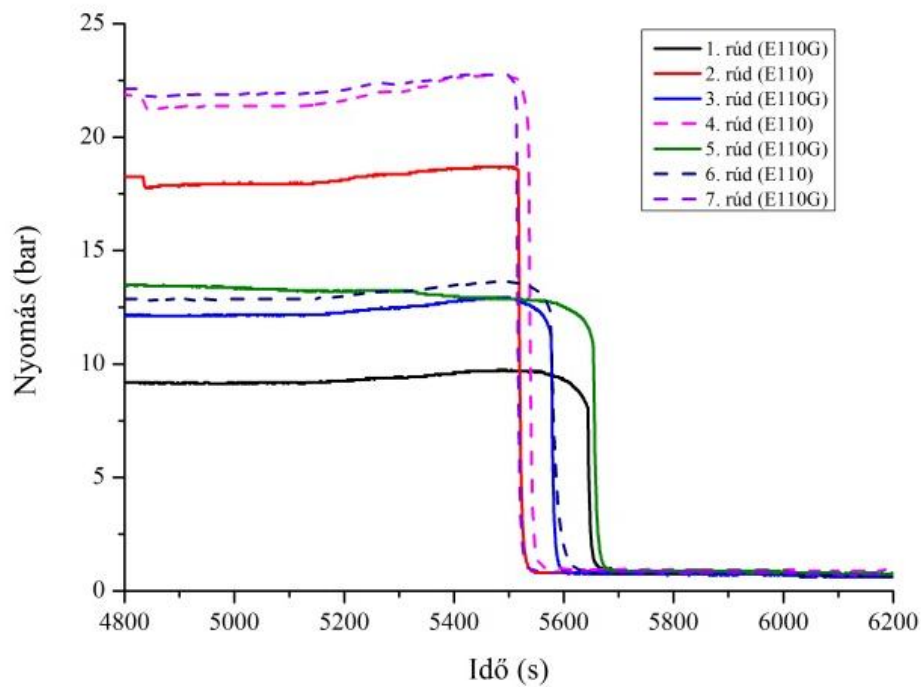
36. ábra: A hőmérséklet változása a CODEX-LOCA-E4 kísérlet során a 7-es és 1-es (középső) számú rudak felületén az A (50 mm), B (250 mm), C (400 mm) és D (500 mm) szinteken



37. ábra: A hőmérséklet változása a hét fűtőelem legmelegebb pontján (D szint) a CODEX-LOCA-E4 kísérlet során

A mérés utolsó szakaszában elárasztottuk a köteget. Lekapcsoltuk a gőzfejlesztő elektromos teljesítményét, és kikapcsoltuk a gőzfejlesztő szivattyút is. Elzártuk a gőzszelepet, és a köteg aljában esetlegesen összegyűlt kondenzátumot a csapadéktartályba visszavezető ág csapját. Utána elindítottuk az elárasztó szivattyút, ami az előzetesen a csapadékgyűjtő tartályba töltött vizet 28,75 g/s sebességgel a köteg aljába nyomta. Az elárasztás akkor ért véget, amikor a hőmérsékletek a hűtővíz hőmérsékletére csökkentek.

A kísérlet során a fűtőelemek belső nyomása a felmelegedés hatására jelentősen megnőtt (38. ábra és 8. táblázat). A 12 és 10 baros nyomással rendelkező 7-es (E110G) és 2-es (E110) rudak 21,3 és 18,5 bar nyomáson hasadtak fel elsőként. A burkolat felhasadása a többi rúdnál valamivel később következett be. Az azonos kezdeti nyomásra töltött E110 és E110G rudak felhasadása nagyon hasonló nyomásnál, közel azonos időpontban történt. Ez alól kivételt jelent a fűtés nélkül maradt 5-ös számú rúd, amelyben a nyomásnövekedés más dinamika szerint játszódott le, mint a párhuzamos 2-es rúdban, és a felhasadás is két perccel később történt.



38. ábra: A nyomás változása a CODEX-LOCA-E4 kísérlet során

A maximális nyomások elérése után a fűtőelemek belső nyomása kismértékben csökkent a felhasadásig. Ennek az a magyarázata, hogy a felfúvódás hatására megnőtt a belső térfogat, és így csökkent a nyomás.

A burkolat hőmérséklete a felhasadás pillanatában 845 °C fölött volt mind a hét rúd esetében. Az 8. táblázatban megadott hőmérsékletek a C (400 mm) és D (500 mm) szintekre vonatkoznak, a felhasadás a két szint között következett be valamennyi rúdnál.

8. táblázat: A fűtőelemek felhasadásának jellemző körülményei

Rúd száma	Burkolat anyaga	Kezdeti töltőnyomás (bar)	Max. nyomás (bar)	Nyomás a felhasadás pillanatában (bar)	A felhasadás időpontja (s)	Hőmérséklet a felhasadás pillanatában (°C)
4	E110	12	22,7	20,5	5535	845-856
7	E110G	12	22,7	21,3	5514	858-860
2	E110	10	18,7	18,5	5517	872-873
5	E110G	10	13,7	10,7	5653	906-957
6	E110	8	13,6	11,5	5577	879-906
3	E110G	8	12,9	11,3	5576	894
1	E110G	6	9,7	8,1	5644	980-1028

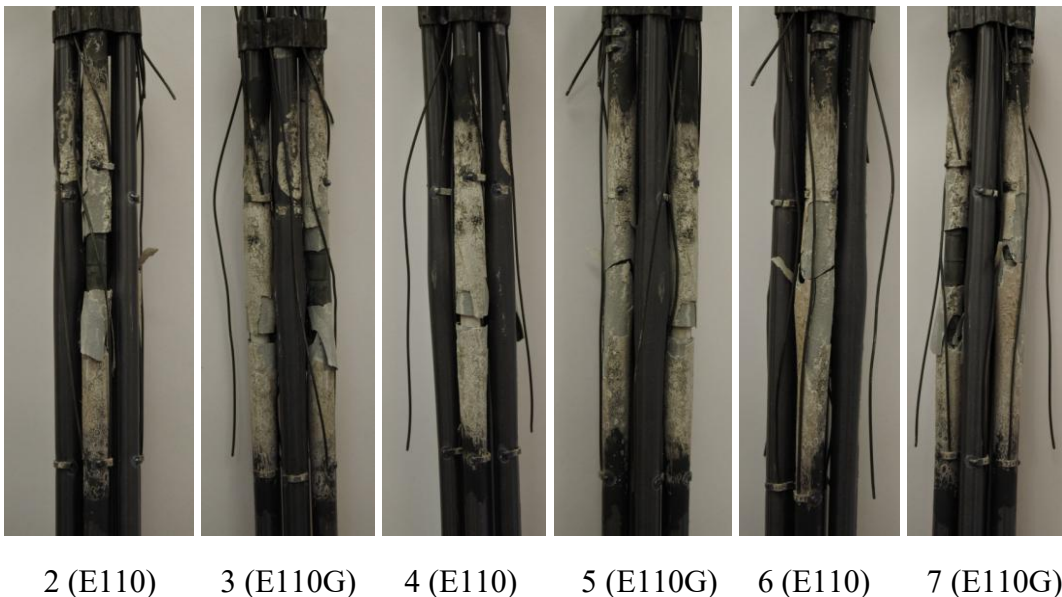
### 5.1.3.2 CODEX-LOCA-E4 kísérleti eredmények kiértékelése

A kísérlet után azt tapasztaltuk, hogy a lehűlt köteg beszorult a kazettafalba és nem lehetett egyszerűen, kézi erővel szétszerelni. Ennek az lehetett az oka, hogy a felfúvódott rudak és a kazettafal között olyan feszültségek jöttek létre, amelyek akadályozták a köteg eltávolítását a kazettafalból. A köteg eltávolításához egy emelőt vettünk igényben, amellyel lépésről lépésre sikerült a kötegről felfelé lehúzni a hatszögletű kazettafalat.

A kazettafal eltávolítása során jól látható volt, hogy a köteg alsó része megőrizte az eredeti geometriai elrendezést. A burkolat felfúvódása 400-500 mm (C és D szint) között jött létre. A pálcák deformációja olyan mértékű volt, hogy a rudak egymáshoz értek, és érintkeztek a kazettafallal is. A kazettafal nem szenvedett deformációt, és a belső felületén sem volt megfigyelhető számottevő oxidréteg.

A kazettafal axiális mozgása során a felfúvódott és részben eloxidálódott E110 burkolatok a mechanikai terhelés hatására eltörtek és függőlegesen elmozdultak.

A köteg legalsó része nem oxidálódott, megmaradt a felület eredeti fémes jellege. A felfűtött fűtőelemrudakon 5 cm (A szint) magasságban kezdődtek olyan elszíneződések, amelyek kismértékű oxidációra utaltak. A fűtés nélkül maradt, zárlatos 5-ös számú rúdon ezek az elszíneződések kb. 5 cm-rel feljebb kezdődtek meg, aminek az volt az oka, hogy a rúd hőmérséklete ebben a magasságban jelentősen elmaradt a köteg többi fűtőelemének hőmérsékletétől.

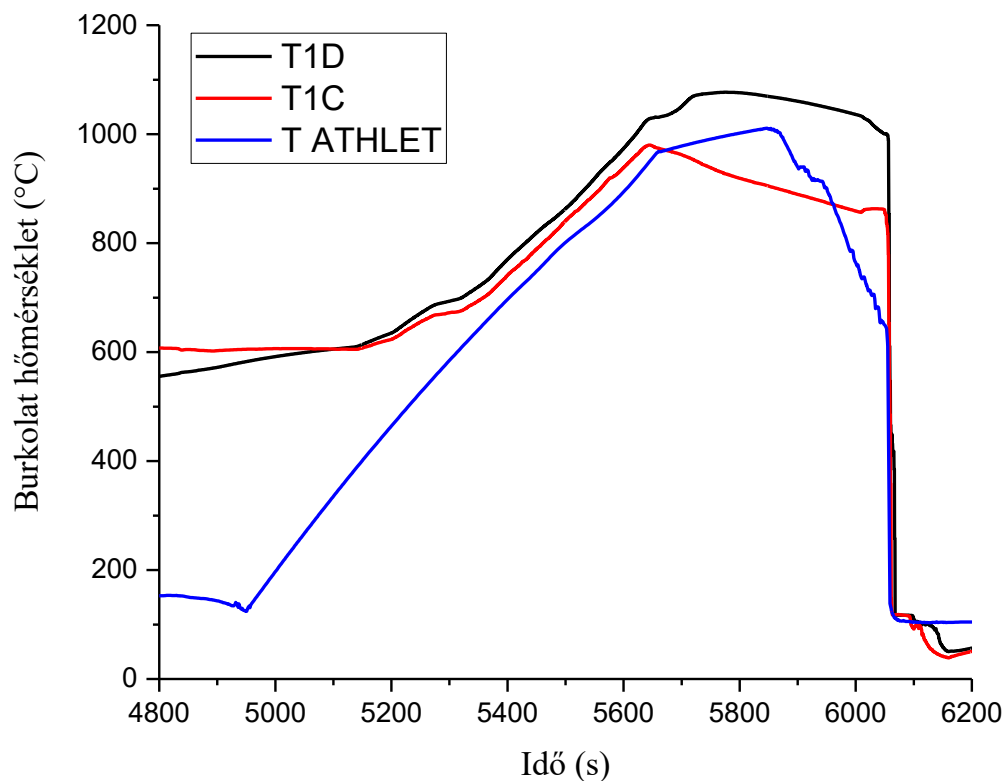


39. ábra: A köteg felső részéről készített felvételek, az ábrák alatt a közepen látható rúd sorszámát és anyagát tüntettük fel

A köteg felső részén jelentős eltérést tapasztaltunk az E110 és az E110G pálcák állapota között (39. ábra):

- valamennyi pálca felfűvódott és felhasadt a magas hőmérsékletű kísérletben a 400-500 mm (C és D szint) közötti szakaszon,
- az E110G burkolatokon sötét oxidréteg jött létre, míg az E110 csöveken fehér, leváló oxidréteg volt megfigyelhető,
- a mozgató hatására mind a három E110 burkolat eltört, míg az E110G csövek kibírták az axiális terhelést sérülés nélkül,
- az E110 csövek közül kettőnél a törés feletti rész el is mozdult felfelé a kazettafal eltávolítása során.

A mérésben elért maximális burkolat-hőmérséklet meghaladta az ATHLET számítások alapján megadott referencia értékeket, és a magas hőmérsékletű szakasz is hosszabb ideig tartott a kísérletben. A felmelegedés üteme a 600-1000 °C közötti tartományban jól egyezett a számított értékkel (40. ábra).



40. ábra: A fűtőelem hőmérséklete 400 mm (C) és 500 mm (D) magasságban, valamint a referenciahőmérséklet-történet (ATHLET)

A kísérlet során valamennyi fűtőelem burkolata felhasadt, ami összhangban volt az E4 LOCA állapotra végzett fűtőelemes elemzések eredményeivel és a korábbi kisléptékű kísérleteinkkel is.

A felhasadással együtt a burkolat jelentősen deformálódott, a felfúvódott szakasz jelentős mértékben elzárta a köteg felső részét. A köteg szétszerelése után látható volt, hogy a legmelegebb szakaszon (400-500 mm magasságban) jött létre a felfúvódás, és itt a cirkónium-ötvözet oxidációja is jelentős volt.

Az E110 és E110G rudak között nem tapasztaltunk eltérést a burkolatok felhasadásáig. Ugyanakkor a felhasadást követő oxidáció mértéke és következményei nagyon különbözőek voltak. Az E110 csöveken fehér, felhasadó oxidréteg alakult ki, a burkolat elridegedett, és a köteg szétszerelése során mind a három burkolat el is tört. Az E110G burkolaton jellemzően fekete oxidréteg jött létre, az oxidáció kisebb mértékű volt, és a burkolat nem tört el a szétszerelés és az azt követő műveletek során.

A két ötvözet közötti különbségeket elsősorban az oxidréteg felhasadása indokolja. A HUN-REN EK korábbi mérései [28] jelezték, hogy 950 °C-on az E110 burkolaton 320-330 s után kezdődik meg az oxidréteg leválása. A CODEX-LOCA-E4 mérésben ezt az időtartamot meghaladtuk, tehát a kötegben megfigyelt oxidréteg felhasadás összhangban van a kisléptékű mérések eredményeivel.

A CODEX-LOCA-E4 kísérlet ismét felhívta a figyelmet arra, hogy az E110 burkolat esetében a magas hőmérsékletű vízgőzös oxidáció sokkal gyorsabban elvezethet a fűtőelemek sérüléséhez, mint az E110G ötvözetből készült burkolatoknál [S1].

#### **5.1.4 CODEX-LOCA kísérletek összefoglalása**

Sikeres méréseket hajtottunk végre E110 és E110G fűtőelem-burkolatokból készített, elektromosan fűtött köteggel a CODEX berendezésen. A kísérletek fő paramétereit úgy választottuk ki, hogy lefedjék a 200%-os erőművi LOCA üzemzavarra végzett elemzések azon eredményeit, amelyek meghatározóak a fűtőelemek épsége szempontjából. A paraméterek konzervatív megválasztásával lehetőség nyílt arra is, hogy értékeljük a fűtőelemek viselkedését az elemzésekben megjelent állapotokat meghaladó terheléseknél is.

- Az erőművi esethez képest fontos különbség, hogy a 900 °C-os hőmérsékleten a CODEX-LOCA-200 köteg három percet töltött, míg az erőművi elemzés szerint

kétszer – ennél sokkal rövidebb időre – közelítette meg a burkolat hőmérséklete a 900 °C-ot és a három perces átlagos maximum hőmérséklet kb. 700 °C-ra becsülhető.

- A felhasadt rudak belső nyomása 17-20 bart ért el a tranziens során, ami valamelyest meghaladta az elemzésekben a kiszáradási időszakra jellemző 13-17 baros értéket.

Ugyanakkor az a tény, hogy a hét vizsgált pálcából három felhasadt, jelzi, hogy az erőművi eset sincs nagyon messze a burkolat felhasadásától. Az E110 és E110G burkolatok eltérő mértékű deformációja elsősorban azzal magyarázható, hogy a kísérletekben használt E110G csövek falvastagsága vékonyabb volt, mint az E110 ötvözeté.

Az E110 és E110G anyagú pálcák között a CODEX-LOCA-200 kísérletben tapasztalt deformációkülönbség csak az adott szállítmányokra, azaz a mérésekben konkrétan felhasznált anyagokra vonatkoztatható. A két ötvözet viselkedése között nem várható érdemi különbség a 200%-os LOCA tervezési üzemzavar során. A kisléptékű mérésekben megfigyelt különbség – az E110 burkolat fokozott elridegedése az E110G ötvözethez képest – csak jóval hosszabb oxidációs időknél, azaz tervezési alapon túli LOCA üzemzavaroknál képzelhető el.

A CODEX-LOCA-200 és a CODEX-LOCA-200B kísérletek jól mutatták, hogy a fűtőelemek felhasadása meglehetősen szűk nyomás-, hőmérséklet- és időtartományokban következhet be. A tervezési LOCA üzemzavar jellemző körülményei között a felhasadás nem jön létre, de a tartalékok (fűtőelem belső nyomás és burkolat-hőmérséklet tekintetében) szerények.

A CODEX-LOCA-E4 kísérletben az E110 és E110G rudak viselkedése a burkolat felhasadásáig nem mutatott számottevő eltérést. A felhasadást követően azonban az oxidáció mértéke és annak következményei jelentős különbségeket mutattak. Az E110 burkolatú csöveken fehér, felhasadó oxidréteg alakult ki, amely a burkolat jelentős elridegedésével járt. Ennek következtében a köteg szétszerelése során mindhárom burkolat el is tört. Ezzel szemben az E110G burkolaton jellemzően fekete oxidréteg képződött, az oxidáció mértéke kisebb volt, és a burkolat a szétszerelés, illetve az azt követő műveletek során nem tört el. A két ötvözet közötti különbségeket elsősorban az oxidréteg felhasadása indokolja.

Nemzetközi összehasonlításban a CODEX-LOCA mérések abból a szempontból fontosak, hogy segítettek meghatározni a fűtőelemek felhasadásának küszöbét a belső nyomás és a hőmérséklet függvényében [S1].

## 5.2 A CODEX-AIT-3 kísérlet

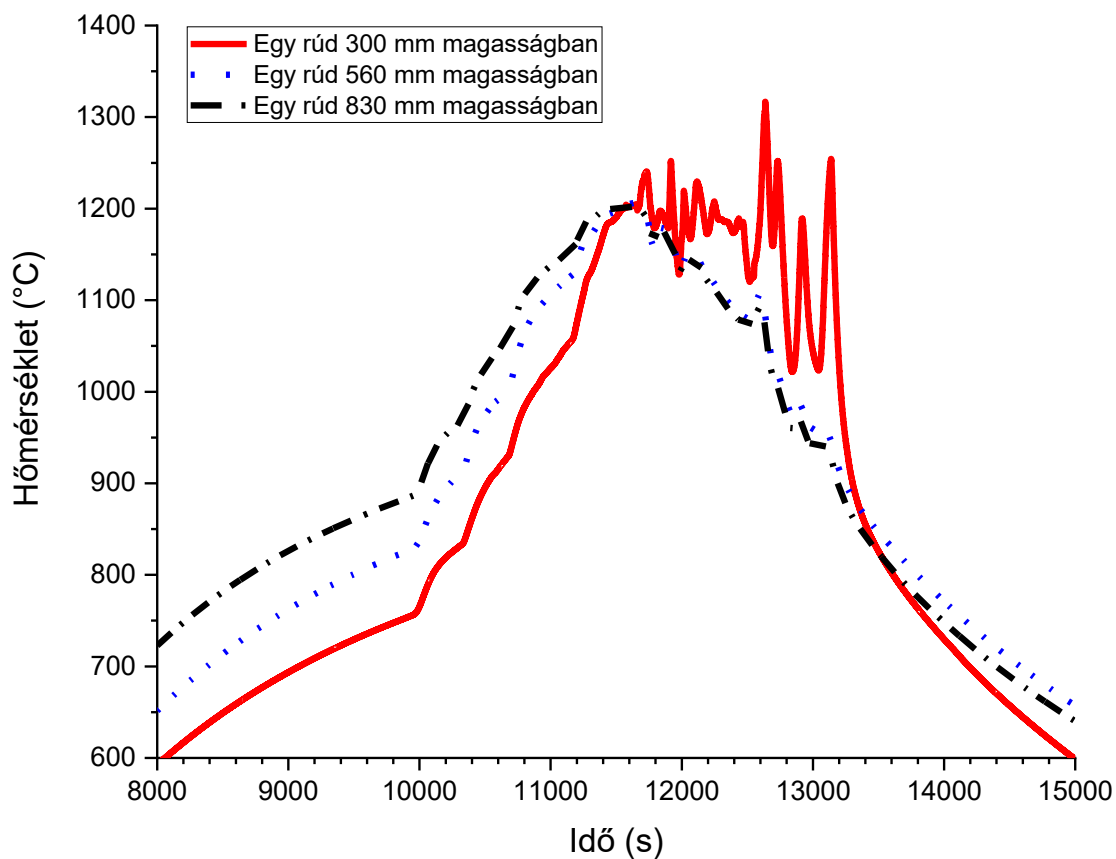
Az EU SAFEST projekt keretében egy különleges légbetöréses kísérletre (Air Ingress Test) került sor a CODEX berendezésen [S3].

Az EU SAFEST programban résztvevő intézetek megállapodtak abban, hogy a referencia-forgatókönyv egy reaktorbaleset lesz, amelynek során az olvadék áthatol az alsó keverőtéren keresztül a tartály fenekén, és a levegő+gőz keverék az aknából behatol a reaktortartályba. A kísérlet végén a köteg lehűtésére a lassú, argon gázárammal való lehűtést választották (nem a gyors hidegvizes elárasztást) azért, hogy információt szolgáltatassanak a köteg állapotáról. A vizsgálati feltételek meghatározását a SAFEST-partnerek (GRS, IBRAE, NUBIKI és PSI) által végzett előzetes számítások támasztották alá.

A CODEX-AIT-3 kísérlet vizsgálati kötege egy hét rúdból álló (4. táblázat), E110G ötvözetből álló, a VVER üzemanyagot szimuláló köteg volt, míg a régebbi, a CODEX-AIT-1 és CODEX-AIT-2 kísérletekben kilenc rúdból álló PWR típusú köteget használtak. A CODEX-AIT-1 és a CODEX-AIT-2 kísérletekben a fűtőelemek belsejében  $\text{UO}_2$ -ből készült tabletták helyezkedtek el, a CODEX-AIT-3 kísérletben azonban cirkónium-dioxid tablettákat használtunk. A vizsgálat céljai teljesen eltérőek voltak. A CODEX-AIT-1 és CODEX-AIT-2 vizsgálatokban az  $\text{UO}_2$  oxidációja és a levegőben történő hőmérséklet-megszaladás állt a vizsgálat középpontjában. A CODEX-AIT-3 kísérlet a levegő és a cirkónium közötti kémiai reakciók megismerésére összpontosított, beleértve az oxigénhiányos állapotot is (gőzhiányos állapot).

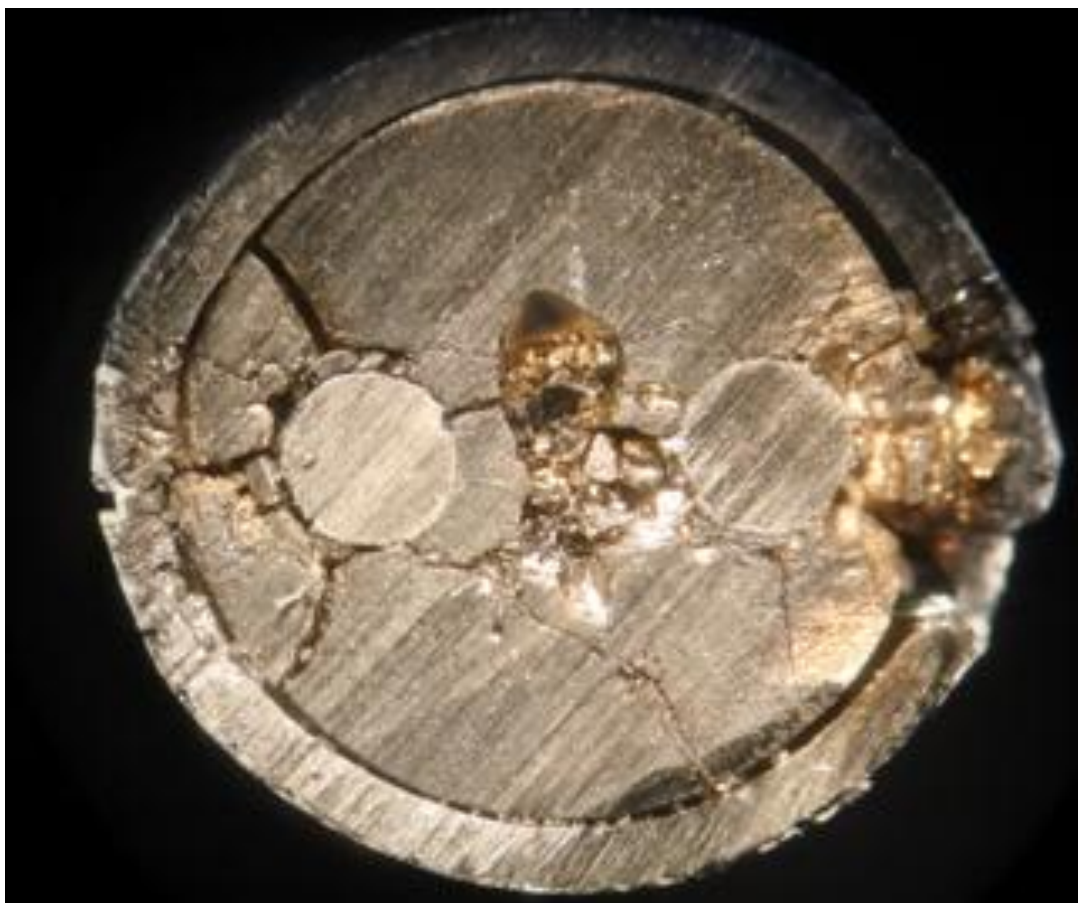
### 5.2.1 Egy rúddal végzett vizsgálat

A kísérlet előtt próbakísérletet végeztünk olyan köteggel, amely csak egy E110G anyagú rúdból állt. Erre azért volt szükség, hogy megbizonyosodjunk arról, hogy a berendezésen egyáltalán végezhető-e nagyon magas hőmérsékletű kísérlet. A kísérlet során a hőmérséklet meghaladta az  $1000\text{ °C}$ -ot (41. ábra), és a hőviszonyok több mint egy órán keresztül tarthatók voltak. A teszt kiértékelése során a pálca alsó részén degradációt figyeltünk meg. Az volt a gyanú, hogy eutektikum képződött a nem oxidált burkolatfelület és a K típusú termoelem között.



41. ábra: Burkolat-hőmérsékletek az egy rúddal végzett kísérlet során

A második, szintén E110G anyagú egy rúddal végzett vizsgálat során ismét degradációt tapasztaltunk a rúd alsó részén. A használt termoelem ezúttal szigetelt volt, így az eutektikus kölcsönhatás nem lehetett az ok a tönkremenetelre. Arra a következtetésre jutottunk, hogy a nagyfeszültségű (30 V) váltakozó áram részleges rövidzárlatot okozhatott a rúd alsó részén, és ez vezethetett a 42. ábrán látható degradációhoz. A használt kétvezetékes fűtési típus megoldása az egyenáram használata volt, amely során azonos teljesítmény eléréséhez alacsonyabb feszültségre van szükség, mint a váltakozó áram esetében. Így elkerülhető, hogy rövidzár alakuljon ki a fűtőszál és a burkolat között. Emiatt a CODEX tápellátó rendszert átterveztük és átépítettük. A CODEX-AIT-3 kísérletben és az ezek után elvégzett kísérletek mindegyikénél egyenáramú energiaforrást alkalmaztunk.

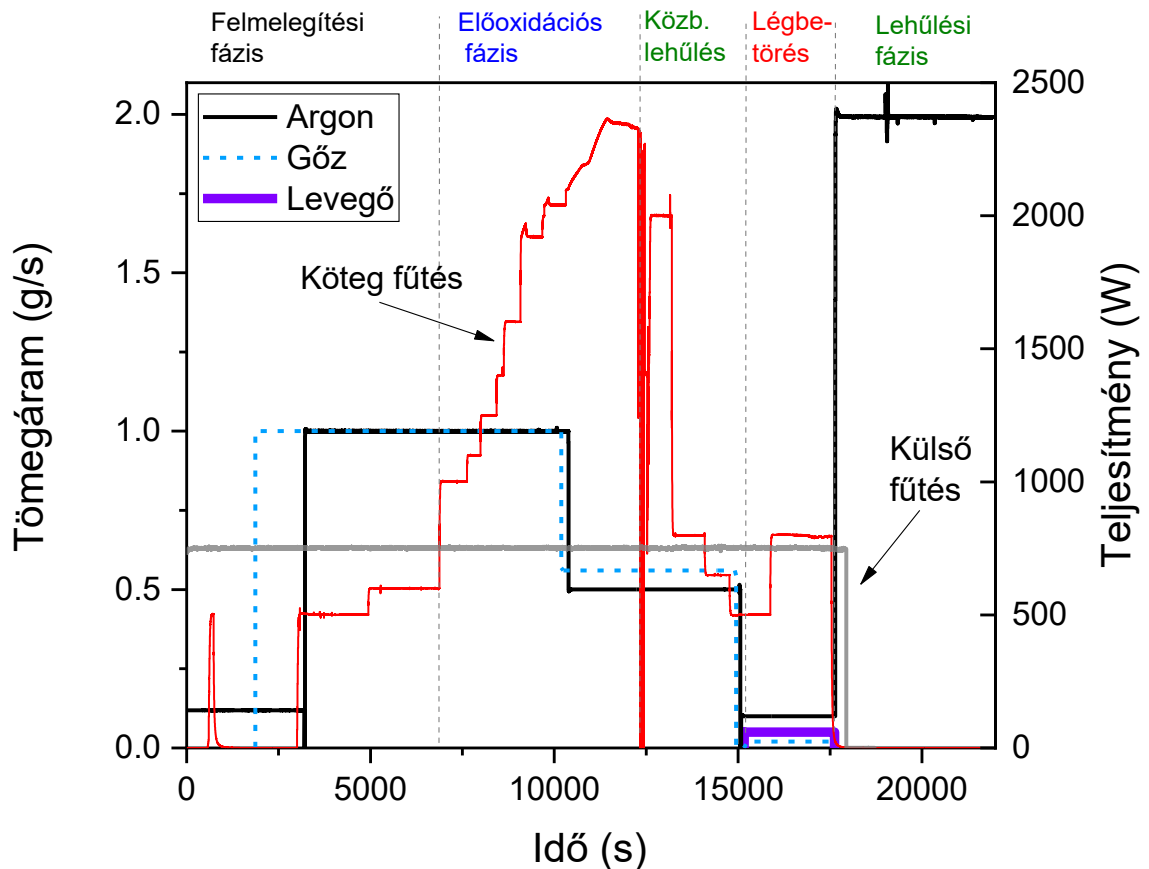


42. ábra: Keresztmetszeti kép a második egyrudas kísérlet során degradálódott alsó részről

### 5.2.2 A CODEX-AIT-3 kísérlet végrehajtása

#### Felmelegítési fázis

A technológiai felfűtési fázis a 750 W-os teljesítményű külső fűtőberendezés bekapcsolásával kezdődött. A kazettafal és a rozsdamentes acélcső közötti térben az argon áramlási sebességét 0,15 g/s-ra állítottuk be. Az argon- és gőzarámlást a hét E110G ötvözetű rúdból álló (4. táblázat) kötegen keresztül 0,12 g/s, illetve 1,0 g/s áramlási sebességgel indítottuk el. A vízűtő rendszert üzembe helyeztük; a köteg teljesítményét 500 W-ra, majd később 600 W-ra állítottuk be. A kötegben található pálcák közül a külső rudakban helyeztünk el fűtőszálakat. A középső pálca szintén tartalmazott tablettákat, de a fűtőszálak helyén két hőmérőt helyeztünk el. Így tudtuk mérni a kísérlet alatt a középső pálca belső hőmérsékletét. Eközben az argon áramlási sebességét (a kötegen keresztül) 0,12 g/s-ról 1,0 g/s-ra állítottuk be (43. ábra). Az 1. számú rúdon nyomáspróbát végeztünk, a maximális érték elérte a 33,7 bart.

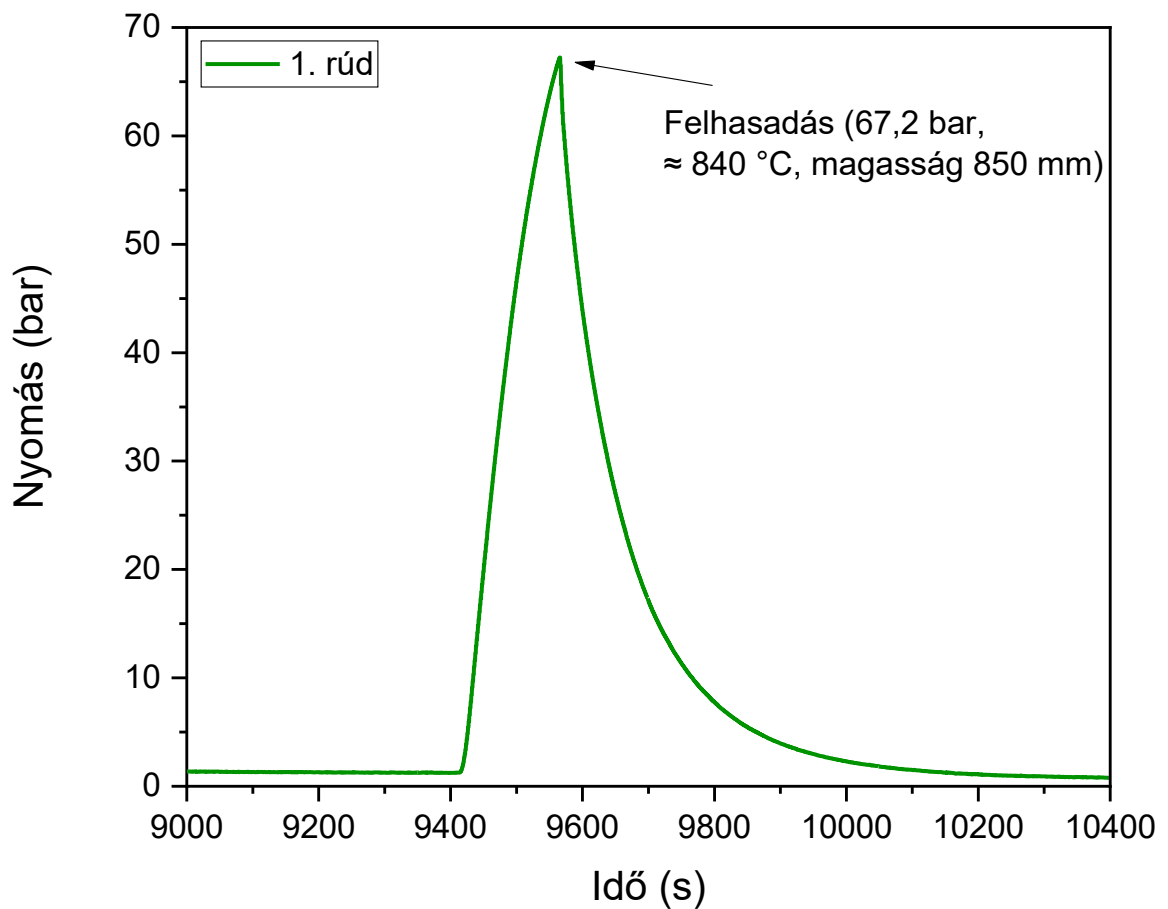


43. ábra: Teljesítmény, gőz- és gázáramlási sebesség történet a CODEX-AIT-3 teszt során

### Előoxidációs fázis

Az előoxidációs fázis 6800 s után kezdődött. A köteg teljesítményét fokozatosan növeltük 1920 W-ig. A teljesítmény növelése a köteg jelentős felmelegedését eredményezte. Amikor a hőmérséklet 850 mm-es magasságban kb. 840 °C volt (9400 s), a központi rúd nyomás alá került, és 67,2 bar nyomáson felhasadt (44. ábra). Mind a gőz, mind az argon áramlási sebességét 1,0 g/s-ról 0,5 g/s-ra csökkentettük 10000 s után, hogy nagyobb hőmérséklet-növekedést érjünk el a kötegnél (43. ábra). Az elért maximális hőmérséklet 750 mm-es magasságban 1150 °C volt, 12300 s-nál. Annak érdekében, hogy ebben a fázisban elkerüljük a túl nagyfokú oxidációt, a magas hőmérsékleti platót 15 percig fenntartottuk a köteg teljesítményének manipulálásával. A köteg maximális elektromos teljesítménye 2500 W volt. Az előoxidációs fázis végén a pálcák maximális hőmérséklete 1160 °C volt, míg a kazettafal 1135 °C-ra melegedett, és a rozsdamentes acélcső hőmérséklete 750 °C fölé emelkedett. Az előoxidációs fázis során a tengelyirányú hőmérsékleti profilok a köteg tetején voltak maximálisak. Az előoxidációs fázisban mért

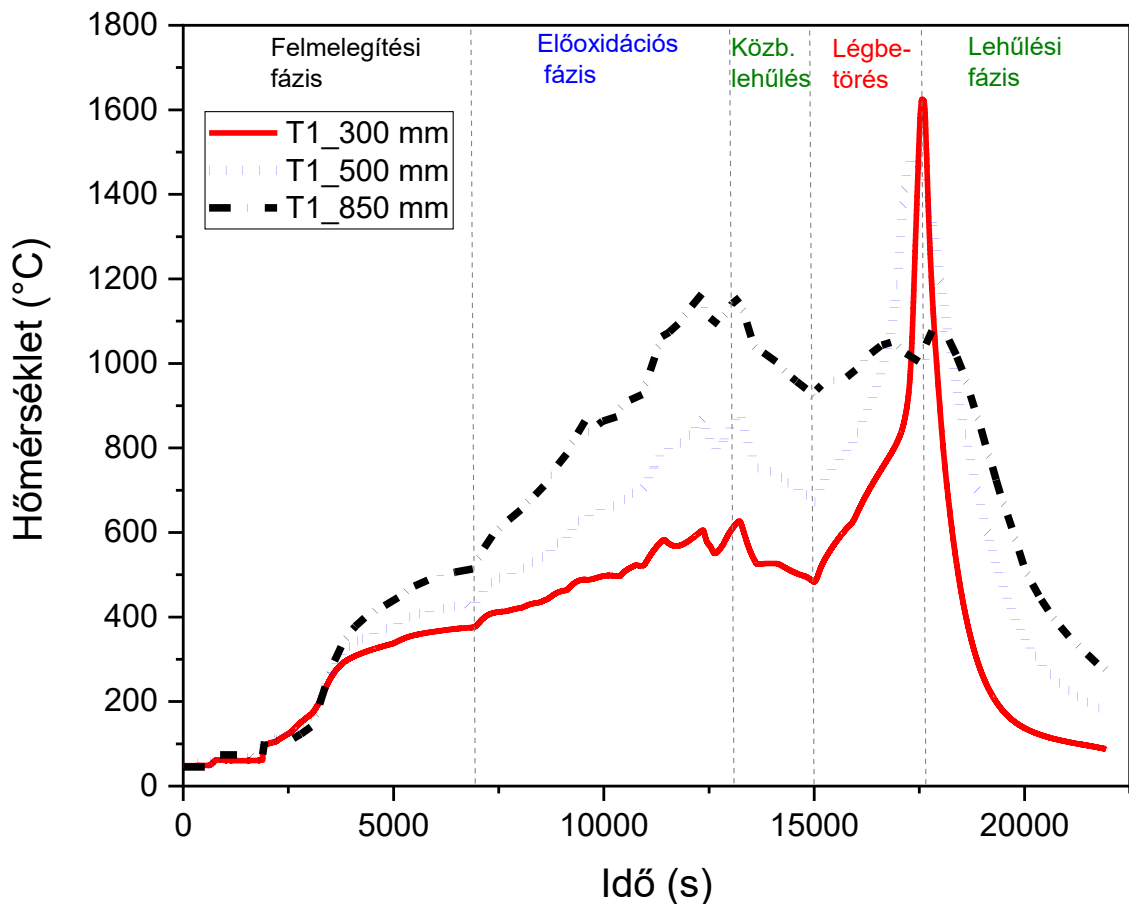
teljes hidrogén fejlődése kb. 3,8 g volt. A hidrogéntermelésre vonatkozó adatok jó összhangban voltak a rudak mért hőmérsékleteivel.



44. ábra: Belső nyomásértékek a nem fűtött középső rúdban

### Közbenső lehülési fázis

13000 s után teljesítmény-csökkentéssel és a gőzfejlesztő kikapcsolásával közbenső lehülési fázis indult. A maximális rúdhőmérséklet 925 °C-ra csökkent (45. ábra). A köteg átmeneti lehütésének az volt a célja, hogy a légbetöréses fázis ne túl magas hőmérsékleten induljon. Ez lehetővé tette, hogy a levegős oxidációs jelenségeket alacsonyabb hőmérsékleten is követni tudjuk a következő fázisban.

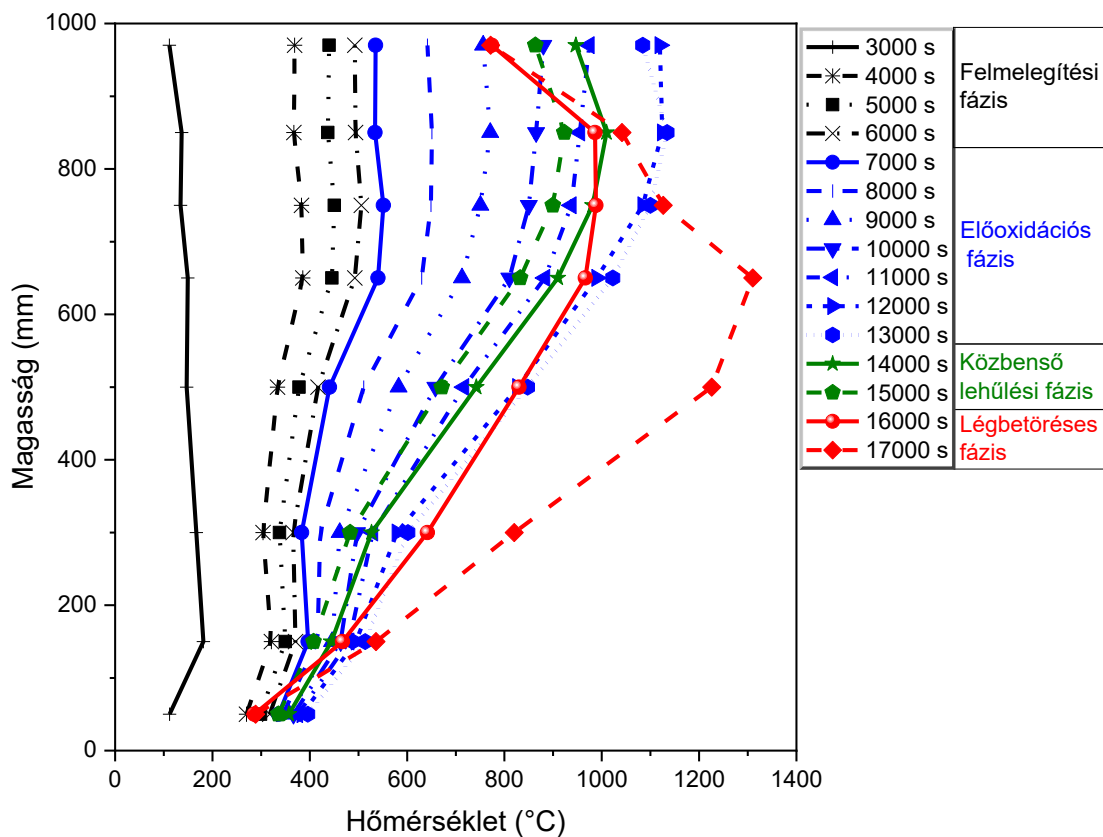


45. ábra: A közepső rúd burkolatának hőmérséklete különböző magasságokban

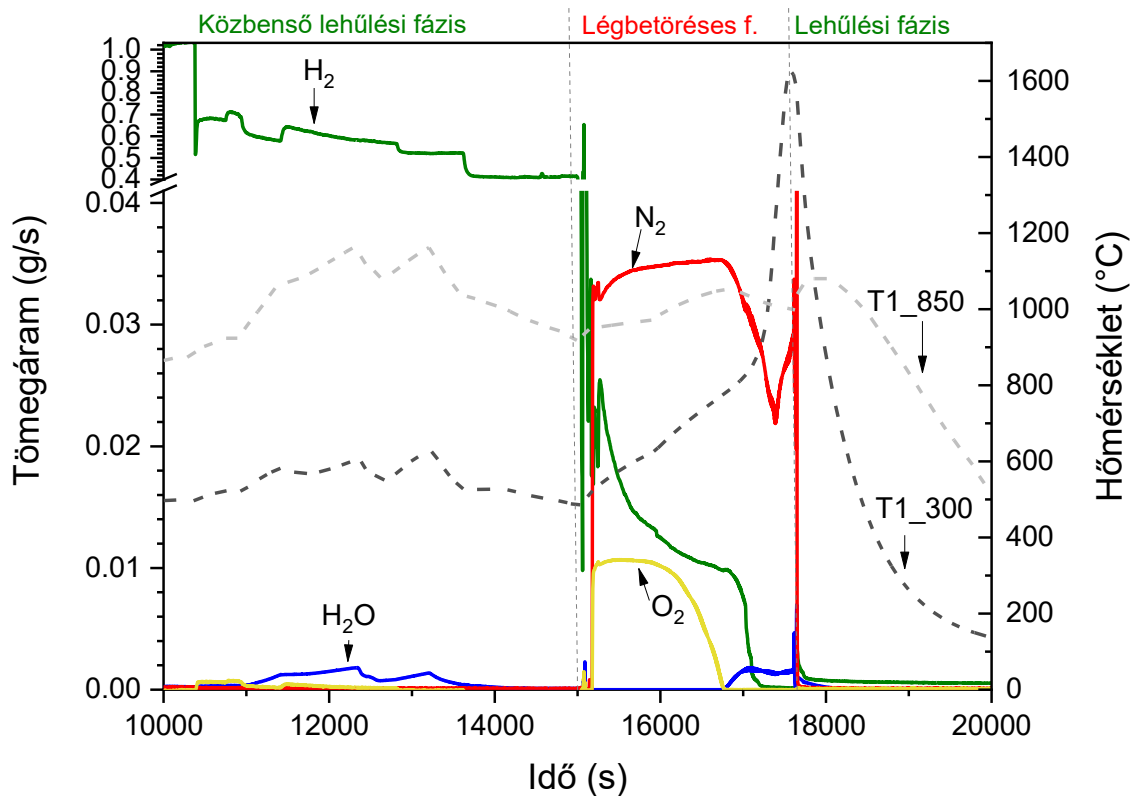
### Légbetöréses fázis

A légbetöréses fázis 15000 s után kezdődött. Az argon áramlási sebességét 0,5 g/s-ról 0,1 g/s-ra csökkentettük, és a levegő áramlását 0,05 g/s áramlási sebességgel indítottuk el (43. ábra). A köteg aljára 0,02 g/s-os vízáramot indítottunk el, amelyet egy precíziós kis szivattyú szolgáltatott. A köteg teljesítményét 800 W-ra növeltük. A köteg az 1000 °C-os hőmérsékletet 750 mm-es magasságban 16150 s után érte el (45. ábra). Az alacsony gázáramlási sebességek miatt a köteg felső részén mind gőz-, és oxigénhiányos állapot is kialakult, a kémiai reakciók pedig a köteg kevésbé oxidált középső és alsó részén váltak a legintenzívebbé. A maximális mért hőmérséklet 1625 °C volt, amelyet 300 mm-es magasságban mértünk. A légbetöréses fázisban a maximális hőmérsékletek a köteg tetejéről a köteg közepe felé mozdultak el (46. ábra). A levegő beáramlásának megkezdése után az oxigén teljesen elfogyott a kötegben lévő gázáramból, körülbelül 16750 s után (47. ábra). Ettől kezdve jelentős nitrogénfogyasztás kezdődött, ami azt jelzi, hogy a köteg felső részén globális oxigén- és gőzhiány alakult ki. Az oxigénnel párhuzamosan a gőz is elkezdett fogyni a légbetöréses fázis kezdetétől, és röviddel a teljes

oxigénelfogyás után, kb. 17200 s-nál szintén teljesen el is fogyott. A légbetöréses fázis kezdetétől észlelt gőzfogyasztás ellenére a cirkónium-gőz reakció által termelt hidrogén csak a teljes oxigénfogyasztás után vált kimutathatóvá a kilépő gázban. Amíg az oxigén rendelkezésre állt, a fejlődő hidrogén egyesült az oxigénnel és víz termelődött. A köteg felső részében körülbelül 7 percig teljes oxigén- és gőzhiányos állapot volt. Ennek a fázisnak a kezdete egybeesik a köteg alsó-középső részének hőmérséklet emelkedésével (300-500 mm-nél). Körülbelül 17400 s-tól kezdve a nitrogén mennyisége növekedni kezdett a kilépő gázban a képződött nitridek újraoxidációja miatt. A légbetöréses fázisban mért teljes hidrogéntermelés kb. 1,4 g volt, míg a teljes oxigén- és nitrogénfelvétel kb. 12, illetve 13 g volt.



46. ábra: A köteg tengelyirányú hőmérsékletprofilja különböző időpillanatokban a mérés során



47. ábra: A mért gázáramlási sebességek és a közberső rúd hőmérséklete (300 és 850 mm-es magasságban) a CODEX-AIT-3 kísérlet előoxidációs és légbetöréses fázisában

### Lehülési fázis

Az utolsó lassú lehülés a köteg és a külső fűtés kikapcsolásával történt. A gőz és a levegő áramlási sebességét leállítottuk, míg az argon áramlási sebességét 2,0 g/s-ra növeltük (43. ábra). A berendezés lehütése több mint két órát vett igénybe, és ezt követően a hűtőrendszert kikapcsoltuk.

### 5.2.3 A mérések főbb eredményei

A CODEX-AIT-3 kísérlet meglehetősen összetett vizsgálat volt, bonyolult peremfeltételekkel. A kísérletet olyan körülmények között végeztük, amelyek közel álltak a vizsgálat előtti számítások által meghatározottakhoz.

A vizsgálat fő céljait sikerült elérni:

- A központi rúd belső nyomásának növelése miatt 840 °C-on a burkolat felhasadása következett be. A keletkezett nyílás lehetővé tette a hűtőközeg bejutását a pálca belsejébe, és kémiai reakciókat indított el a burkolat mindkét oldalán.

- Az előoxidációt nagy áramlási sebességű gőzben végeztük, amelynek maximális hőmérséklete 1100 °C felett volt. A becsült oxidréteg-vastagság a köteg legforróbb szakaszán elérte a 100 µm-t.
- A közbenső lehűtési fázisban a hőmérsékletet 925 °C alá csökkentettük.
- A légbetöréses fázis időtartama 1 óra volt, és a burkolat maximális hőmérséklete valamivel 1600 °C felett volt.
- A kilépő gáz összetétele azt mutatta, hogy a légbetöréses fázis alatt gőz- és oxigénhiányos állapotok alakultak ki. A nitrogén részleges fogyasztása szintén nitrdek képződésére utalt.
- A hőmérsékletprofil jelentősen megváltozott a légbetöréses fázis alatt: a maximális hőmérséklet a köteg felső részéből a köteg középső részébe került a kevésbé oxidált középső rész intenzív kémiai kölcsönhatásai miatt.
- A köteg lehűtését argonban végeztük, hogy elkerüljük a vízzel való hűtés során esetlegesen fellépő kölcsönhatásokat.

#### 5.2.4 Utóvizsgálati eredmények

A kísérlet után a köteget eltávolítottuk a mérőszakaszból, és a köteget epoxi gyantával rögzítettük. A további vizsgálatokhoz 17 keresztmetszetet készítettünk a következő magasságokban: 200, 250, 300, 350, 400, 450, 500, 550, 600, 650, 700, 750, 800, 850, 900, 950 és 1000 mm.

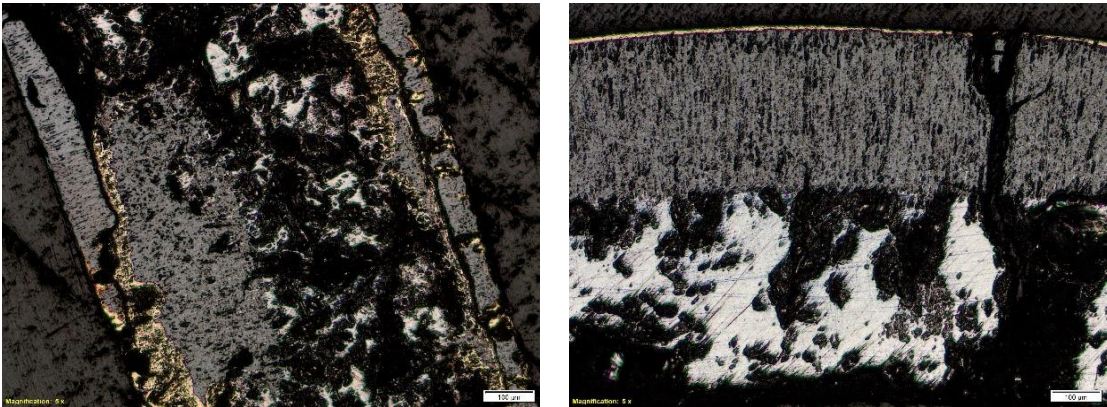
900 mm-es magasságban a középső rúdnál a burkolat felhasadást figyeltünk meg (48. ábra).



48. ábra: A CODEX-AIT-3 kísérlet kötegeének keresztmetszete 900 mm magasságban a felhasadt középső rúddal

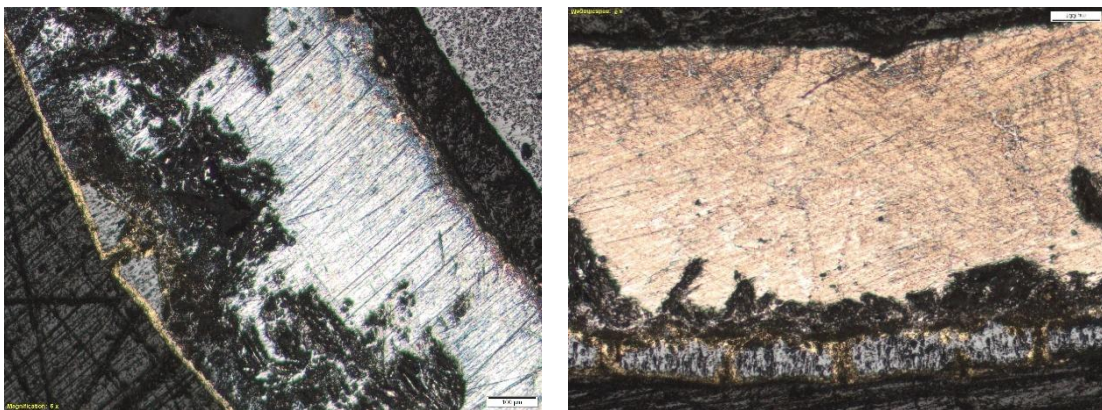
A keresztmetszetek részletes vizsgálata optikai mikroszkópiával a következő eredményeket hozta:

- A 300 mm-es magasságban a középső rúd mindkét oldalán oxidálódott, és az oxidrétegen belül és kívül is különböző helyeken nitrdek voltak megfigyelhetők. Az 5. számú rúd oxidréteg vastagsága kb. 300  $\mu\text{m}$  vastag volt, és a külső felületén vékony nitrdréteg képződött (49. ábra).



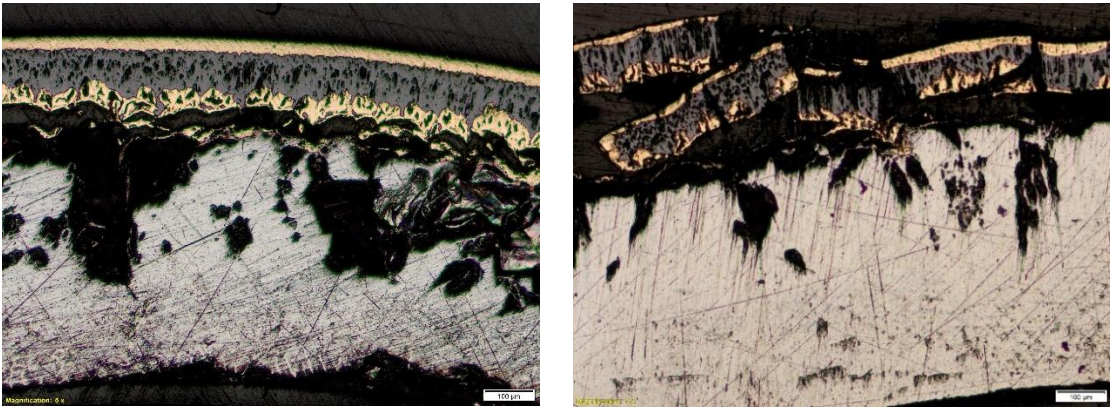
49. ábra: Az 1. (bal) és az 5. (jobb) számú csőről 300 mm magasságban készített optikai mikroszkópos képek, skálacsík: 100  $\mu\text{m}$

- 400 mm-es magasságban a középső rúdon repedezett oxidréteg látható, több kis nitrídált területtel. Annak ellenére, hogy a pálcza felhasadása a köteg tetején történt, a belső oxidáció és a nitrdek kialakulása még alacsony magasságban (300 és 400 mm) is jelentős volt. A 2. számú rúd szintén oxidálódott, és nitrídált volt. Az oxidréteg vastagsága körülbelül 100  $\mu\text{m}$  volt (50. ábra).



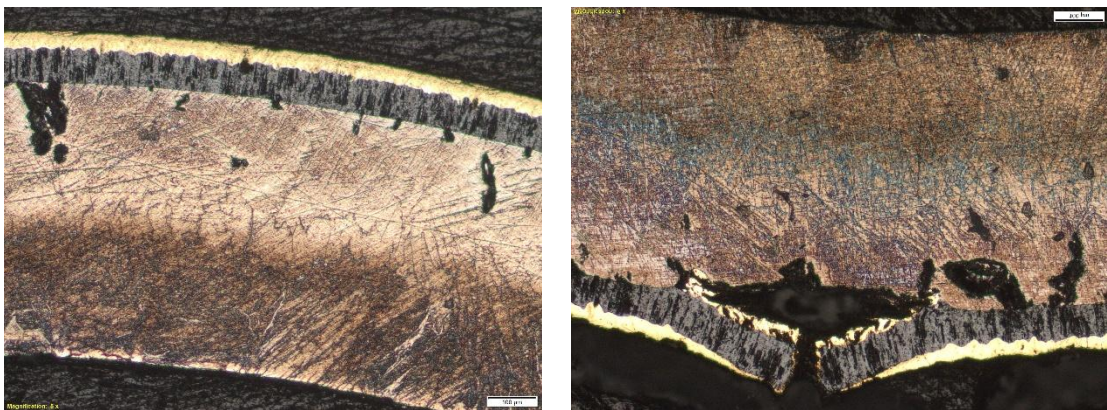
50. ábra: Az 1. (bal) és a 2. (jobb) számú csőről 400 mm magasságban készített optikai mikroszkópos képek, skálacsík: 100  $\mu\text{m}$

- 550 mm-es magasságban mind a középső, mind a perifériás (7. számú) rudakat jelentős mennyiségű nitrid borította. Ez a szerkezet arra utalt, hogy a vizsgálat utolsó fázisában ezen a magasságon oxigénhiányos állapot következett be. A nitridek jelenléte az  $\alpha$ -oxid réteg határfelületén azt mutatja, hogy ezt a részt erősen érintette a levegő oxidációja, mielőtt a globális oxigénhiány bekövetkezett volna, az ebben a régióban bekövetkezett helyi oxigénhiány miatt (51. ábra).



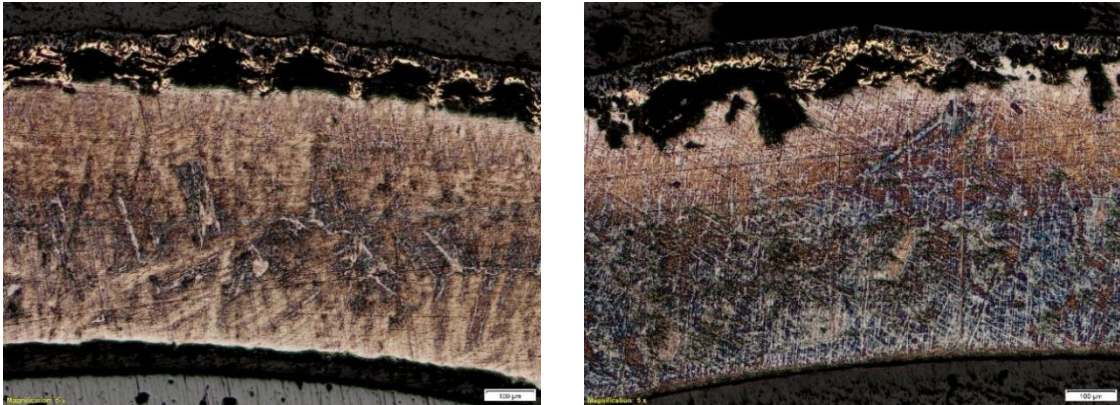
51. ábra: Az 1. (bal) és a 7. (jobb) számú csőről 550 mm magasságban készített optikai mikroszkópos képek, skálacsík: 100  $\mu$ m

- 650 mm-nél a középső rúd külső felületén az oxid és a nitrid szabályos szerkezete arra utal, hogy az oxid gőzben keletkezett, a nitridálási folyamat pedig oxigénhiányos körülmények között zajlott. Hasonló következtetéseket lehet levonni a 3. számú rúd oxidszerkezete alapján, amelynél a repedezett oxidréteget minden szabad felületén nitridek borítanak (52. ábra).



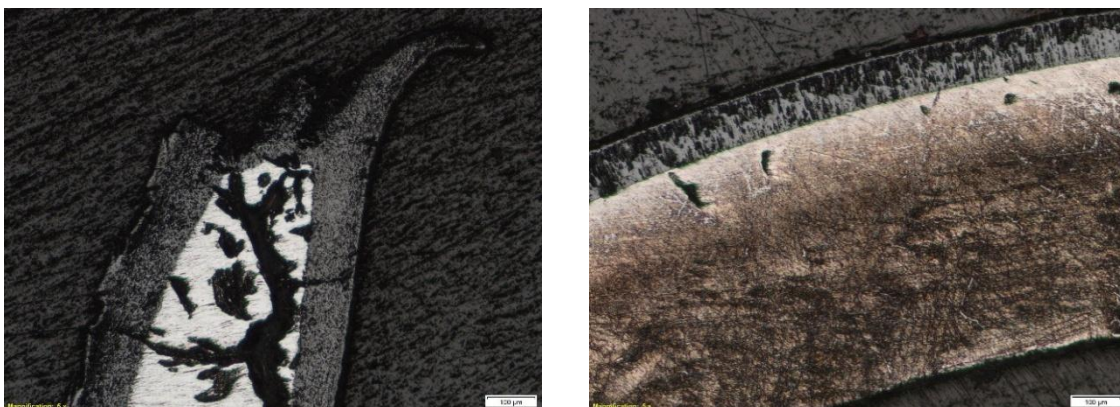
52. ábra: Az 1. (bal) és a 3. (jobb) számú csőről 650 mm magasságban készített optikai mikroszkópos képek, skálacsík: 100  $\mu$ m

- 750 mm-es magasságban a nitridek főként az oxidréteg belső oldalán képződtek, és érdekes (ívszerű) struktúrák alakultak ki. Az oxidréteg külső felületén is megfigyelhető kis mennyiségű nitridképződés. Valószínűleg a kísérlet utolsó fázisában a hőmérséklet nem volt elég magas ezen a magasságon ahhoz, hogy intenzív kémiai reakció induljon be a Zr és a nitrogén között (53. ábra).



53. ábra: Az 1. (bal) és a 4. (jobb) számú csőről 750 mm magasságban készített optikai mikroszkópos képek, skálacsík: 100  $\mu\text{m}$

- 900 mm-nél a felhasadás helyén mindkét oldal oxidálódott. A 2. számú rúd oxidréteg-vastagsága nem érte el a 100  $\mu\text{m}$ -t. Nitridek nem képződtek ezen a magasságon, mivel a levegő behatolása során a hőmérséklet meglehetősen alacsony volt (54. ábra).



54. ábra: Az 1. (bal) és a 2. (jobb) számú csőről 900 mm magasságban készített optikai mikroszkópos képek, skálacsík: 100  $\mu\text{m}$

Az elvégzett megfigyelések megerősítik a nitridképződés folyamatainak fenomenológiáját, amelyet korábban részletesen tanulmányoztak az egyhatásos (kisléptékű) vizsgálatokban. Nevezetesen, a nitrogén reakcióba lép az  $\alpha$ -Zr(O) területekkel (Steinbrück, 2014, Grosse et al. 2016, Grosse et al. 2018). Ilyen területek az oxigénhiány szakaszában keletkeznek mind az oxidréteg külső felületén, mind annak tömegében (Stuckert és Veshchunov, 2008).

A vizsgálatok kiterjedtek a burkolatsövek és a kazettafal rétegvastagságának meghatározására. A következő rétegeket mértük azokon a keresztmetszeteken, ahol azonosítani lehetett őket:

- oxidréteg a burkolatsövek külső felületén,
- oxidréteg a burkolatsövek belső felületén,
- oxidréteg a kazettafal külső felületén,
- oxidréteg a kazettafal belső felületén,
- $\alpha$ -Zr(O) réteg,
- nitridréteg az oxid külső felületén,
- nitridréteg az  $\alpha$ -Zr(O) - ZrO<sub>2</sub> határfelületén.

A rétegvastagságokat minden egyes fűtőelem-burkolat több pozíciójában mértük egy adott magasságban. A mért adatok szórása egyes esetekben igen jelentős volt, ami arra utal, hogy heterogén mikroszerkezetek jöttek létre. Különösen a nitridek mutattak összetett struktúrákat, mint például kis foltok, szigetek és ívek, de kompakt nitrid szegmensek is keletkeztek.

A fent leírt tipikus szerkezetek alapján a következő rétegvastagságokat mértük, ahol azok rendelkezésre álltak (55. ábra):

ZrN<sup>ex</sup><sub>out</sub> – nitridréteg a külső oxidréteg külső felületén.

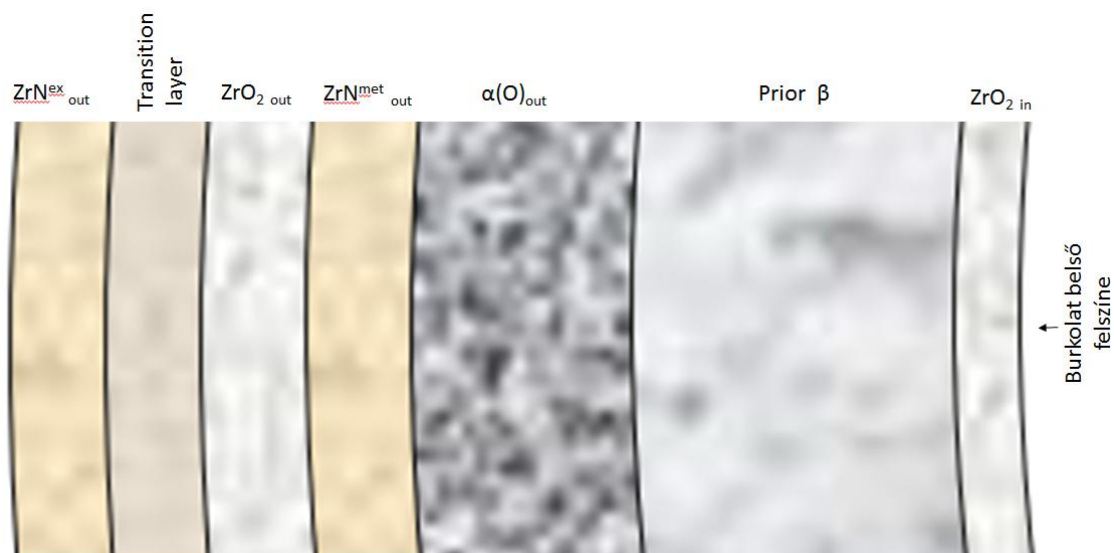
átmeneti réteg (transition layer) – a külső nitridréteg és a külső oxidréteg közötti réteg.

ZrO<sub>2</sub><sub>out</sub> – a burkolat külső felületén lévő oxidréteg.

ZrN<sup>met</sup><sub>out</sub> – a burkolat külső oldalán lévő fémfelületen lévő nitridréteg.

$\alpha$ (O)<sub>out</sub> – alfa réteg a burkolat külső oldalán.

ZrO<sub>2</sub><sub>in</sub> – a burkolat belső felületén lévő oxidréteg.



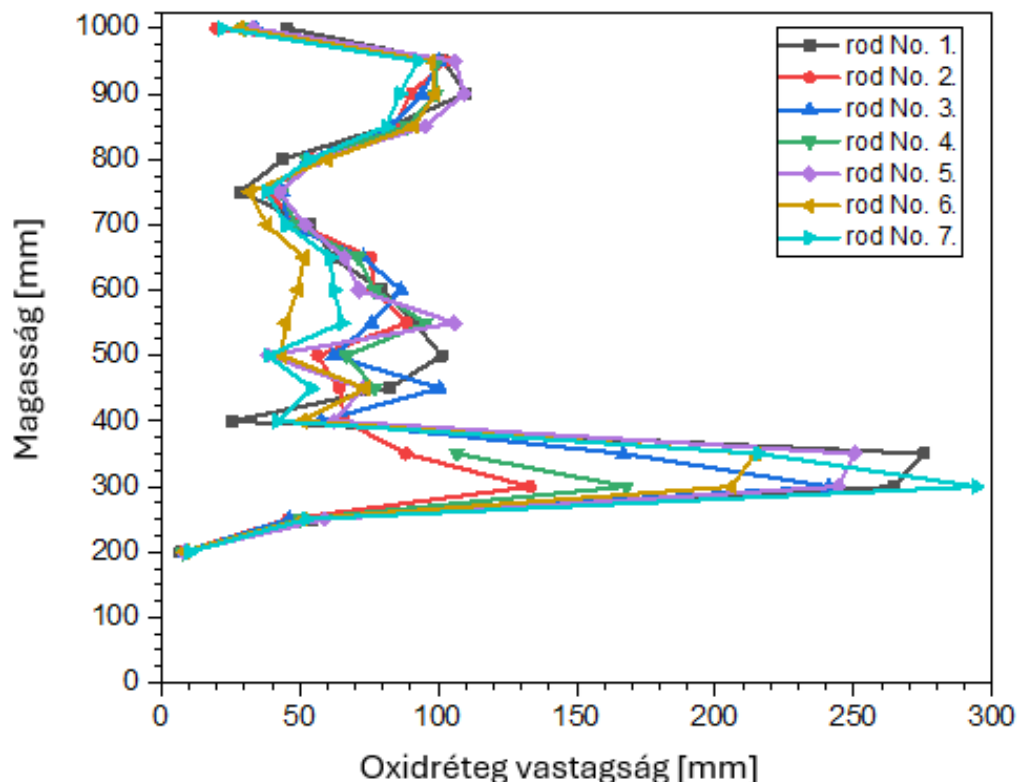
55. ábra: Az E110G anyagú burkolatcső keresztmetszetein azonosított rétegek

### 5.2.5 Az oxidréteg vastagsága a fűtőelempálcákon

Az oxidréteg vastagságát minden egyes fűtőelempálcánál minden egyes keresztmetszetenél több pozícióban megmértük.

A fűtőelempálcák külső felületén az oxidréteg vastagságának átlagos értékeit a 56. ábra foglalja össze. A legnagyobb, 300  $\mu\text{m}$  közeli oxidvastagságot 300 mm-es magasságban mértük. A köteg felső részén a jellemző oxidréteg vastagságok 100  $\mu\text{m}$  körül voltak. Az oxidréteg vastagságának eltérései (pl. 300 mm-nél) a rudakon valószínűleg a radiális hőmérsékleti profil változásával függtek össze. Ezt azonban nem lehetett numerikusan értékelni, mivel csak egy termoelem volt ezen a magasságon.

A fűtőelempálcák belső felületén oxidréteg csak néhány kiválasztott helyen volt megfigyelhető. Az 5. és a 3. számú pálcá belső felületének egy részén 350 mm-es, illetve 450 mm-es magasságban enyhe oxidációt mutatott. Ezeken a helyeken a burkolatokon néhány repedés volt látható, így valószínűleg a pálcák rideg viselkedése tette lehetővé a hűtőközeg bejutását a pálcák belsejébe. A köteg középső rúdja (1. sz.) a kísérlet során felfűvódott és felhasadt, így a belső felület oxidációja 850-950 mm-es magasság között következett be, az oxidréteg átlagos értéke 70-80  $\mu\text{m}$  volt.



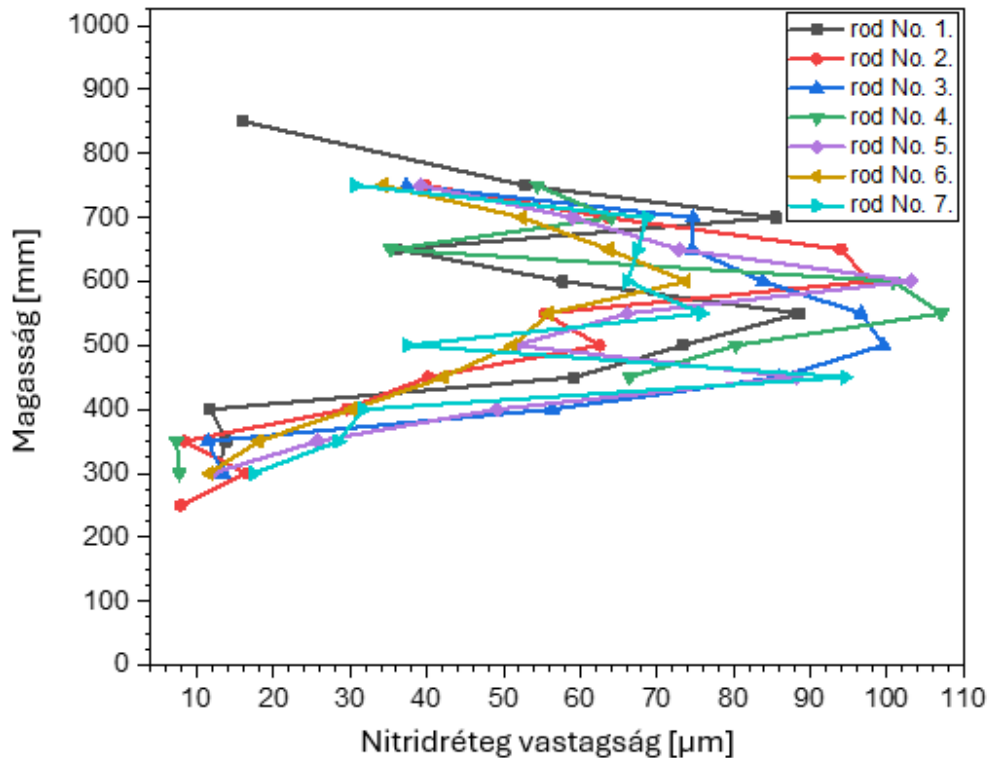
56. ábra: Oxidréteg-vastagság a fűtőelempálcák külső felületén

A CODEX-AIT-3 kísérletben az előoxidációs fázisban a magasabb pozíciókban a magasabb hőmérséklet miatt megtörtént a megfelelő előoxidáció, ekkor az alacsonyabb magasságokban az alacsonyabb hőmérséklet miatt az oxidréteg vastagsága kisebb lehetett. Később, a légbetöréses fázis alatt a köteg alján bevezetett gőz- és oxigénellátás miatt az oxidáció beindult és a maximális hőmérséklet lefelé tolódott. Mivel a korlátozott mennyiségű oxigén a magasabb pozíciókban már nem állt ekkora mennyiségben rendelkezésre (a köteg felső részében oxigénhiányos állapot jött létre), nem tudott olyan vastag oxidréteg kialakulni, mint az alsóbb pozíciókban (56. ábra).

### 5.2.6 A nitridréteg vastagsága a fűtőelempálcákon

A nitridréteg vastagságát minden egyes fűtőelempálcánál minden egyes keresztmetszetenél több olyan helyen is megmértük, ahol ilyen rétegek képződtek. A külső felületen a nitridréteg 250-850 mm-es magasságok között volt megfigyelhető, míg a fém/oxid közötti fázisban a nitridréteg 400-750 mm között volt látható. A burkolat külső felületén a teljes nitridréteg vastagságát a két különálló réteg összegeként számítottuk ki.

A mért adatok 450-700 mm-es magasságokban erős nitridálódást mutattak (57. ábra), ahol a nitridrétegek teljes vastagságának maximális értékei elérték a 100  $\mu\text{m}$ -t is.



57. ábra: Teljes nitrid rétegvastagság a fűtőelem-burkolatokon

Mivel a fűtőelem-pálcák oxidációja főként a külső felületre korlátozódott, az oxigénben gazdag  $\alpha$ -Zr(O)-rétegek csak a burkolatok külső felületén alakultak ki. Jelentős  $\alpha$  rétegvastagságot mértünk 500 mm-es magasság felett, ahol a burkolat oxidációja nem volt olyan kiterjedt, mint 300 mm körül. Az  $\alpha$ -Zr(O)-réteg vastagsága elérte a 200-300  $\mu\text{m}$ -t.

Átmeneti réteget a nitrid- és az oxidrétegek között több helyen is találtunk 300-600 mm-es magasságok között. Az átmeneti rétegvastagság átlagos értéke 20  $\mu\text{m}$  körül volt.

### 5.2.7 A CODEX-AIT-3 mérés összefoglalója

A CODEX-AIT-3 kísérlet számos olyan jelenséget mutatott be, amelyek egy nukleáris reaktorban bekövetkező súlyos baleset esetén várhatóak levegő betörése során. Az E110G anyagú fűtőelemköteget 1600 °C-ra hevítettük, hogy lehetővé váljanak a magas hőmérsékletű kölcsönhatások. A légbetörési fázis egy órán át tartott. A gőz és a levegő áramlási sebességét úgy szabályoztuk, hogy a köteg egyes helyein gőzhiányos állapotok álltak elő.

A különböző kémiai kölcsönhatásokat az on-line mérések és az utólagos vizsgálatok alapján azonosítottuk:

- A hidrogén jelenléte a kilépő gáz összetételében azt mutatta, hogy a cirkónium gőzzel történő oxidációja következett be. A metallográfiai elemzések során megfigyelt oxid egy részét a gőz, másik részét pedig a levegőből származó oxigén hozta létre.
- A nitrogén koncentrációjának csökkenése a kilépő gázban azt jelezte, hogy nitridálás is történt. Továbbá a nitrogénkoncentráció későbbi növekedése azt jelezte, hogy a nitrdek újraoxidációja is megtörtént, amikor a gőz ismét rendelkezésre állt.

A burkolatok mikroszerkezete a köteg hossza mentén nagy változatosságot mutatott. Leegyszerűsítve hét réteget lehetett azonosítani a burkolatban (külső nitrid, átmeneti, külső oxid, belső nitrid,  $\alpha$ -Zr(O), korábbi  $\beta$ -Zr és belső oxid réteg). Ezek a rétegek azonban nem voltak szabályosak. Néhány helyen ezek közül a rétegek közül hiányzott. Más részeken a különböző fázisok egymásba hatolását lehetett kimutatni félsziget- vagy szigetszerű szakaszokon keresztül.

A kémiai reakciók helyi intenzitása jelentős változásokat eredményezett a hőmérsékleti profilban. A maximális hőmérsékleteket először a köteg tetején mértünk. Később a korlátozott gőz- és oxigénellátás miatt a maximális hőmérséklet lefelé, alacsonyabb szintekre tolódott, ahol még mindig aktív oxidáció zajlott.

A CODEX-AIT-3 kísérlet jól szemléltette azokat az összetett reakciókat, amelyek a levegő bejutásával járó balesetek során végbe mehetnek, és amelyek sokrétű mikroszerkezeteket eredményezhetnek. A kísérlet eredményei jól korrelálnak a korábban végzett, kisléptékű vizsgálatok eredményeivel.

A korábbi légbetörési kötegvizsgálatokat általában a levegő és a cirkónium közötti nagyon intenzív kölcsönhatások jellemezték. A CODEX-AIT-3 kísérletben korlátozott levegő- és gőzáramlási forgalmakat választottunk, ami lelassította a magas hőmérsékletű kémiai kölcsönhatásokat, és egyedülálló adatokat szolgáltatott a nukleáris üzemanyag-burkolat oxigén- és gőzhiányos körülmények közötti viselkedéséről. Az egyes oxidációs és nitridálási jelenségek jól elkülönültek egymástól, amint azt a cirkóniumkomponensek mikroszerkezete is jelezte. Ezt az elkülönülést mind időben, mind helyileg megfigyeltük. Mivel a különböző kémiai reakciók közötti dominálás egyes helyeken és egyes

időszakokban kizárható volt, a kísérlet utólagos numerikus elemzése felhasználhatók az egyes kémiai reakciókra kidolgozott numerikus modellek szerepének értékelésére a súlyos baleseti kódokban.

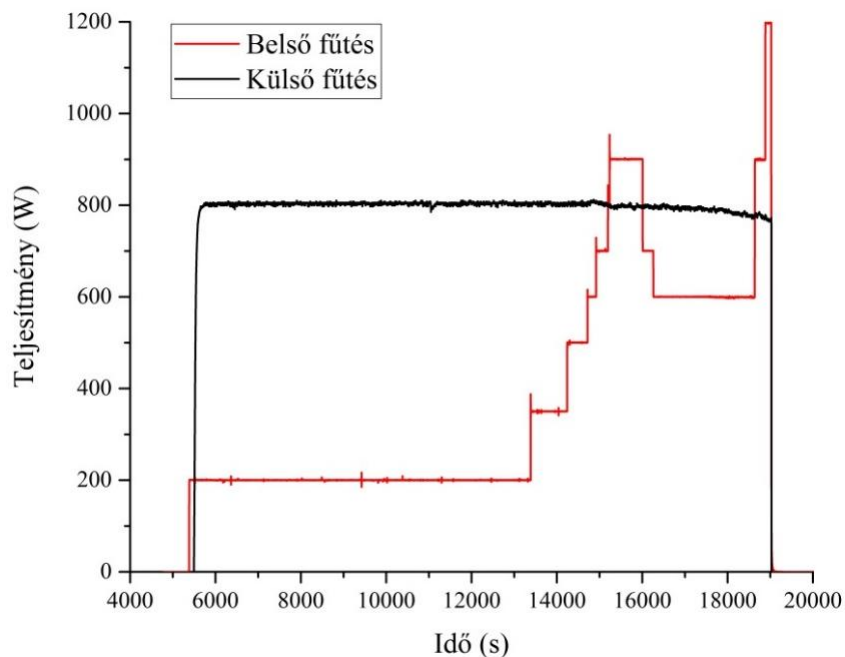
### **5.3 A CODEX-NITRO kísérlet**

Az EK által vezetett Cirkónium Anyagtudományi Kutatások projekt 126 keretében [37] a NUBIKI (Nukleáris Biztonsági Kutatóintézet) előkészítő számításokat végzett a CODEX berendezésen tervezett integrális kísérletek végrehajtásához [S4]. A méréshez olyan – elvileg lehetséges – súlyos baleseti körülményeket választottak ki, amelyek a cirkóniumburkolat jelentős, különböző mechanizmusok miatt fellépő degradációjához vezetnek. A CODEX-NITRO kísérletben egy olyan atomerőművi balesetet szimuláltunk, amelyben a primerköri csőtörés után a hidroakkumulátorokból (passzív vészhűtőrendszer) nitrogén is beáramlik a reaktor aktív zónájába [S5],[S6]. A gőz és nitrogén együttes hatását integrális kísérletekben még nem vizsgálták a cirkónium burkolatra egy lehetséges erőművi baleset feltételei között. A kisléptékű kísérletek eredményei szerint azonban valószínűsíthető, hogy a nitrogén jelenléte a vízgőzben felgyorsítja az oxidációs folyamatot és réteges, nitridszemcséket is tartalmazó oxidréteg kialakulását eredményezi. A kísérlethez használt köteg itt is hét rúdból állt, a 2, 3, 5. és a 6. rúd anyaga E110 ötvözet, az 1, 4. és 7. rúd E110G ötvözet volt (4. táblázat).

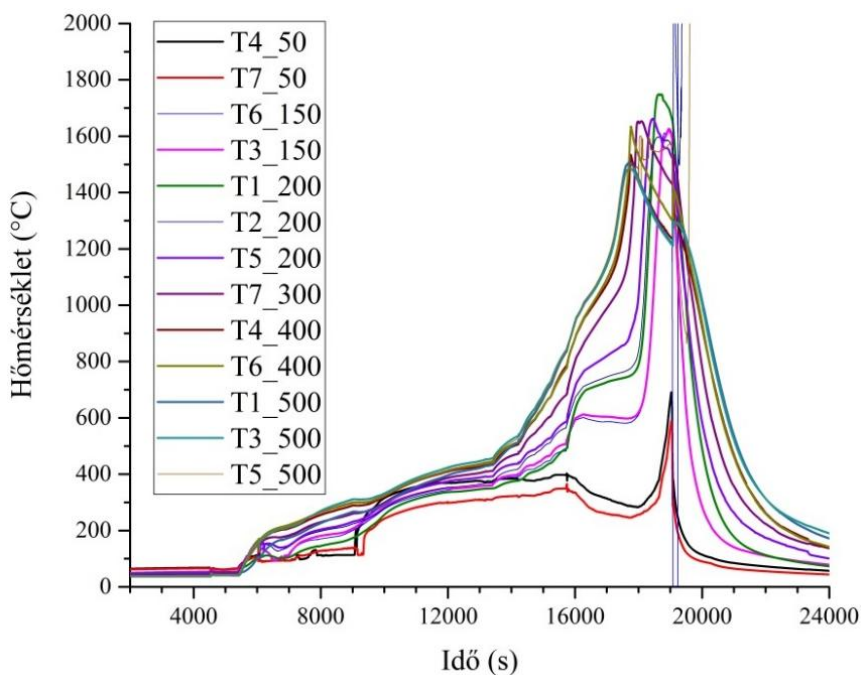
#### **5.3.1 A kísérlet végrehajtása**

A kísérlet előkészítő szakaszában bekapcsoltuk a gőzfejlesztőt és megkezdtük az argon betáplálást. Ezzel párhuzamosan elindítottuk a kondenzátor hűtését, és megkezdődött az adatgyűjtés. Az előkészítő fázisban végeztünk kalibrációs méréseket a tömegspektrométerrel, amihez ismert mennyiségű nitrogént adtunk a gőzáramhoz. A forró gőz felfűtötte a berendezés jelentős részét 400 °C körüli hőmérsékletre.

Következő lépésként bekapcsoltuk a 800 W teljesítményű külső fűtést (58. ábra) és megkezdődött a rudak belső fűtése alacsony teljesítményen (200 W). A berendezés felfűtése 500 °C-kal zárta le az előkészítő szakaszt (59. ábra).



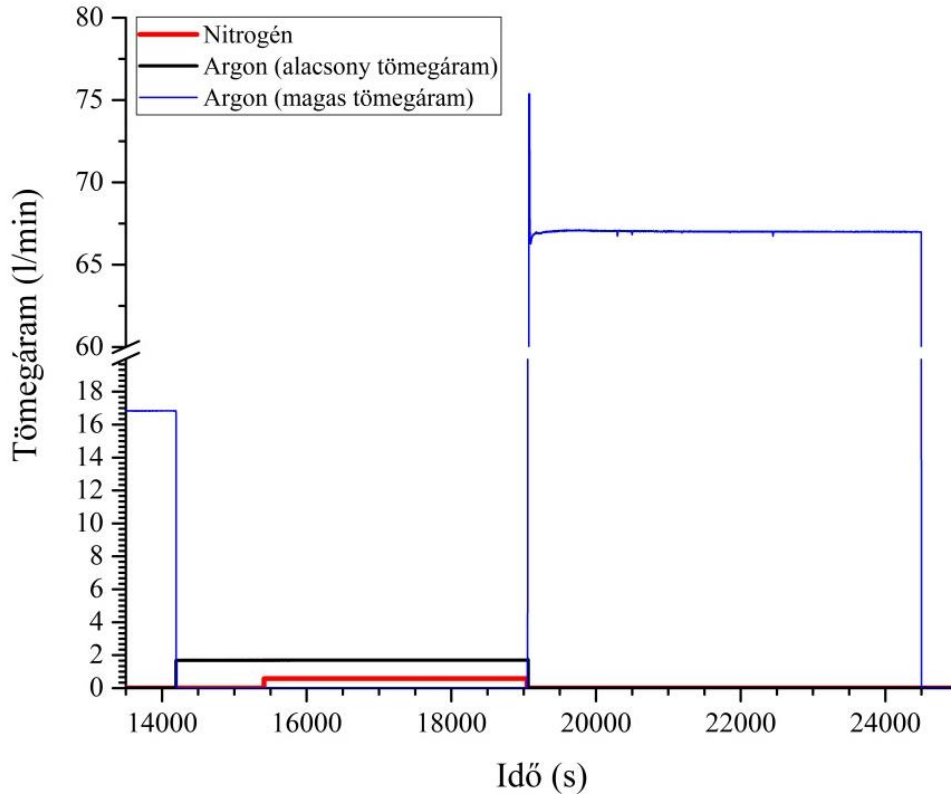
58. ábra: A köteg és a mérőszakasz külső fűtésének elektromos teljesítménye a CODEX-NITRO kísérlet során



59. ábra: A 7 pálca különböző magasságokban (50-500 mm) mért burkolathőmérsékletei a CODEX-NITRO kísérlet során

A vízgőzös oxidáció beindulásához csökkentettük az argon forgalmat, és megnöveltük a teljesítményt. 600 °C elérésekor a tömegspektrométer már mutatta a hidrogén megjelenését a kilépő gázban, ami a cirkónium vízgőzös oxidációjának beindulását jelezte.

700 °C elérése után megkezdődött a nitrogén betáplálása a gőzfejlesztőn keresztül, majd öt perccel később elzártuk a gőzfejlesztő csatlakozását a mérőszakaszhoz. A további hűtőközeg betáplálás (víz, argon, nitrogén) közvetlenül a mérőszakasz aljába történt előmelegítés nélkül (60. ábra).



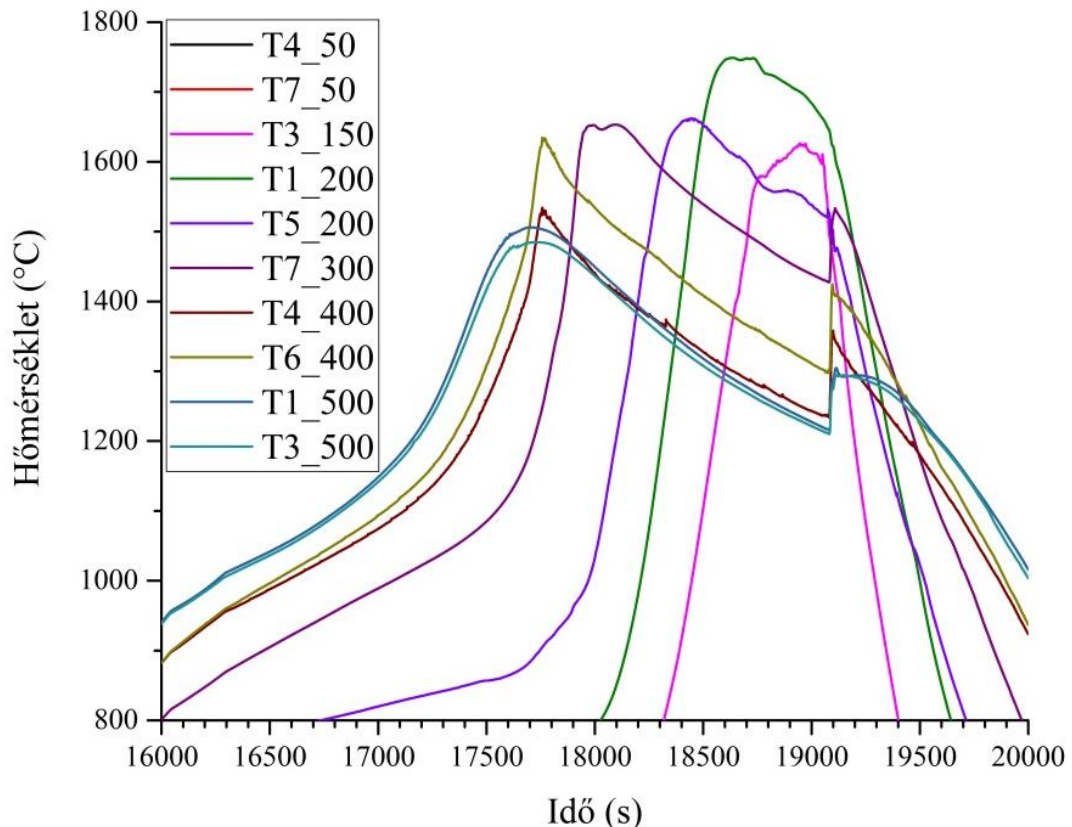
60. ábra: A mérőszakaszba bejuttatott gázok tömegárama a CODEX-NITRO kísérletben

A középső rúd belső nyomását 800 °C fölött kezdtük el növelni azzal a céllal, hogy előidézük a burkolat felfúvódását és felhasadását. A csatlakozó kapilláriscső eldugulása azonban ezt megakadályozta, így nem hasadt fel a burkolat. A hőmérséklet-növekedés 800 °C fölött felgyorsult, amit fokozott hidrogénfejlődés kísért.

A tervezett egy óra helyett kevesebb, mint fél óra alatt elértük az 1200 °C-os hőmérsékletet a köteg felső részében (61. ábra). A további emelkedés is jelentős volt, gyorsan 1600 °C fölé emelkedtek a hőmérséklet-értékek. Közben a kilépő vízgőz-koncentráció alaposan lecsökkent, és gőzhiányos állapot jött létre a köteg felső részében. Ezért a felső rész már nem tudott tovább melegedni. A köteg középső és alsó részén még intenzív oxidáció ment végbe, ezért az axiális hőmérsékletprofil is megváltozott, és a

maximum hőmérséklet a köteg tetejéről annak közepe felé tevődött át (61. ábra). A 62. ábra azt mutatja, hogy a kazettafal hőmérséklete a különböző magasságokban 1500-1600 °C közé emelkedett és az acélcső hőmérséklete is elérte a 800 °C-ot.

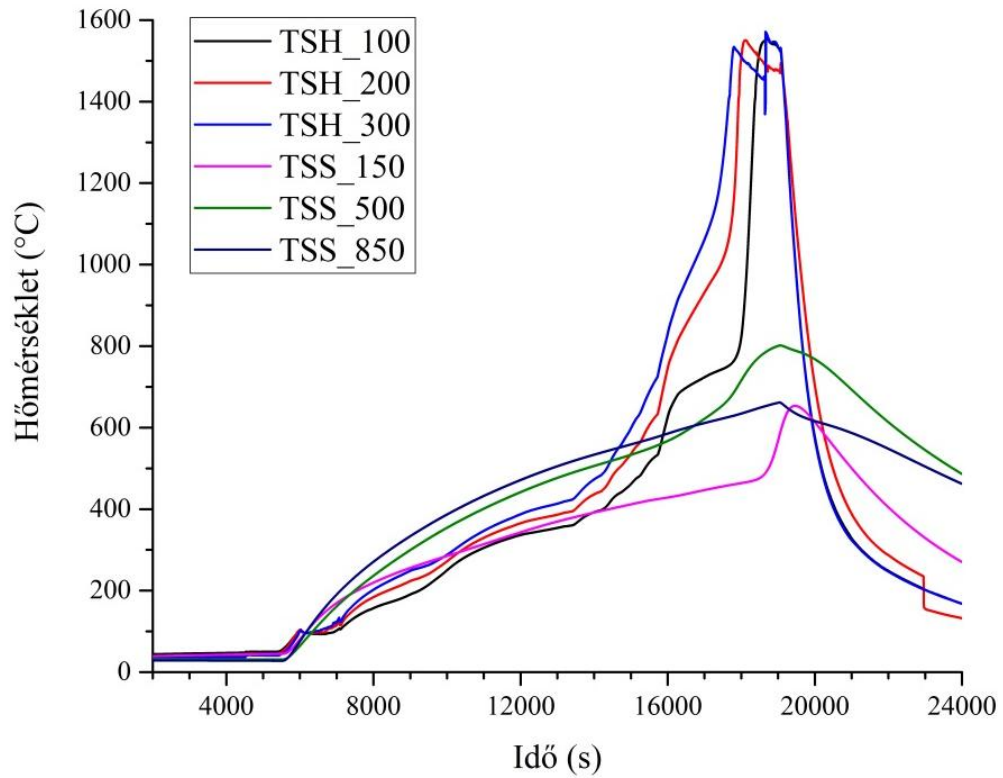
A gőzhiányos állapot idején a gázáramban kilépő hidrogén mennyisége állandósult, a nitrogéné pedig csökkent (63. ábra). Az utóbbi jelezte, hogy a nitridizáció is intenzíven mehetett végbe a cirkóniumfelületeken.



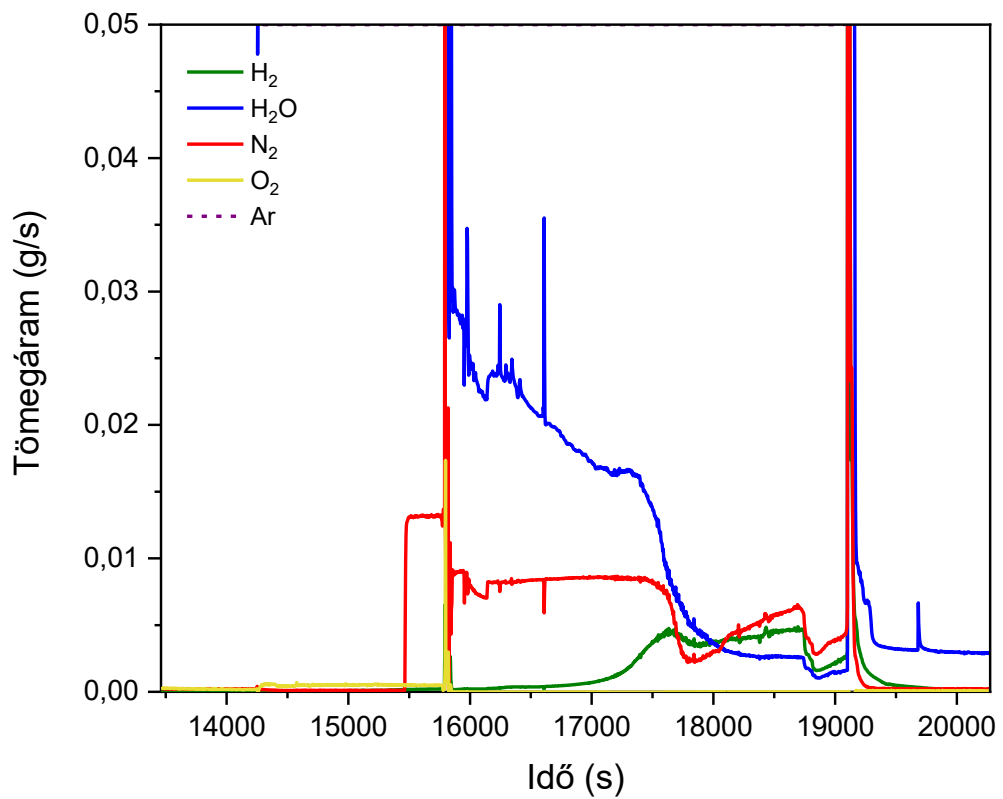
61. ábra: A 7 pálca 16000 és 20000 s között, különböző magasságokban (50-500 mm) mért burkolat-hőmérsékletei a CODEX-NITRO kísérlet során

A teljesítmény átmeneti emelése sem vezetett hőmérséklet-megszaladáshoz, amit a gőzhiányos állapot kialakulása magyaráz. A középső rúdon, 200 mm magasságban érték el a maximum hőmérsékletet, aminek értéke 1748 °C volt (61. ábra). Ez alatta van a cirkónium olvadáspontjának, de nem zárható ki, hogy a nem mért pozíciókban lokális olvadás történt - ezt majd a köteg utóvizsgálatai alapján lehet eldönteni.

A mérés utolsó szakaszában a fűtést kikapcsoltuk, a nitrogén és vízgőz betáplálást megszüntettük és megemelt argonáramban hűtöttük le a berendezést.



62. ábra: A kazettafalon (TSH) és az acélcsőön (TSS) különböző magasságokban mért hőmérsékletek a CODEX-NITRO kísérlet során



63. ábra: A kilépő gáz összetétele a CODEX-NITRO kísérletben

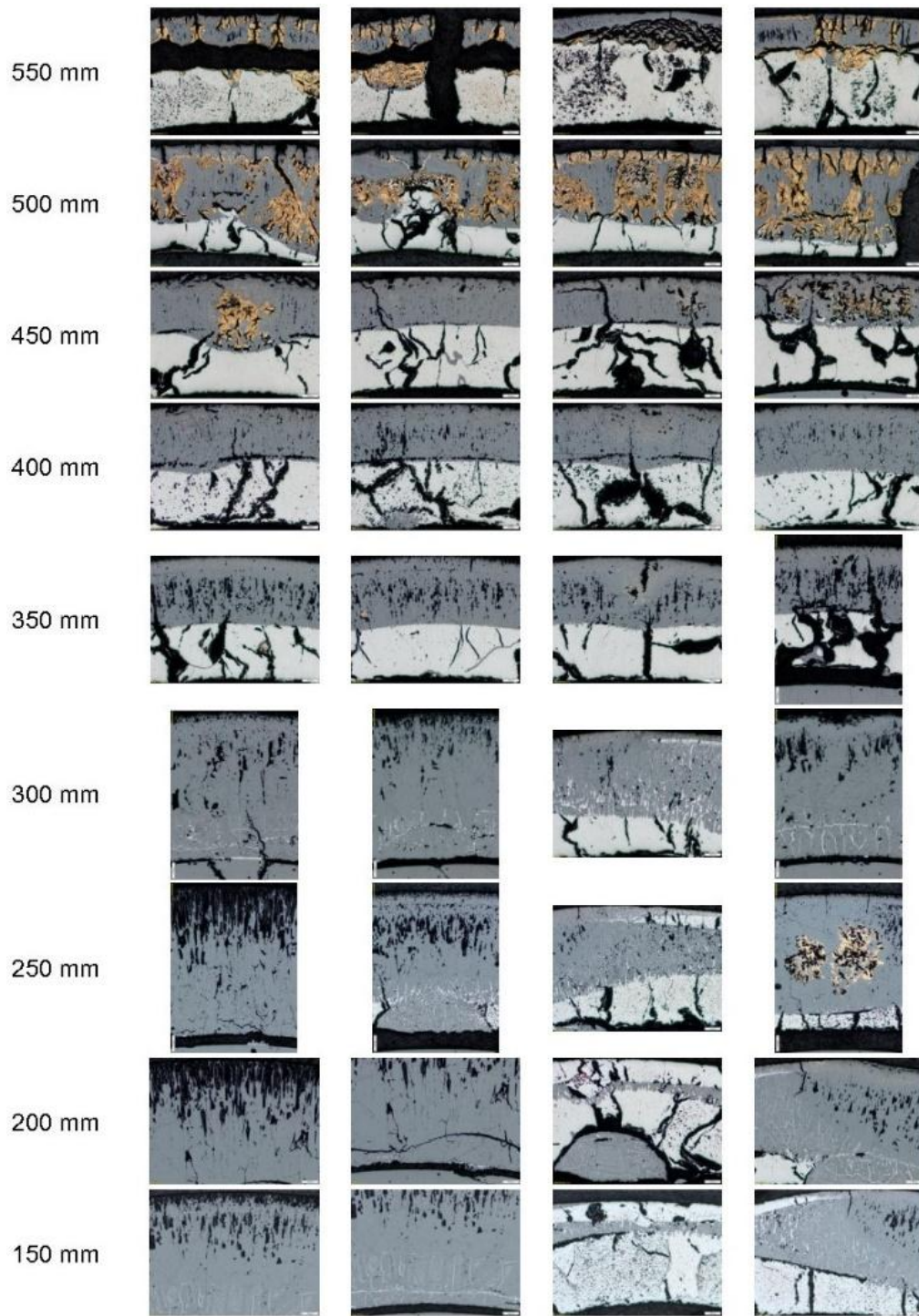
### 5.3.2 A köteg metallográfiai vizsgálata

A kísérlet után a köteget eltávolítottuk a mérőszakaszból, és a burkolatban lévő fűtőelemeket epoxi gyantával rögzítettük. Több magasságban keresztmetszeteket készítettünk a metallográfiai vizsgálatokhoz. A keresztmetszetek közötti távolság 50 mm volt. A köteg alsó részén – a hol a maximális hőmérsékletet mértük – a burkolat jelentős deformációja következett be (64. ábra, balra). A köteg felső részén a hatszögletű kazettafal geometriája megmaradt, és a belső nyomás hatására bekövetkező deformáció a központi rúd burkolatán volt megfigyelhető (64. ábra, jobbra). A köteg különböző magasságában távtartó rács szegmenseket lehetett megfigyelni, ami arra utal, hogy a távtartórácsok a kísérlet során súlyosan megsérültek.



64. ábra: A CODEX-NITRO köteg keresztmetszete 200 mm (balra) és 500 mm (jobbra) magasságban

A metallográfiai vizsgálatok során közel kétezer kép készült a keresztmetszetekről. A cirkóniumkomponensekben oxidok, nitridek,  $\alpha(O)$  és prior  $\beta$  szerkezetek voltak azonosíthatók, meglehetősen heterogén és nem egyenletes eloszlásban. Minden egyes magasságban négy szegmens látható, amelyek a 65. ábra szerint különböző kerületi pozíciókat képviselnek.



65. ábra: Az 1. számú rúd burkolatának optikai mikroszkópos keresztmetszeti felvételei különböző magasságokban és kerületi pozíciókban, skálacsík: 100  $\mu$ m

A köteg alsó részén 150-300 mm között több teljesen oxidált keresztmetszet látható. Ugyanezen magasságokban a kevésbé oxidált szegmensek a burkolathoz közeli helyeknek felelnek meg. Valószínűleg a gőzáramlás korlátozott volt a burkolat és a burkolat közötti alcsatornákban, és ez korlátozta az oxidációs folyamatot. A burkolat belső felületén is található oxidréteg. A gőz bejutását a fűtőelempálca belsejébe

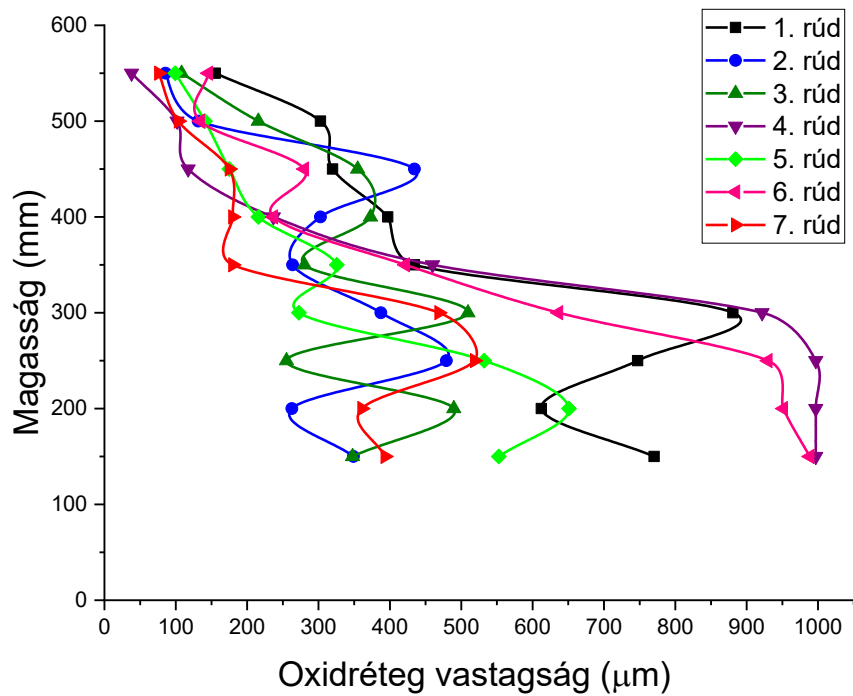
megkönnyítették a teljes keresztmetszetű repedések, amelyek több helyen is láthatóak voltak. 200 mm-es magasságban a maximális hőmérséklet közel volt a cirkónium olvadáspontjához, de ennek ellenére a keresztmetszetekben nem lehetett olvadt anyagot azonosítani. A köteg felső részén (450-550 mm) található aranyszínű struktúrák a burkolat intenzív nitridálódását mutatták. Néhány nitridfoltot találunk az alacsonyabb pozíciókban (pl. 250 mm) is. Valószínűleg az alsó részen a nitridálás a nitrogénbejuttatás megkezdése után történt, de később az ott képződött ZrN nagy része magas hőmérsékletű gőzzel oxidálódott. Ezt a folyamatot a kilépő gáz nitrogéntartalmának növekedése jelezte (63. ábra).

Ezután az összes vizsgált E110 fűtőelem-burkolat keresztmetszetében összetett oxid- és nitridszerkezeteket figyeltünk meg, és egyiknél sem lehetett specifikus szerkezetet azonosítani.

A burkolati állapotok mennyiségi jellemzésének támogatása érdekében a heterogén szerkezeteket az összetevők egyszerűsített eloszlásával közelítettük meg. Ez a burkolat külső felületén lévő nitridrétegből állt, amelyet a külső oxidréteg, a fennmaradó fémes cirkóniumréteg és a belső oxidok követtek. A megfelelő értékeket a burkolat egyes szegmenseiben az egyes komponensek által lefedett területek figyelembevételével határoztuk meg.

### **5.3.3 Az oxidréteg vastagsága a fűtőelempálcákon**

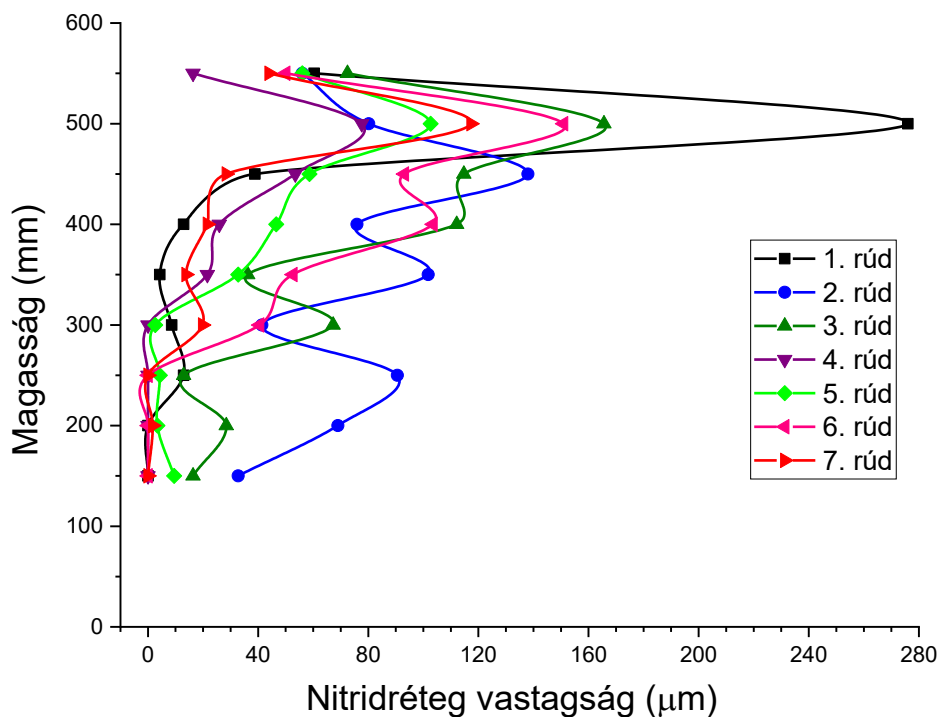
A 4. és 6. számú rudak 150 mm és 250 mm között teljesen oxidálódtak. Az 1000  $\mu\text{m}$  vastagság 100%-os oxidációnak felel meg (66. ábra). Magasabb szinteken, 350-550 mm között a jellemző külső oxidréteg vastagság 200-400  $\mu\text{m}$  között volt. A belső oxidáció sokkal kevésbé jelentős, az átlagos egyenértékű vastagság 15-25  $\mu\text{m}$  volt.



66. ábra: Külső oxidréteg vastagsága CODEX-NITRO rudakon

### 5.3.4 A nitridréteg vastagsága a fűtőelempálcákon

Az egyenértékű maximális nitridvastagság 276  $\mu\text{m}$  volt, ami az 1. számú rúdnál volt megfigyelhető, 500 mm-es magasságban (67. ábra). A többi rúdon is ugyanilyen magasságban alakult ki a maximális nitridvastagság, de az értékek alacsonyabbak voltak (70-150  $\mu\text{m}$ ) [S4][S5][S6].



67. ábra: Nitridréteg vastagsága a CODEX-NITRO rudakon

### **5.3.5 A CODEX-NITRO mérés összefoglalása**

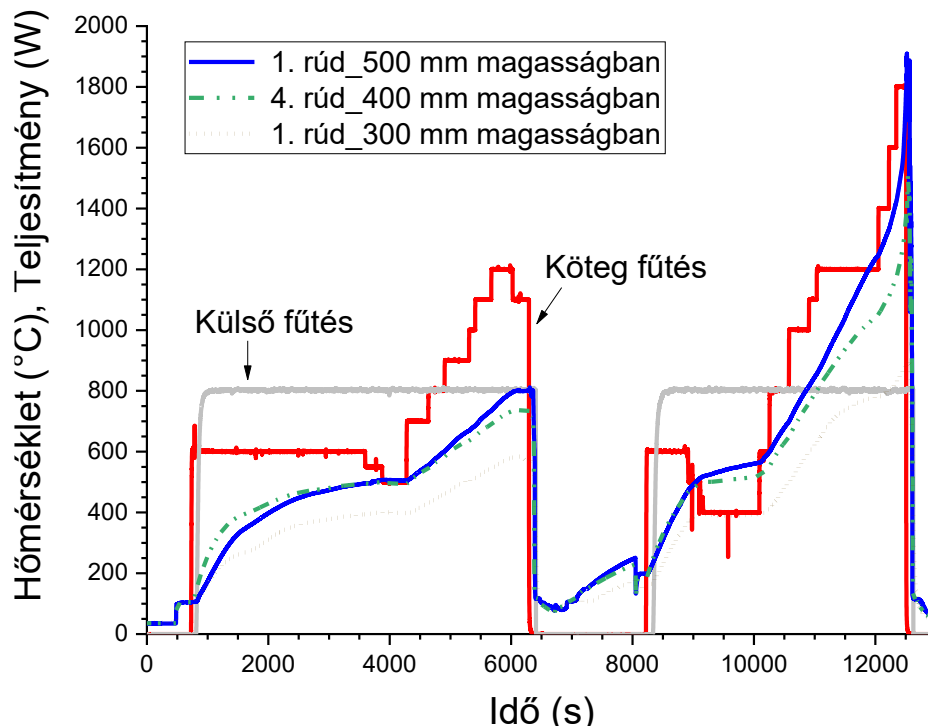
A CODEX-NITRO kísérletben egy olyan atomerőművi balesetet szimuláltunk egy hét E110 rúdból álló elektromosan fűtött köteggel, amelyben a primerköri csőtörés után a hidroakkumulátorokból nitrogén is beáramlik a reaktor aktív zónájába. A kísérlet során a maximális hőmérséklet meghaladta az 1700 °C-ot. A nitrogén jelenléte felgyorsította a cirkóniumkomponensek vízgőzös oxidációját. Az alacsony gőzforgalom következtében gőzhiányos állapot állt elő, és ebben az időszakban a köteg felső részén intenzív nitrogén-cirkónium reakció ment végbe.

### **5.4 A CODEX- SBO kísérlet**

Az SBO elnevezés a feszültségkiesés, ami az angol Station Black Out elnevezéséből származik. Ebben a kísérletben egy olyan balesetet szimuláltunk, amelyben a teljes feszültségkiesést követően a hidroakkumulátorokból víz áramlik a felhevült fűtőelemekre, sikeresen lehűti azt, majd az aktív hűtőrendszerek hiányában (az áramszünet még mindig tart) a víz elforr, és a zóna ismét szárazra kerül. Újra felhevül, majd néhány perc elteltével helyreáll az áramszolgáltatás, és beindulnak az aktív hűtőrendszerek [S6], [S7]. A kísérlethez használt köteg itt is hét rúdból állt, a 2, 3, 5. és a 6. rúd anyaga E110 ötvözet, az 1, 4. és 7. rúd E110G ötvözet volt (4. táblázat).

#### **5.4.1 A kísérlet végrehajtása**

A CODEX-SBO kísérlet több technológiai intézkedéssel kezdődött. A technológiai felfűtési fázis a 800 W teljesítményű külső fűtőberendezések bekapcsolásával kezdődött (68. ábra). A kazettafal és a rozsdamentes acélcső közötti térben az argon áramlási sebességét 0,15 g/s-ra állítottuk be. Erre a térrészre amiatt kell nemesgázt, esetünkben argont juttatni, hogy elkerüljük a kazettafal külsőoldali oxidációját. Az argon- és gőzáramlást a kötegen keresztül 0,5 g/s forgalommal indítottuk el (69. ábra). A vízhűtő rendszert üzembe helyeztük, a köteg teljesítményét 600 W-ra állítottuk be. A fűtés eredményeként a köteg hőmérséklete elérte az 500 °C-ot.



68. ábra: A fűtőteljesítmény és a rúd hőmérséklet alakulása a CODEX-SBO kísérletben.

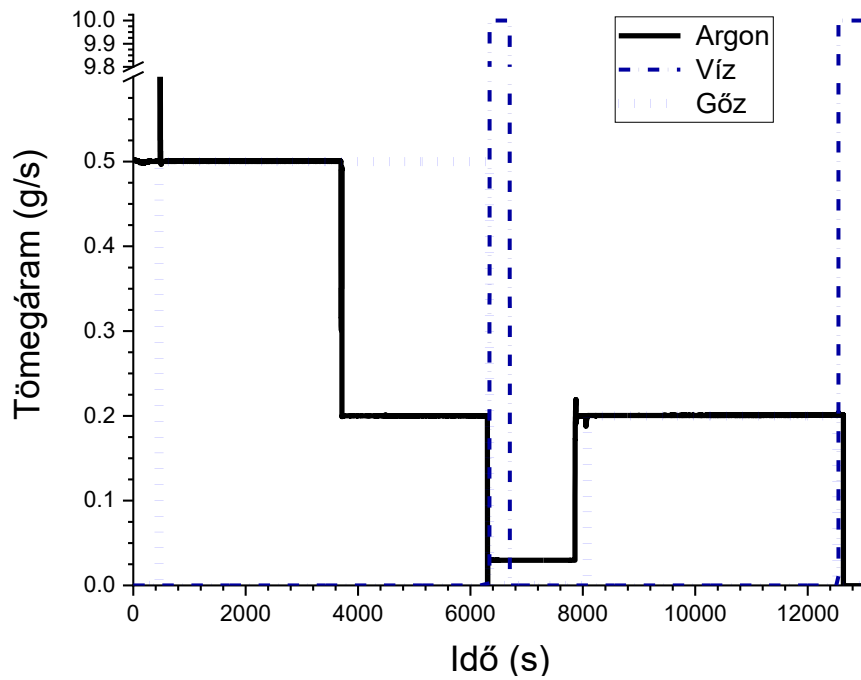
Eközben az argon forgalmát (a kötegen keresztül) 0,5 g/s-ról 0,2 g/s-ra állítottuk be, és a köteg teljesítményét fokozatosan növeltük 1200 W-ig. A középső rúd belső nyomása folyamatos volt a felfűtés során, a felhasadása ennek köszönhetően 60,1 bar és 801 °C burkolati hőmérséklet mellett történt. Ezután a teljesítményt 1100 W-ra csökkentettük, és a köteget további öt percre az elért hőmérsékleten tartottuk.

Az első lehűtés a köteg és a külső fűtőberendezés kikapcsolásával történt. A gőz és az argon áramlási sebességét nullára állítottuk, míg a vízhűtő rendszert aktiváltuk. A hűtővíz áramlási sebességét 10 g/s-ra állítottuk be. 6400 s után a mérőszakasz lehűlt, a hűtővízzel való elárasztás sikeres volt. Ezután a hűtővizet leengedtük a mérőszakaszból, és a köteg készen állt a következő felmelegítésre.

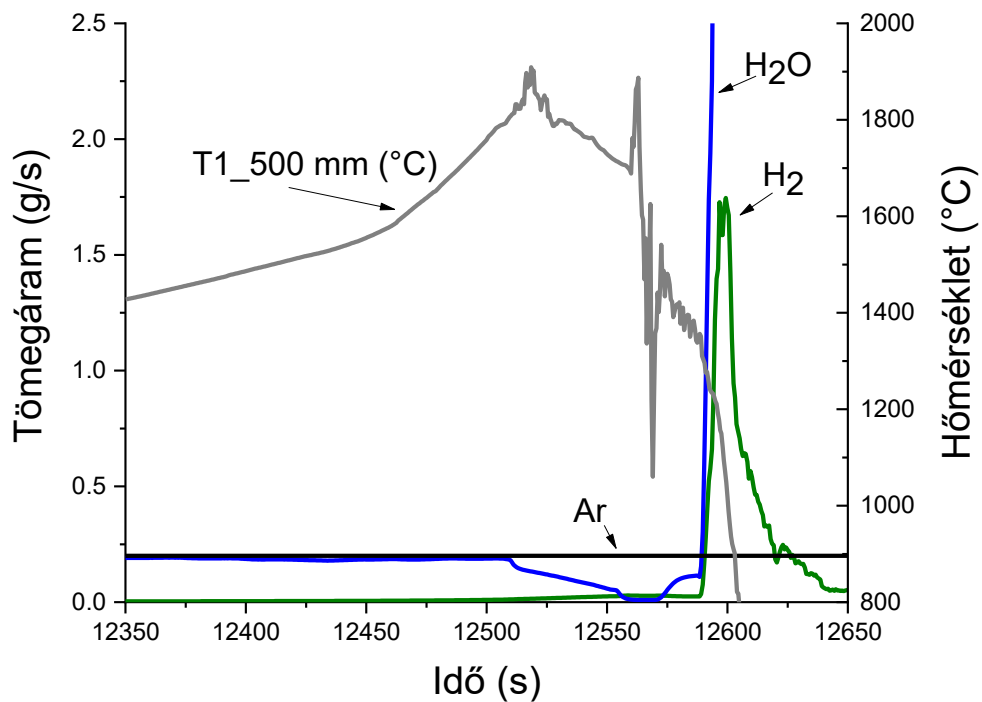
A második felfűtési fázis szintén a különböző technológiai rendszerek bekapcsolásával kezdődött. A jellemző paramétereket a kísérleti tervnek megfelelően állítottuk be: az argon- és gőz áramot 0,2 g/s-ra növeltük, a külső fűtést 800 W-ra kapcsoltuk, a kötegfűtést 600 W-tal kezdtük, amit fokozatosan 400 W-ra csökkentettünk. 10000 s után értük el az 500 °C célhőmérsékletet.

Ezután a köteg teljesítményét fokozatosan növeltük, a maximális teljesítmény 1800 W volt. A felfűtési fázis utolsó másodperceiben a rudak hőmérséklete gyorsan emelkedett. Ez összhangban volt a tömegspektrométer által jelzett hidrogéntermeléssel,

amely intenzív gőz-cirkónium reakciót mutatott (70. ábra). A kazettafalon és a köteg fölötti térben a hőmérséklet 1200 °C fölé emelkedett. A maximális hőmérséklet a köteg felső részén (500 mm-es magasságban) volt, ahol elérte az 1900 °C-ot. A hőmérséklet a köteg feletti burkolaton és a vizsgálati szakasz belsejében 1200 °C fölé emelkedett.



69. ábra: A mért gázok tömegárama a CODEX-SBO kísérletben



70. ábra: A kilépő gázok tömegárama és az 1. számú fűtőelem hőmérséklete 500 mm-es magasságban, a CODEX-SBO kísérletben.

A középső rúd legmelegebb pontjának hőmérséklete alapján látható, hogy a nagy mennyiségű hidrogén (ami a kilépő gázáramban a 70%-ot is elérte) nem a hőmérséklet megszaladáskor keletkezett, hanem az elárasztáskor (70. ábra). A kísérlet során keletkezett hidrogén teljes mennyisége 32,0 g volt.

A második lehűtést az első alkalomhoz hasonlóan 10 g/s-os hidegvíz-áramlási sebességgel végeztük, a gőz és az argon áramlás megszüntetése és a fűtés leállítása után.

#### 5.4.2 A köteg endoszkópos vizsgálata

A CODEX-SBO kísérleti kötegen endoszkópos vizsgálatokat végeztünk a kísérlet után. A PCE Instruments által gyártott PCE-VE típusú berendezéshez csatlakozó 3,9 mm átmérőjű optikai szálat be lehetett tolni felülről a köteg belsejébe a rudak között. A felső távtartórács a magas hőmérsékletű folyamatban gyakorlatilag megsemmisült, és nem akadályozta az optikai szálat, amit többször egymás után a köteg különböző rudjai között toltunk be a kötegbe. Az alsó távtartórácson törmelék gyűlt össze, ezért annál lejjebb már nem tudott jutni az optikai szál.

A vizsgálat során fényképfelvételeket és videófelvételeket készítettünk. A felvételek jól mutatták, hogy a kötegben milyen változásokat okoztak a kísérlet során végbement degradációs folyamatok.



71. ábra: A CODEX-SBO kötegről készített felvétel, ami a köteg tetejét mutatja

A felvételeken látható volt, hogy

- az 5. számú szélső rúd felső része eltörött (71. ábra),
- a köteg alsó távtartórácsán törmelék gyűlt össze (72. ábra),
- a középső rúd burkolata felfúvódott és felhasadt (73. ábra),
- az E110 ötvözetből gyártott csövek nagymértékben oxidálódtak a köteg forró szakaszán (74. ábra),
- a köteg felső részén a lehegesztett csövek és a kazettafal is jelentős mértékben oxidálódott (75. ábra).



72. ábra: A CODEX-SBO köteg alsó távtartórácsán összegyűlt törmelék



73. ábra: A CODEX-SBO köteg felhasadt középső rúdja



74. ábra: A CODEX-SBO köteg nagymértékben oxidálódott E110 csövének felülete



75. ábra: A CODEX-SBO köteg felsőrésze, a fűtőelemek lehegesztett végeivel

### 5.4.3 A köteg metallográfiai vizsgálata

Az endoszkópos vizsgálatot követően a köteget eltávolítottuk a mérőszakaszból, és epoxival rögzítettük a csövek pozícióját. Ezt követően keresztmetszeteket készítettünk a további vizsgálatokhoz. A középső rúdnál 550 mm-nél a burkolat felhasadását figyeltük meg (76. ábra).



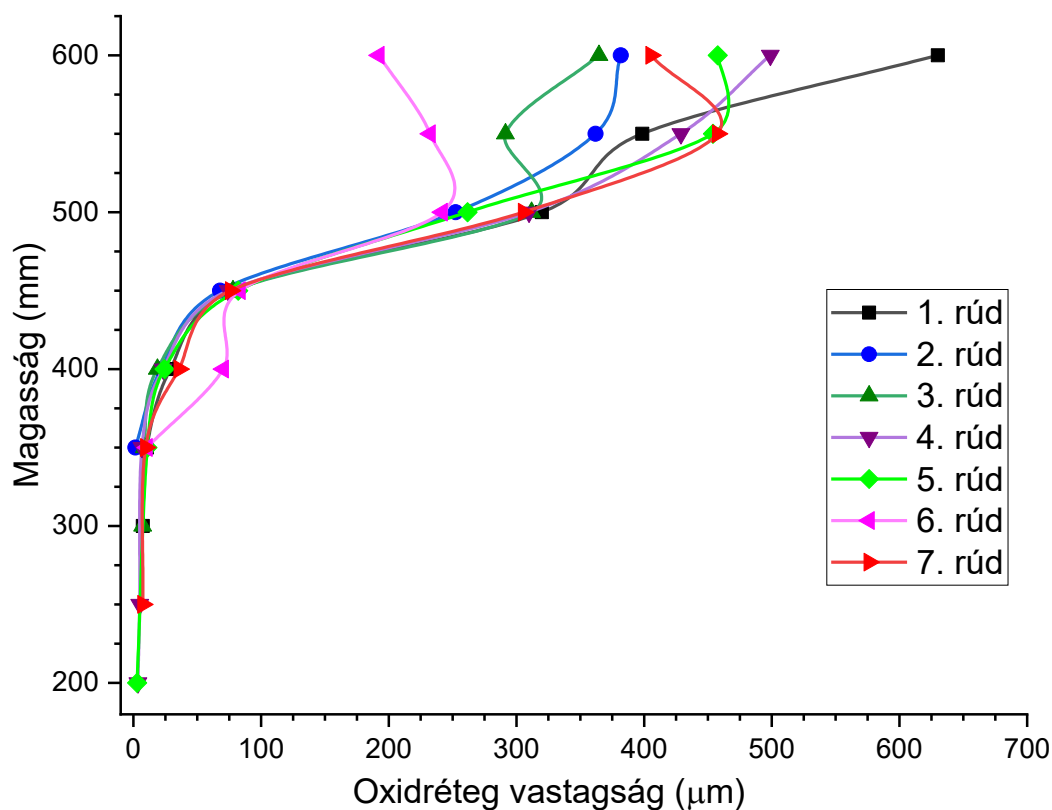
76. ábra: A CODEX-SBO köteg vízszintes metszete 550 mm magasságban (alsó és felső metszet).

### 5.4.4 Az oxidréteg vastagsága a fűtőelempálcákon

Az oxidréteg vastagságát minden egyes fűtőelempálcánál minden keresztmetszetenél több helyen megmértük. A köteg felső részén (450-600 mm magasság között) a fűtőelempálcák külső felületén az oxidréteg vastagságának átlagos értéke 400-500  $\mu\text{m}$  volt (77. ábra). A köteg alsó részén (450 mm-es magasság alatt) a fűtőelem-burkolatok kevésbé voltak oxidáltak, a jellemző oxidrétegvastagságok 100  $\mu\text{m}$  alatt voltak.

A különböző E110 ötvözetek oxidációs viselkedése hasonló volt a burkolatok magas hőmérsékletet elért szakaszain. A pálcák kevésbé oxidálódott alsó részén a nem szivacsos technológiával készült E110 csöveken megfigyelhető volt leváló oxidréteg.

A burkolatok belső felületén oxidréteg csak a középső rúdnál volt megfigyelhető. Ez annak köszönhető, hogy a középső rúd a kísérlet során megsérült. A felfűvódás és a felhasadás miatt a belső felület oxidációja 550 mm-es magasság felett következett be. Ez a belső oxidréteg minden bizonnyal a felhasadás után keletkezett, amikor a gőz a fűtőelem belsejébe jutott és oxidálta a belső felületét. Az belső felületen az oxidréteg átlagos értéke 40-80  $\mu\text{m}$  volt [S6][S7].



77. ábra: A CODEX-SBO fűtőelem pálcák külső felületének oxidrétegvastagsága.

#### 5.4.5 A CODEX-SBO kísérlet összefoglalása

A CODEX-SBO kísérletben egy olyan atomerőművi balesetet szimuláltunk egy hét rúdból álló elektromosan fűtött köteggel, amelyben a passzív vészhűtőrendszer először sikeresen lehűti a zónát, de utána ez a hűtővíz is elforr és a kazetták ismét szárazra kerülnek. A kísérlet két fázisból állt. Az első fázisban 800 °C hőmérsékletet értünk el az elárasztás előtt, a középső rúd felhasadt a magas belső nyomás miatt. A második fázisban a maximális hőmérséklet elérte az 1900 °C-ot és a cirkónium oxidációja következtében 32,0 g hidrogén keletkezett. A köteg a mérés után jelentős mértékű degradációt mutatott: az egyik rúd eltört, egy másik felhasadt, törmelék keletkezett, és hullott alá a felső szegmensből. Az E110 típusú csöveken felhasadó oxidréteg keletkezett.

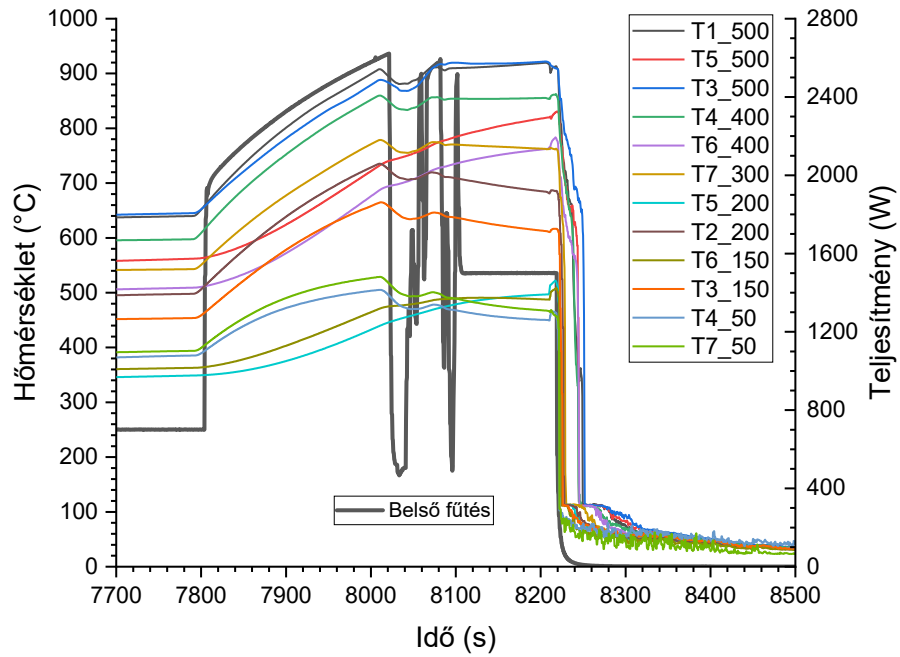
## 5.5 A CODEX- SLIM kísérlet

A Paksi Atomerőműben megkezdték az áttérést az eddig használatos 9,1 mm külső átmérőjű fűtőelemekről a 8,9 mm-es (ún. SLIM) fűtőelemekre. Ez a változás gazdaságosabb üzemanyagfelhasználást tesz lehetővé, de a vékonyabb falvastagság felvetett biztonsági kérdéseket is.

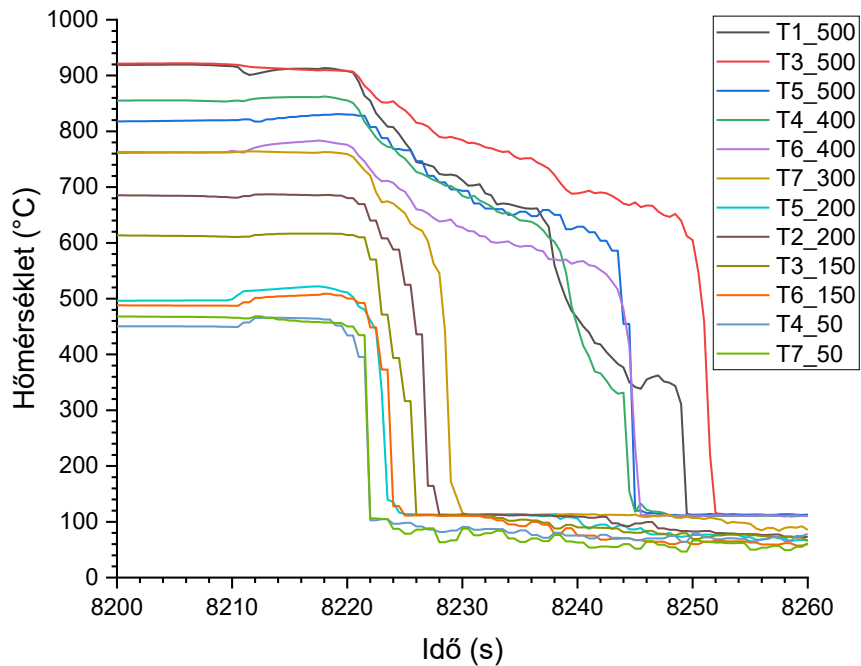
A CODEX-SLIM kísérlet célja az volt, hogy értékeljük a vékonyfalú burkolat hatását a fűtőelemek viselkedésére tervezési üzemzavari körülmények között. A jelenleg használatos, vastagfalú burkolatokkal elvégzett és az 5.1 alfejeztben bemutatott CODEX-LOCA-200 és CODEX-LOCA-200B kísérletekkel az erőmű primerkörü csőtöréssel induló hűtőközegvesztéses-üzemzavarát szimuláltuk, amilehetőséget adott a kétféle burkolat közvetlen összehasonlítására is. A kísérlethez használt köteg itt is hét rúdból állt, a rudak anyaga E110G SLIM ötvözet volt (4. táblázat).

### 5.5.1 A kísérlet végrehajtása

A köteg előzetes, technológia felfűtése után, a gyors felfűtési szakaszban 2000-2600 W elektromos teljesítményt adtunk rá a kötegre. Ezt a teljesítményt addig alkalmaztuk, amíg a köteg legmagasabb hőmérsékletű pontja el nem érte a tervezett 900 C-ot. Ekkor kézi vezérléssel úgy változtattuk a teljesítményt, hogy a köteg legmagasabb hőmérsékletű pontja 3 percig megtartsa ezt az értéket. A kötegen mért legmagasabb hőmérséklet 921,8 °C volt (78. ábra). A mérés utolsó szakaszában vízzel árasztottuk el a köteget (79. ábra), és ezzel egyidőben a köteg fűtését és a külső elektromos fűtést lekapcsoltuk. Az elárasztás során a keletkező hidrogén aránya jelentősen megnőtt a kilépő gázban, ami jelezte a cirkónium-vízgőz reakciót.



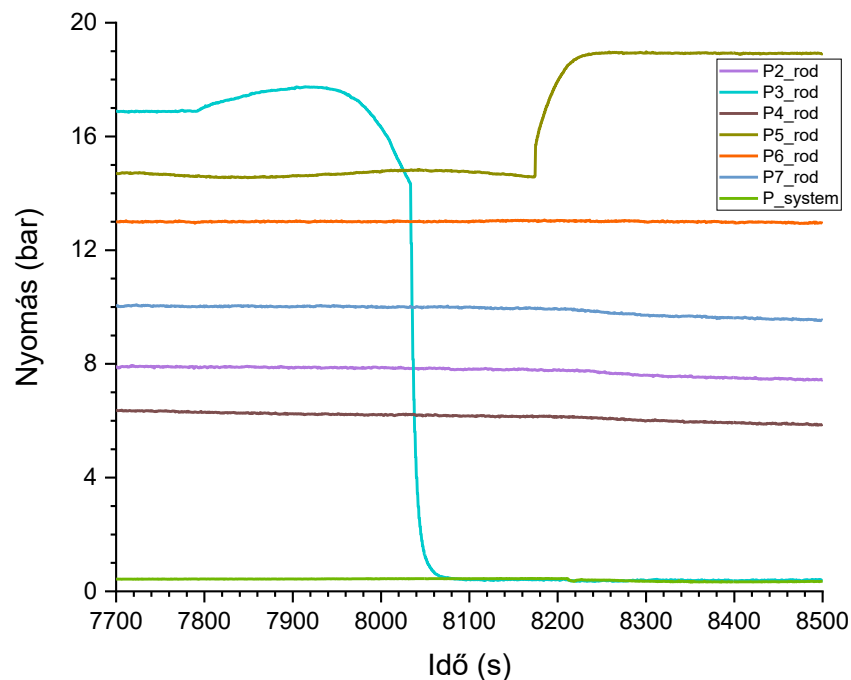
78. ábra: Hőmérsékletek és teljesítmény a tranzienst során



79. ábra: A hőmérsékletek alakulása az elárasztás során

A kísérlet során a fűtőelemek belső nyomása a felmelegedés hatására (900 °C körüli hőmérsékleten) észrevehetően megnőtt. A legmagasabb nyomást, 17,74 bart a 3-as számú rúd érte el. A kísérlet 8033. másodpercében a 3-as cső belső nyomása gyorsan lecsökkent a rendszernyomás értékére, ami egyértelműen jelzi, hogy felhasadt (80. ábra). A többi rúdon ennél alacsonyabb nyomások alakultak ki. Az 5-ös rúd nyomását manuálisan 8210 másodperckor megnöveltük, de nyomáscsökkenést nem tapasztaltunk, ugyanis annak

maximális hőmérséklete – alacsonyabb volt, mint a felhasadt, 3-as csőé – 830,9 °C volt. A 3-as számú rudat leszámítva valamennyi rúd megőrizte épségét és nem hasadt fel a kísérlet során.



80. ábra: Nyomások a tranzien্স fűtési szakasz és az elárasztás között

A keletkezett hidrogén mennyiségét a tömegspektrométer mérése alapján határoztuk meg. A teljes tranzien্স során keletkezett hidrogén tömege az elárasztás pillanatáig 0,674 g, a teljes elárasztás végéig pedig még további 0,014 g hidrogén fejlődése volt detektálható. Tehát a tömegspektrométer mérése alapján összesen 0,688 g hidrogéngáz keletkezését regisztráltuk a mérés során, ami 8448 cm<sup>3</sup>-nek felel meg (standard körülmények között).

### 5.5.2 A köteg vizsgálata

A köteg lehűlését követően kiszereztük azt a mérőszakaszból, majd a köpeny eltávolítását követően a köteget vizuális megfigyelésnek vettettük alá. A felső fej leszerelése után endoszkóppal képeket készítettem a köteg állapotáról. Csakúgy, mint a CODEX-SBO kísérletben (5.4.2 fejezet), itt is be tudtuk vezetni a PCE Instruments által gyártott PCE-VE típusú berendezéshez csatlakozó 3,9 mm átmérőjű optikai szálát felülről a köteg belsejébe a rudak között, ahol azt a felső távtartó rács lehetővé tette ezt (81. ábra).

Az összes rúd, a kazettafal és a távtartó rácsok is hiánytalanul, törésmentesen túléltek a kísérletet. Jól látható, hogy 500-550 mm magasságban felfúvódott és felhasadt

a 3-as rúd (82. ábra). Továbbá jellemző, hogy a nagyobb magasságokban, ahol magasabb volt a hőmérséklet, fehér színű oxid szigetek alakultak ki.



81. ábra: Endoszkópos felvétel a CODEX-SLIM köteg felső részéről



82. ábra: Endoszkópos felvétel a köteg belsejében, a felhasadt burkolatról

A kísérlet után a köteggel több roncsolásmentes és roncsolásos vizsgálatra is sor került. A Miskolci Egyetemen végzett CT vizsgálatok során előállított nagymennyiségű adat feldolgozása után a köteg pontos geometriáját, és a pálcák egymáshoz képesti elhelyezkedését könnyen rekonstruálni lehetett.

A prompt-gamma aktivációs leképezés (PGAI) roncsolásmentes nukleáris analitikai módszer, amellyel a besugárzott mintatérfogat átlagos elemi- és izotópösszetétele állapítható meg. A mérés során a köteget lassú neutronokkal sugározták be és a keletkező gammasugárzás elemzése alapján következtettek annak összetételére. Az elemanalízist megelőzően a neutronradiográfiai (NR) technikát alkalmazták a minta térbeli megjelenítéséhez. A méréseket az EK által üzemeltett NIPS-NORMA mérőhelyen végezték, ami a Budapesti Kutatóreaktor hidegneutron-forrásához kapcsolódó neutronvezető végén található.

A burkolatokban elnyelt hidrogén mennyiségi meghatározását roncsolásos módszerrel is elvégezték a munkatársaim, ELTRA® ELEMENTRAC OH-p típusú, forró extrakciós elven működő, oxigén-hidrogén elemanalizátor segítségével. A PGAI-NR mérési eredményekkel összhangban, a 3. pálca hossza mentén a hidrogéntartalom dupla maximumot (a kb. 510 mm-nél bekövetkezett felhasadás alatti és feletti hidrogéndúsulást) mutatott és a maximumok megjelenési helye is közel azonos volt. Mivel a felfűvódás környékén volt a legmelegebb a pálca, így ott nem tudott jelentős mennyiségű hidrogén elnyelődni, ezért a szekunder hidridizáció inkább a pálca hidegebb részein okozott hidrogéntartalom-növekedést.

A köteg fűtőelemeivel – a roncsolásmentes vizsgálatok után – a laboratóriumunkban került sor a négyponos hajlítóvizsgálatokra. A vizsgálatok során mind a hét burkolat képlékeny alakváltozást mutatott, azaz nem ridegedett el. A terhelés hatására a csövek meggömbültek, majd amikor a terhelést megszüntették, részben kiegyenesedtek. Ezt azt jelentette, hogy a képlékenységen túl jelentős rugalmasság is jellemezte a fűtőelemek állapotát a LOCA tranziens után. Az utóbbi három vizsgálat részletes eredményei nagy terjedelmük miatt nem szerepelnek a dolgozatban, ezeket a [S8][S9] publikációk tartalmazzák.

### **5.5.3 A CODEX-SLIM kísérlet összefoglalása**

A CODEX-SLIM kísérletet elektromosan fűtött, hét rúdból álló a Pakson működő VVER-440 reaktoroknak megfelelő geometriai elrendezésű köteggel hajtottuk végre. A vékonyfalú, szivacsos alapanyagból gyártott burkolatból (E110G SLIM) készített köteg maximális hőmérséklete 921,8 °C-ot ért el. Az eredeti terveknek megfelelően három percig volt a burkolat hőmérséklete 900 °C fölött vízgőz atmoszférában. A kísérletet hidegvizes-elárasztás zárta le. A belső nyomással terhelt fűtőelemek közül egy hasadt fel 17,74 bar nyomáson. A többi fűtőelem megőrizte épségét, azokban alacsonyabb volt a

nyomás, vagy a burkolat hőmérséklete. A kilépő gáz tömegspektrométeres elemzése 0,688 g hidrogéngáz keletkezését jelezte, ami nagyon szerény oxidációt jelent.

A kísérlet után a köteggel több roncsolásmentes és roncsolásos vizsgálatra is sor került. A köteg vizuális és endoszkópos vizsgálata alapján azonosítható volt a felhasadt burkolat. A burkolatcsövek felületén nem alakult ki leváló oxidréteg. A távtartórácsok is épek maradtak. A CT vizsgálatok során előállított nagymennyiségű adat feldolgozása lehetővé tették a burkolatok geometriájának és falvastagság-eloszlásának részletes jellemzését. A PGAI-NR és a forró extrakciós mérések jelezték a hidrogén feldúsulását a felhasadt burkolaton, a felhasadás környezetében. A pálcák hidrogéntartalma minden esetben 500 ppm alatt maradt. A négy pontos hajlítóvizsgálatok szerint a burkolatok nem csak képlékenyek maradtak, de rugalmasságuk egy részét is megőrizték.

A Paksi Atomerőmű új üzemanyagának burkolatával végzett kísérlet szerint a fűtőelemek megőrzik épségüket a hűtőközeg-vesztéses tervezési üzemzavar során. A burkolat csak kismértékben oxidálódik és felhasadása csak nagyon magas belső nyomás esetén léphet fel.

## 5.6 A CODEX- ATF kísérlet

Az atomerőművi baleseti folyamatot szimuláló CODEX-ATF mérés lehetőséget adott arra, hogy közvetlen információkat kapjunk az optimalizált ZIRLO™ ötvözet viselkedéséről magas hőmérsékletű vízgőzben és összehasonlíthassuk a hagyományos és a balesetálló fűtőelemek viselkedését baleseti körülmények között. A kísérlet forgatókönyve szerint a maximum hőmérséklet meg fogja haladni azt a tartományt, ahol megfigyelhető a krómbevonatos burkolat előnyös oxidációs viselkedése, és már felléphet a króm-cirkónium eutektikumképződés is, ami kedvezőtlenül befolyásolhatja a fűtőelemek tönkremenetelét. Ilyen ötvözetű burkolattal eddig még csak néhány hazai mérésre került sor [20][21].

A NAÜ ATF-TS projektje keretében a prágai Cseh Műszaki Egyetemről (CTU) kapott az HUN-REN EK krómbevonatos („balesetálló”), valamint bevonat nélküli optimalizált ZIRLO™ csöveket is (83. ábra). A kísérleti kötegben a hét fűtött rúdból három bevonat nélküli, négy pedig krómbevonatos csőből készült. A középső cső (1. számú) krómbevonatos és a körülötte elhelyezkedő csövek közül felváltva helyezkedtek el a bevonat nélküli (2, 4, 6. számú) és a krómbevonatos pálcák (3, 5, 7. számú). A fűtőelem csövek hossza a kötegben 630 mm (4. táblázat).

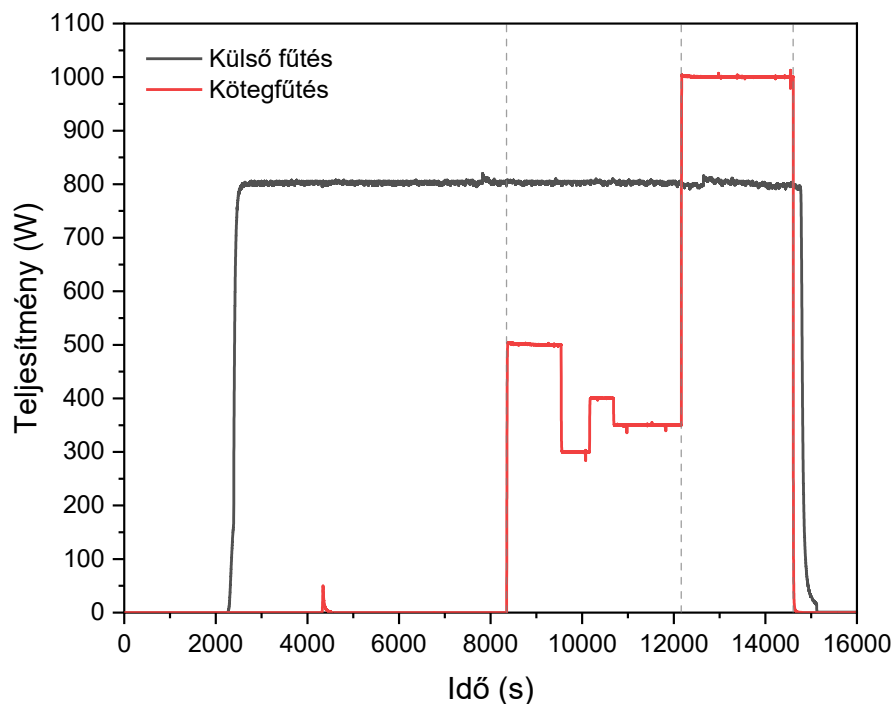


83. ábra: Optimalizált ZIRLO™ (alsó) és krómozott optimalizált ZIRLO™ (felső) burkolatcső

### 5.6.1 A CODEX-ATF kísérlet végrehajtása

#### Előkészítés

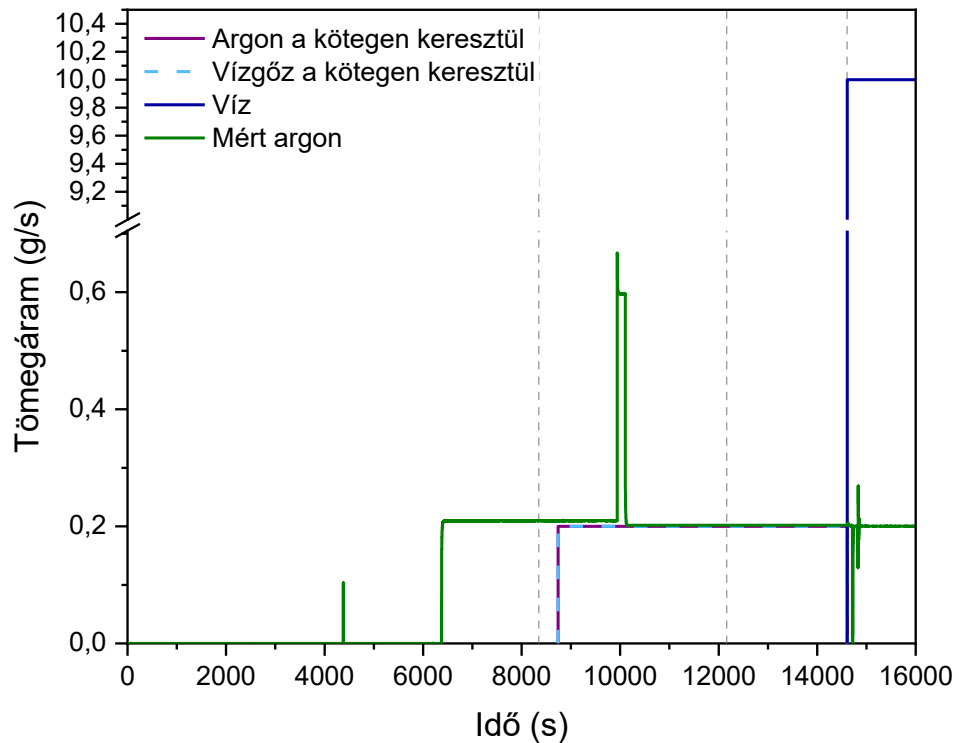
A kísérlet a gőzfejlesztő üzembe helyezésével kezdődött. A külső fűtést 2259 s elteltével kapcsoltuk be, a 800 W-os teljesítményt pedig 2631 s-nál érte el (84. ábra). Az argon betáplálást a gőzfejlesztőbe 0,2 g/s forgalommal 6374 s elteltével indítottuk (85. ábra).



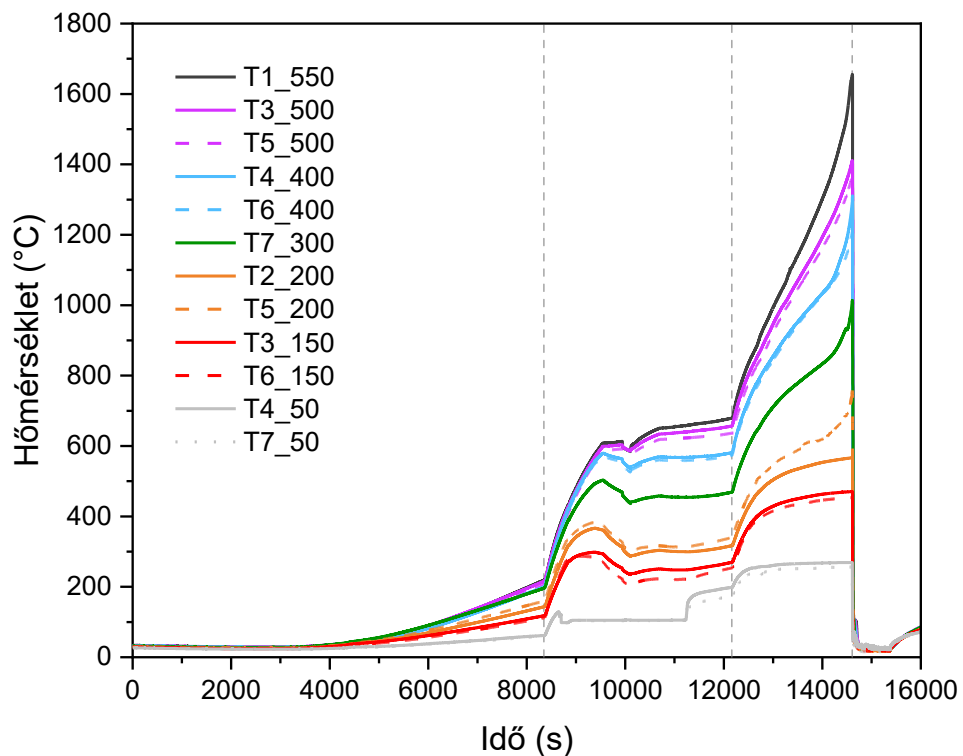
84. ábra: A CODEX-ATF kísérlet teljesítménytörténete

A maximális hőmérsékletet (428 °C) ebben a fázisban a rozsdamentes acélcsőben mértük 850 mm-es magasságban, a külső fűtést adó fűtőszál közelében. A kazettafal és a fűtőelem-rudak maximális hőmérséklete 230 °C, illetve 220 °C alatt maradt (86. ábra).

A fűtőelemrudak belső nyomását egyesével állítottuk be 20-30 bar közé 5112 s elteltével. Egyes rudak nyomása szivárgás miatt csökkent, ezért az adott rúd belső nyomását a hozzá tartozó puffertartály segítségével kellett fenntartani.



85. ábra: Argon, gőz és víz tömegáramok a CODEX-ATF kísérlet során



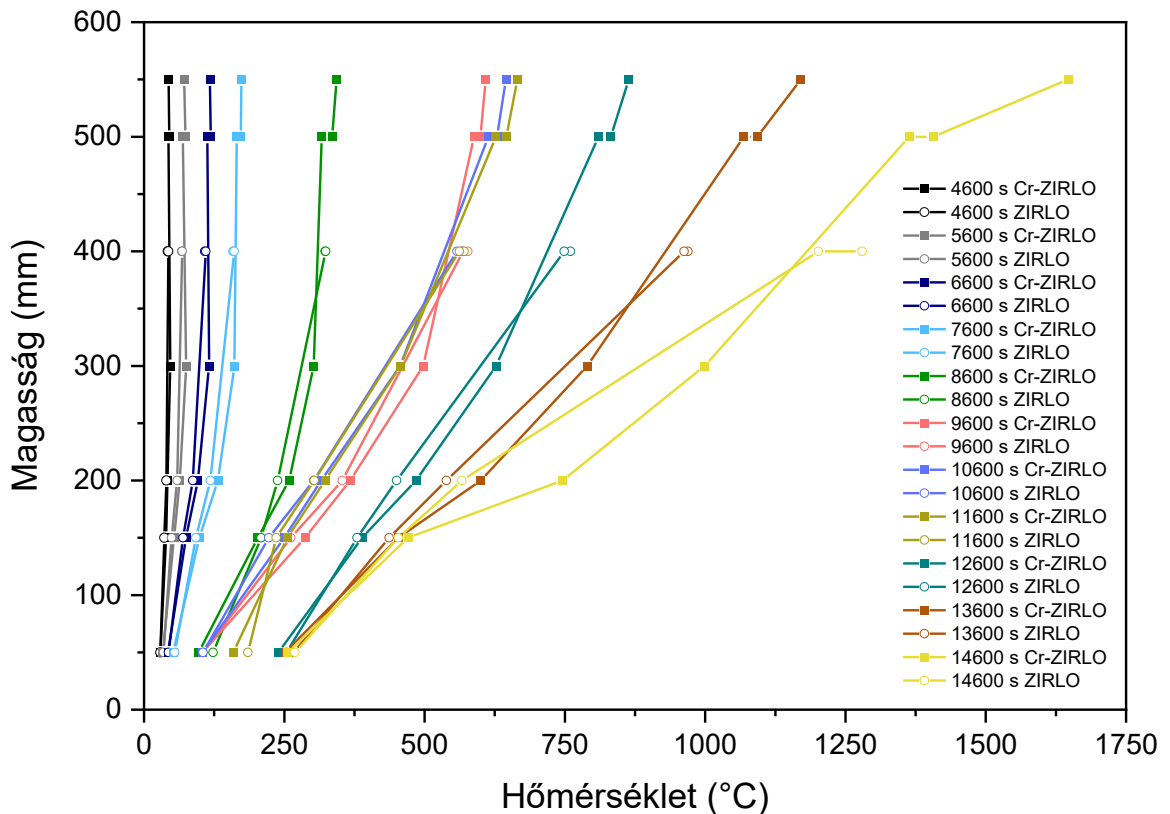
86. ábra: Burkolat-hőmérsékletek a CODEX-ATF kísérlet során

## Felhevítés 300-500 W kötegteljesítménnyel

A köteg fűtése 8349 s-nál kezdődött és az 500 W-os teljesítményt 8374 s-nál érte el. A gőz és argon betáplálása a gőzfejlesztőből a mérőszakaszba 8739 s után kezdődött, mindkettő 0,2 g/s tömegárammal. A felmelegedési sebesség korlátozása érdekében 9559 s elteltével a teljesítményt 300 W-ra csökkentettük. A következő teljesítményszintet (400 W) 10179 s-nál értük el, és 10701 s-nál 350 W-ra csökkentettük. A fázis végén (12165 s) a maximális hőmérsékletet (679 °C-ot) az 1-es rúdon, 550 mm magasságban mértük.

## Felhevítés 1000 W kötegteljesítménnyel

A köteg teljesítményét 12175 s-nál 1000 W-ra növeltük, és ezt a teljesítményt 14613 s-ig tartottuk, így biztosítva a fűtőelem-rudak folyamatos hőmérséklet emelkedését. A maximális hőmérsékletet 550 mm magasságban az 1-es rúdon mértük, 1655 °C értékkel. Az 1400 °C-os célhőmérsékletet 500 mm-en mértük, 400 mm-es magasságban pedig 1300 °C-ot értünk el. A köpeny maximális hőmérséklete 1300 °C körül volt, 500 mm-es magasságban. A köteg teteje érte el a legmagasabb hőmérsékletet a kísérlet során, az elárasztás előtt egy nagyon meredek axiális irányú hőmérséklet gradiens volt megfigyelhető a kötegen (87. ábra).



87. ábra: A fűtőelemrudakon mért axiális hőmérsékleteloszlás a CODEX-ATF kísérlet során

## Elárasztás

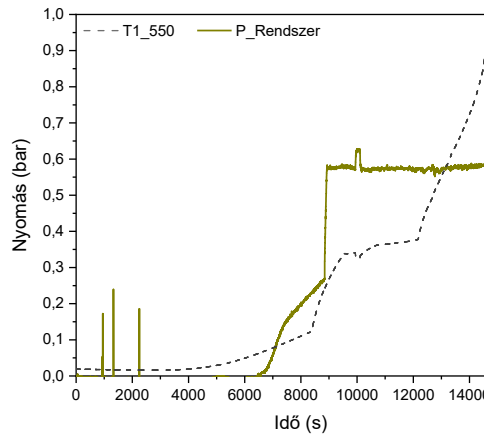
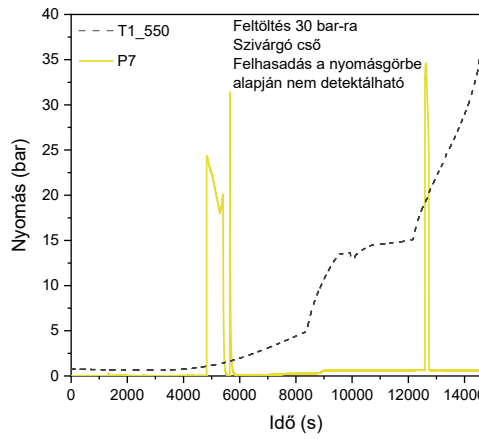
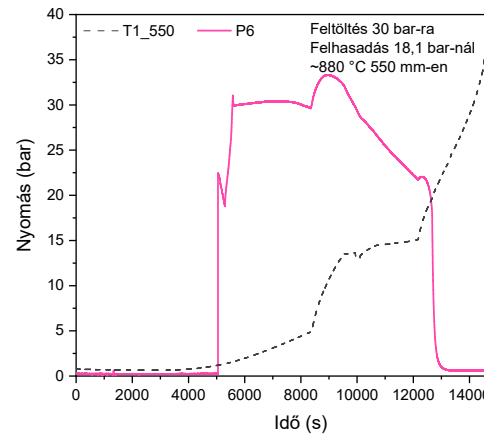
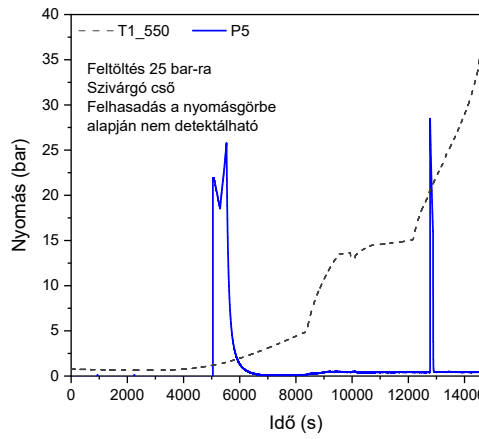
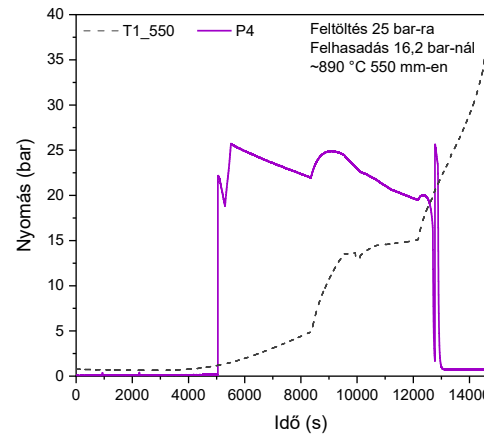
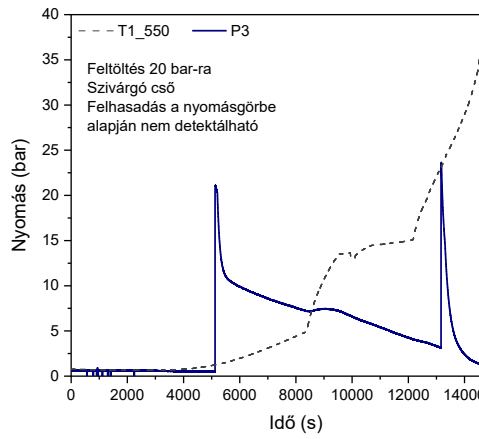
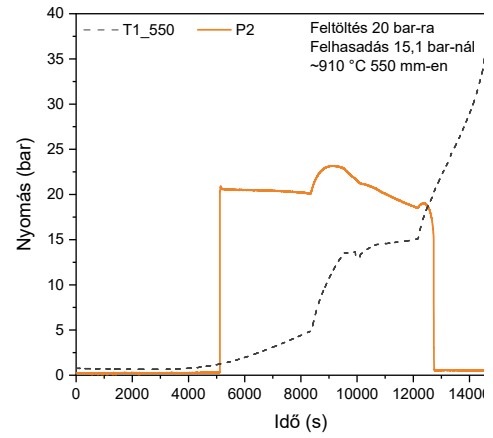
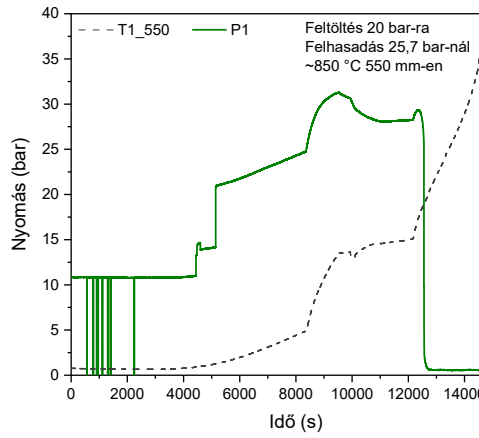
A végső, elárasztási szakasz a hűtővíz betáplálásával kezdődött a köteg aljánál, a köteg fűtésének (14611 s) és a külső fűtésnek (14774 s) a kikapcsolásával párhuzamosan. A köteg válasza a hőmérsékletek gyors csökkenése volt, a köteg 14750 s-nál hűlt le vízhőmérsékletre (86. ábra).

### 5.6.2 A kísérlet főbb eredményei

A burkolatok többsége 12500-12800 s között hasadt fel (88. ábra). A 9. táblázatban összefoglaltam a pálcák mért felhasadási nyomásait és a hozzájuk tartozó mért hőmérsékleteket 550 mm magasságban. Az 1-es rúd 25,7 bar nyomásnál hasadt fel (88. ábra, 1. sor, bal oldal), míg a maximális nyomás a fűtőelemrúdban 31,3 bar volt (valószínűleg a felfűvódás kezdete előtt). A 2-es rúd 15,1 barnál hasadt fel, és a maximális nyomása 23,2 bar volt (88. ábra, 1. sor, jobb oldal). A 3-as rúd felhasadását nem lehetett egyértelműen kimutatni a mért nyomások alapján, a rúd szivárgása miatt (88. ábra, 2. sor, bal oldal). Azonban a köteg keresztmetszetének vizsgálata során megfigyelhető volt, hogy a rúd a kísérlet során felfűvódott, és a belső felülete oxidálódott. A 4-es rúd 16,2 barnál hasadt fel, a maximális nyomása pedig 24,9 bar volt (88. ábra, 2. sor, jobb oldal).

9. táblázat: A pálcák felhasadási hőmérséklete és nyomása

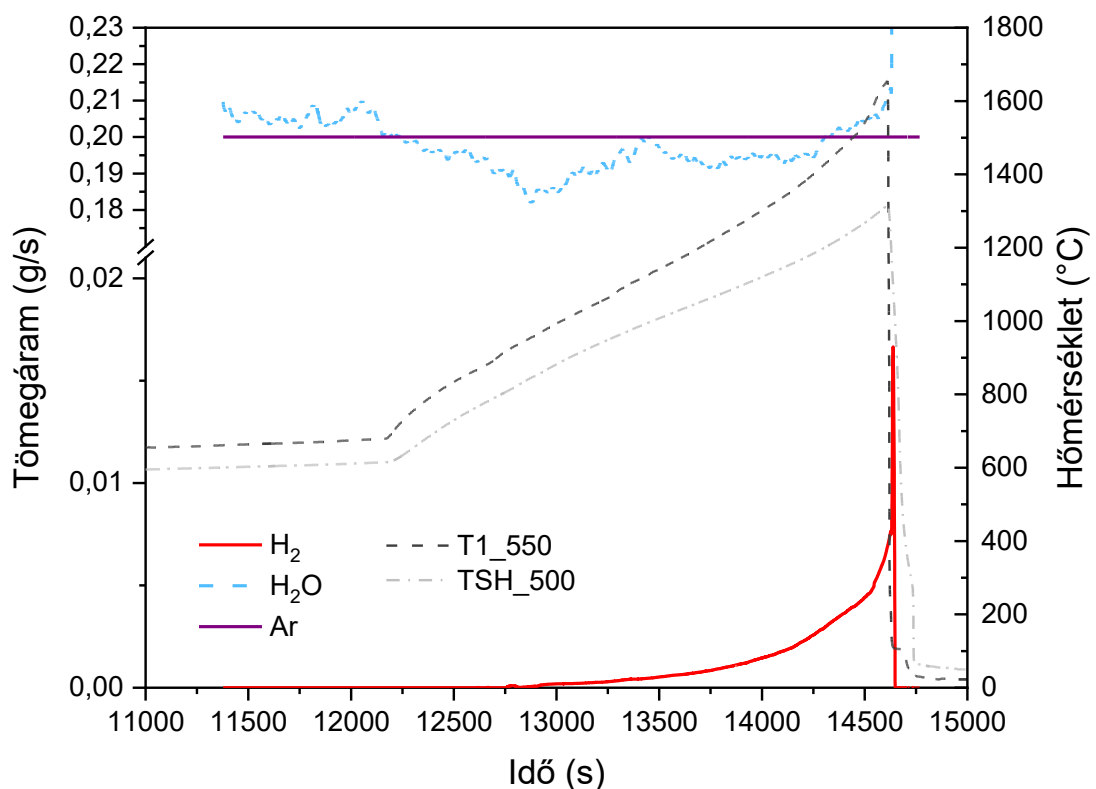
Pálcák sorszám és típusa	Felhasadás		Maximális nyomás
	Hőmérséklet (550 mm)	Nyomás	
	°C	bar	bar
1. (krómozott optZIRLO™)	851,8	25,7	31,3
2. (opt. ZIRLO™)	907,0	15,1	23,2
3. (krómozott optZIRLO™)	n.a	n.a	23
4. (opt. ZIRLO™)	893,9	16,2	24,9
5. (krómozott optZIRLO™)	n.a	n.a	27,6
6. (opt. ZIRLO™)	883,5	18,1	33,3
7. (krómozott optZIRLO™)	877,4	n.a	34,3



88. ábra: A fűtőelem rudak és a rendszer nyomása a CODEX-ATF kísérlet során

Az 5-ös rúd kis mértékben szivárgott (88. ábra, 3. sor, bal oldal). A köteg keresztmetszetének vizsgálata kimutatta, hogy az 5-ös rúd csak nagyon kis mértékben fűvódott fel, valószínűleg a rúd erős szivárgása miatt, viszont valahol felhasadt, mert a cső belső felülete oxidálódott. A 6-os rúd 18,1 barnál hasadt fel, a maximális nyomása pedig 33,3 bar volt (88. ábra, 3. sor, jobb oldal). A 7-es rúd szintén szivárgott, ezért a felhasadását nem lehetett egyértelműen kimutatni a mért nyomások alapján (88. ábra, 4. sor, bal oldal). A köteg keresztmetszetének vizsgálata kimutatta, hogy a 3-as rúdhhoz hasonlóan ez a rúd is felfűvódott és belső felülete oxidálódott. A rendszernyomás a kísérlet alatt 0,6 bar volt (88. ábra, 4. sor, jobb oldal).

Számottevő hidrogén mennyiség 12750 s-tól jelent meg a kilépő gázban (89. ábra), amikor a burkolat és a köpeny hőmérséklete 400 mm felett elérte a  $\approx 800$  °C, illetve a  $\approx 700$  °C értéket. A kísérlet során keletkezett hidrogén teljes mennyisége 2,9 g volt.



89. ábra: Kilépő gázok tömegárama a CODEX-ATF kísérlet során

### 5.6.3 A köteg endoszkópos vizsgálata

A CODEX-ATF kötegen endoszkópos vizsgálatot végeztünk a kísérlet után. A mérőszakasz felső részét eltávolítottuk a kísérleti berendezésből, így hozzáférhetővé vált a köteg teteje. Ahogy azt a korábbi ismertetett kísérletek esetében tettük ((5.4.2 fejezet),

most is a PCE Instruments által gyártott PCE-VE típusú berendezéshez csatlakozó 3,9 mm átmérőjű optikai szálát toltuk be felülről a köteg belsejébe a rudak között. A felső távtartórács a magas hőmérsékletű folyamatban gyakorlatilag megsemmisült. A felfűvódott rudak közé törmelék gyűlt, ezért nem tudott mélyebbre jutni az optikai szál (90. ábra).



90. ábra: A degradálódott CODEX-ATF köteg felülnézeti képe

A köteg felső részéről fényképfelvételeket és videófelvételeket készítettünk. A felvételek jól mutatták, hogy a kötegben milyen változásokat okoztak a kísérlet során végbement degradációs folyamatok. A felvételeken látható volt, hogy:

- a 3. és 4. számú rúd felső része eltörött (90. ábra, bal oldal),
- a rudak felfűvódott részeinél törmelék gyűlt össze,
- a köteg felső részén a lehegesztett csövek és a kazettafal is jelentős mértékben oxidálódott (91. ábra).



91. ábra: A CODEX-ATF köteg felső része: a fűtőelemek lehegesztett végei és a kazettafal

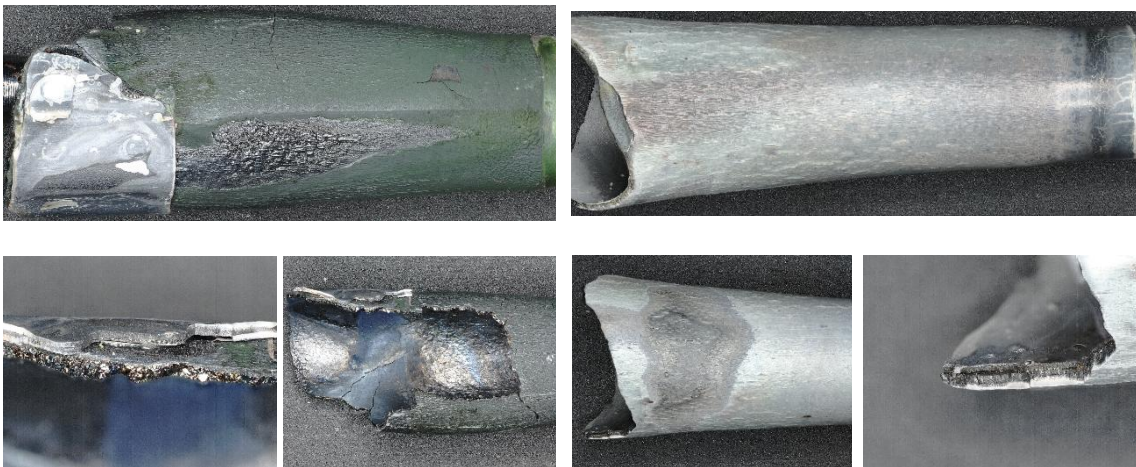
### A CODEX-ATF kötegből készített mintadarabok

Az endoszkópos vizsgálat során a két törött fűtőelemrúd darabot: a 3. és a 4. számú fűtőelemrudak körülbelül 4 cm hosszú végeit ( $\approx 590-630$  mm,  $T_{\max} > 1350$  °C)

eltávolítottunk a CODEX-ATF köteg tetejéről, hogy az elektronsugaras vizsgálatokhoz megfelelően kis mintadarabokat tudjunk előállítani. Mindkét fűtőelemrúd felfűvódott és felhasadt, valamint a belső felületük részben oxidálódott.

A krómozott optZIRLO™ burkolat cső Cr bevonatának névleges vastagsága 18 µm. A 3. számú krómbevonatos optZIRLO™ fűtőelemrúd felületén zöldes színű Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> képződött (92. ábra). A mintán a „krokodilbőr” morfológia is megfigyelhető, ami azt jelenti, hogy a burkolat maximális hőmérséklete lokálisan elég magas volt (>1300 °C) a Zr-Cr eutektikum képződéshez. A 3. számú fűtőelemcső és a körülötte lévő szerkezeti anyagok (távtartó rács) valószínűleg megolvadtak. A belső oxidréteg a kékesfekete színe alapján nagyon vékony lehet.

A bevonat nélküli optZIRLO™ burkolat cső (4. számú fűtőelemrúd) felületén szürkésfehér ZrO<sub>2</sub> réteg látható (93. ábra). A belső felületén megfigyelhető fehér-szürke-fekete oxidréteg magasabb fokú oxidációra utal, mint a krómbevonatos optZIRLO™ burkolat cső esetén. Érdekes módon ennek a csőnek a fala két rétegre szakadt.



92. ábra: A 3. számú fűtőelemrúd felső vége (krómbevonatos optZIRLO™)

93. ábra: A 4. számú fűtőelemrúd felső vége (optZIRLO™)

A két törött fűtőelemrúd-darab eltávolítása után a CODEX-ATF köteg sérült szerkezetét műgyantával történő kiöntéssel rögzítettük. A gyantával kiöntött teljes köteget először a Miskolci Egyetem Fémteni és Képlékenyalakítási Intézeti Tanszékére küldtük komputertomográfias vizsgálatok céljából. Ezután a köteget 1 és 5 cm közötti szegmensekre vágtuk az optikai és elektronmikroszkópos vizsgálatokhoz.

#### 5.6.4 A köteg metszeteinek optikai és elektronmikroszkópos vizsgálata

A CODEX-ATF köteg felső, 410 és 630 mm közötti szakaszát 30 mm-es szeletekre, a 410 mm alatti szakaszt pedig 50 mm-es szeletekre vágtuk. Ezen kívül készítettünk még egy 10 mm-es szeletet is 590 és 600 mm között. A síkra csiszolt és polírozott metszeteket Olympus GX53 típusú optikai mikroszkóppal vizsgáltuk.

A CODEX-ATF köteg egyes mintáinak elektronsugaras vizsgálatához a minta méretétől függően kétféle készüléket használtunk.

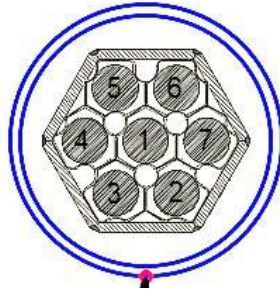
A maximum 15 mm magas minták esetében az elektronsugaras vizsgálatokat egy ThermoScientific Scios 2 típusú pásztázó elektronmikroszkóppal (SEM) végeztük. A 30 mm magas minták esetében a vizsgálatok Hitachi TM4000 Plus típusú asztali elektronmikroszkópon készültek. A képalkotás és az elemanalitika (pontanalízis és elemterkép) során 15 kV gyorsítófeszültséget alkalmaztunk. A kérdés jellege (elemeloszlás) miatt a képek BSE üzemmódban készültek.

A CODEX-ATF köteg keresztmetszeti csiszolatai és a csövek számozása a 94. ábrán látható.

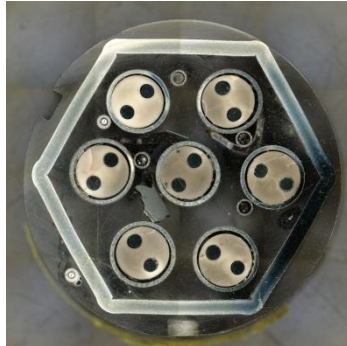
#### 410 – 470 mm

410 és 470 mm közötti magasságban a burkolatok maximális felületi hőmérséklete  $\approx 1200$  és  $1400$  °C között változott. A nem krómozott burkolatokon egyenletes, oszlopos szerkezetű  $ZrO_2$  réteg, alatta pedig  $\alpha$ -Zr(O) réteg keletkezett. A  $ZrO_2$  réteg csak a burkolat felfűvódása miatt töredezett.

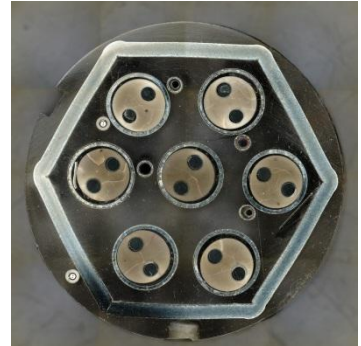
A krómozott burkolatok közül az 1., 3. és 7. számú csövek jelentősen felfűvódtak. Ezekben az esetekben a krómréteg töredezetté vált, és a krómréteg repedésein keresztül lokálisan/pontszerűen indult meg a cirkónium oxidációja a krómréteg alatt (95. ábra). Az 5. számú cső nem fűvódott fel (95. ábra), így ezen a csövön a krómréteg ép maradt, és az oxigén csak diffúzióval juthatott be a cirkónium fémbe. Valamennyi krómozott csövön a fém krómréteg felületén vékony  $Cr_2O_3$  réteg látható, amely részben leválk a fémes rétegről. A cirkónium fémbe bediffundált króm ( $\approx 5$ -6 at%-os koncentrációban) olyan helyeken jelenik meg, ahol nincs a cirkónium fémbe oldott oxigén jelen. Ugyanakkor az EDX módszerrel a cirkónium fémbe oldott oxigént nem mértük, holott az optikai mikroszkópos képeken jól elkülönül az  $\alpha$ -Zr(O) réteg.



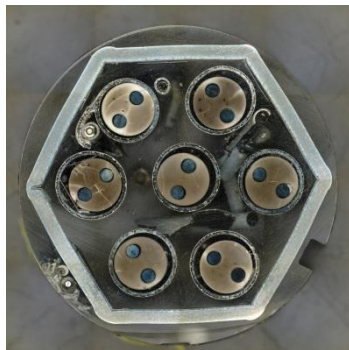
410 mm



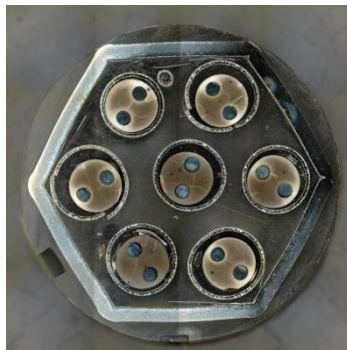
440 mm



470 mm



500 mm



530 mm



560 mm



590 mm



590 mm felső

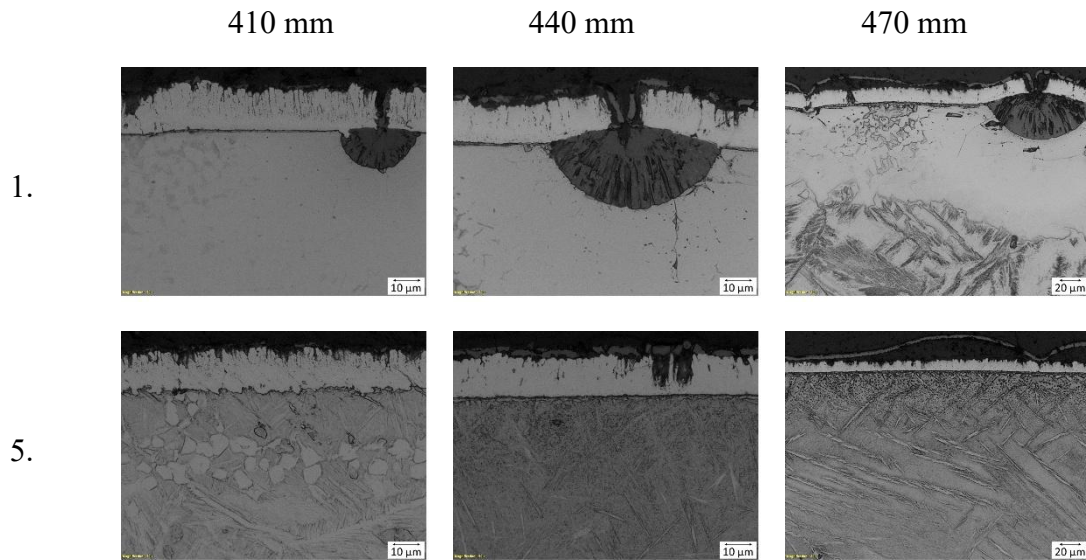


600 mm felső

94. ábra: A CODEX-ATF köteg keresztmetszeti csiszolatai és a számozásuk

Belső oxidréteg a 2., 4. és 6. számú csövön 410, az 5. és 7. számú csövön 440, míg az 1. és 3. számú cső esetében 470 mm-től jelenik meg.

410 és 470 mm közötti magasságban Cr-Zr eutektikum képződés nem figyelhető meg.



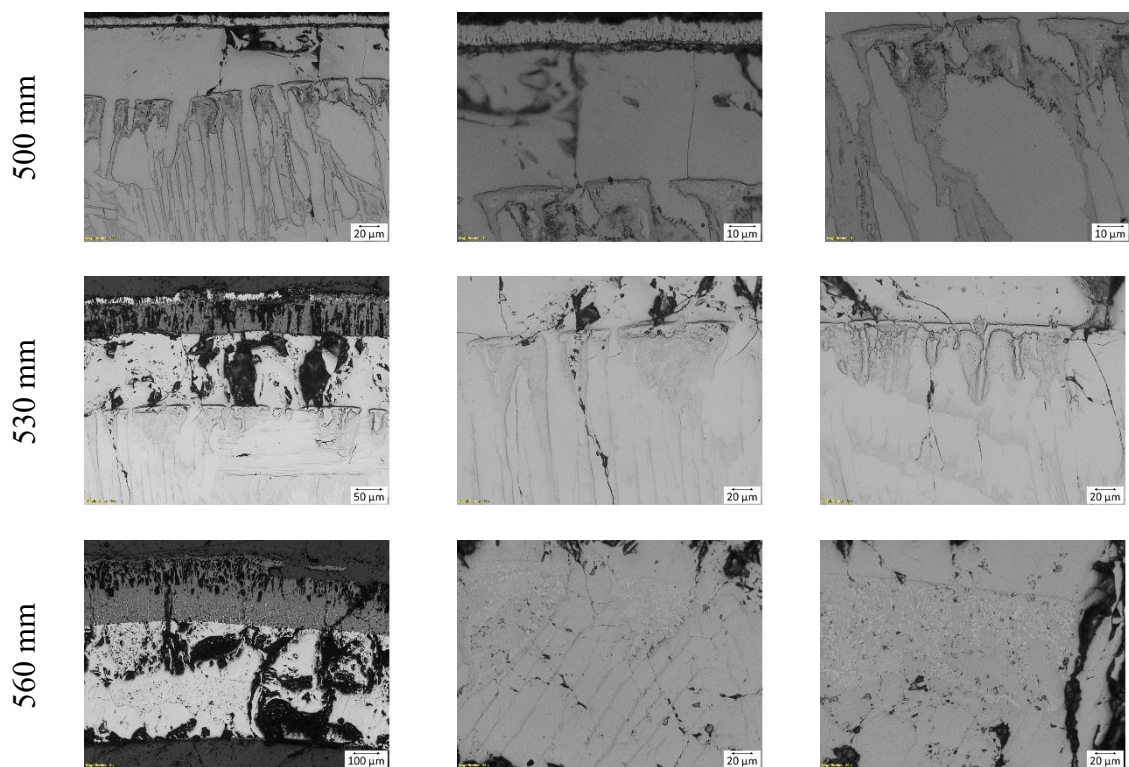
95. ábra: Optikai mikroszkópos képek, a krómozott optZIRLO™ csövek oxidációjának összehasonlítása a nagymértékben felfúvódott 1. és a közel változatlan geometriájú 5. számú cső esetén 410 és 470 mm között, skálacsík: 20 μm

### 500 – 560 mm

500 mm-en a burkolatok maximális felületi hőmérséklete  $\approx 1400$  °C volt, míg 530 és 560 mm közötti magasságban  $\approx 1400 - 1650$  °C között változott.

A nem krómozott burkolatokon az oszlopos szerkezetű  $ZrO_2$  réteg vastagsága a magassággal, azaz az oxidáció hőmérsékletének növekedésével tovább nőtt és egyre egyenetlenebbé vált, a nagyon magas hőmérsékletű és igen heves oxidáció következtében 560 mm-es magasságban pedig a teljes megmaradt fémfázis  $\alpha-Zr(O)$ -dá alakult, a fémfázisban oxid, az oxidréteg szemcséi közötti repedésekben pedig fémfázis jelent meg.

Azoknál a krómozott burkolatcsöveknél, ahol a krómbevonat a felfúvódás miatt repedezetté vált (1., 3. és 7. számú csövek) a magasság/hőmérséklet növekedésével a kezdetben különálló  $ZrO_2$  szigeteket egy összefüggő  $ZrO_2$  réteggé nőttek össze a még fémes vagy már oxidálódott krómréteg alatt. Az 5. számú cső esetében, ahol a krómréteg nem sérült meg, először egy egyenletes  $\alpha-Zr(O)$ , majd egy szintén egyenletes  $ZrO_2$  réteg kialakulása figyelhető meg a krómréteg alatt (96. ábra).



96. ábra: Optikai mikroszkópos képek, a Cr-Zr eutektikum képződés az 5. számú csövön 500 és 560 mm között

Az 500 – 560 mm magasság tartományban a krómozott burkolatcsöveknél az 1400 °C vagy a fölötti hőmérsékletek következtében Cr-Zr eutektikum képződött. Ez az 5. számú cső esetében volt a legjelentősebb, ahol az ép krómbevonat a legtávolabbi meggátolta az oxigén beoldódását a cirkónium fémbe, így ennél a csőnél diffundálhatott a legnagyobb mennyiségben a külső krómrétegből króm a cirkónium fémbe. A króm az  $\alpha$ -Zr(O) és  $\beta$ -Zr fázishatáron dúsult fel, éles sávot képezve a cirkónium fémbe.

### 5.6.5 CODEX-ATF összefoglalás

Az előkészítő szakaszban a berendezést 600 °C-ig fűtöttük fel a külső és belső fűtés segítségével 0,2 g/s gőz és 0,2 g/s argonáramlás mellett. A felhevítési szakasz ugyanazokkal a tömegáramokkal folytatódott, 1000 W kötegteljesítmény és 800 W külső teljesítmény mellett. A rudakat nyomás alá helyeztük, a rudak többsége  $\approx 900$  °C környékén felhasadt. A hőmérsékletemelkedés egyenletes volt, a kísérlet végrehajtása közben úgy döntöttünk, hogy a felfűtést az eredeti célhőmérséklet (1400 °C) felett is folytatjuk. Az elárasztás kezdetén a köteg tetején a burkolatok hőmérséklete meghaladta az 1650 °C-ot. Az intenzív Zr-Cr eutektikum képződés 1330 °C feletti hőmérsékleteken

ment végbe. A cirkóniumkomponensek jelentős oxidációjának következtében 2,9 g hidrogén keletkezett.

A köteg 1400 °C alatti maximális hőmérsékletű szakaszán (470 mm alatt) a nem krómozott optZIRLO™ burkolatokon egyenletes, oszlopos szerkezetű ZrO<sub>2</sub> réteg keletkezett. A ZrO<sub>2</sub> réteg csak a burkolat felfűvódása miatt vált töredezetté. A jelentősen felfűvódott krómbevonatos optZIRLO™ csöveken a krómréteg töredezetté vált és a krómréteg repedésein keresztül lokálisan indult meg a cirkónium oxidációja a krómréteg alatt. A kötegben egy krómbevonatos optZIRLO™ cső geometriája közel változatlan maradt. Ezen a csövön a krómréteg nem sérült meg, és az oxigén kezdetben csak diffúzióval juthatott be a cirkónium fémbe. Valamennyi krómozott csövön a fém krómréteg felületén vékony Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> réteg volt látható, amely részben levált a fémes rétegről. A csövek felhasadása miatt gőz jutott be a csövek belsejébe, emiatt belső oxidréteg valamennyi csőnél megfigyelhető.

A krómozott burkolatcsöveknél az 500 – 560 mm magasságtartományban, ahol a maximális burkolat-hőmérséklet  $\approx 1400 - 1650$  °C között változott, de a csövekben még jelentős mennyiségű fémfázis volt jelen, Cr-Zr eutektikum képződést figyeltünk meg. A króm az  $\alpha$ -Zr(O) és  $\beta$ -Zr fázishatáron dúsult fel, éles sávot képezve a cirkónium fémbe. A cirkónium fémbe a nagy krómtartalmú (sötétebb szürke színű) területeken több helyen a vas és az ón dúsulását is megfigyeltük.

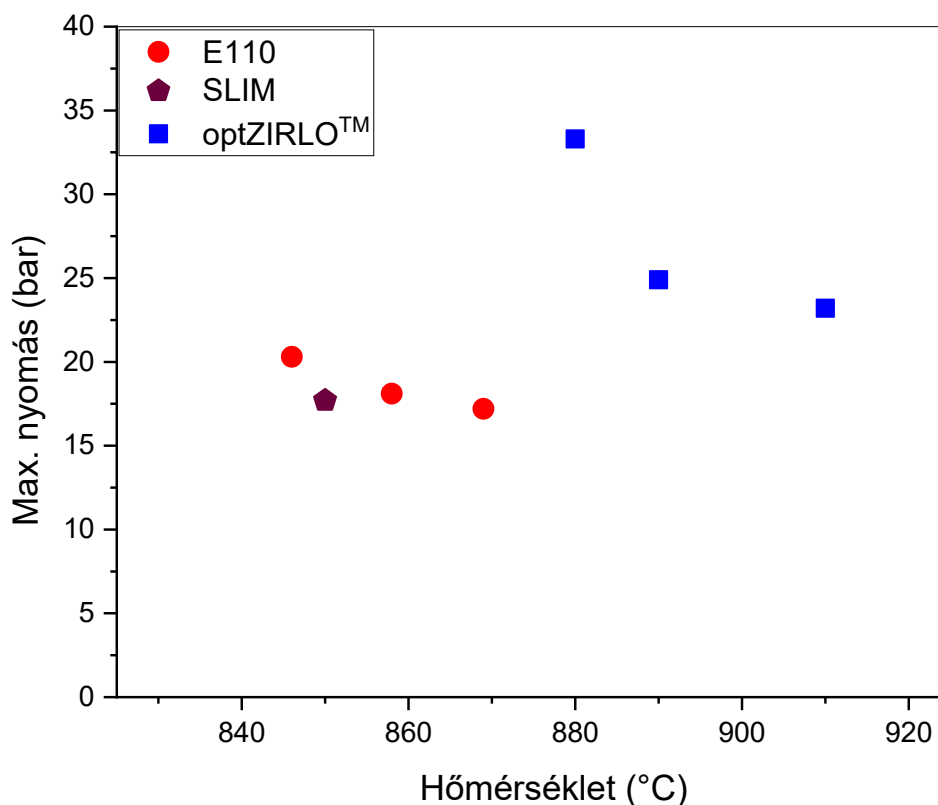
A köteg tetején (560 – 590 mm felett) a csövek oxidáltsága erősen változott a cső kerülete mentén és jelentősen függött a csőfalrész pozíciójától. Az 590 mm vagy a feletti magasságokból származó minták elektronsugaras vizsgálatainak eredményei azt mutatták, hogy a cirkónium-oxidban (ZrO<sub>2-x</sub>) megjelenő világos kontrasztú fázisok fémesek, vagy a környezetüknél kisebb oxigéntartalmúak, és bennük az optZIRLO™ ötvözőelemei (Fe, Sn, Nb) dúsultak, illetve a krómbevonatos csövek esetében a króm is. A külső Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> rétegben látható kisebb és szabálytalan alakú szemcsék króm és cirkónium tartalmú oxidok, míg a még fémes krómot tartalmazó fázisokban a vas és az ón dúsulását tapasztaltuk [S10][S11].

## 6 ÖSSZEFOGLALÁS

Kutatásom célja egy olyan kísérleti berendezés megalkotása, illetve továbbfejlesztése volt, melynek segítségével atomerőművekben használt fűtőelem-burkolatok vizsgálhatók integrált módon. Az egyes kísérletek baleseti körülményeket modelleztek, amik megvalósulhatnak egy atomerőműben is. Munkám során sikerült a CODEX berendezésen kialakítanom azokat a műszaki megoldásokat, amelyek segítségével a kísérletek során szükséges feltételeket biztosítani tudtam.

Számos baleseti körülményt szimuláltam hét fűtőelem pálcából álló kötegeken. Nemcsak a baleseti körülményeket tudtam változtatni, hanem a köteget alkotó fűtőelem-burkolatok típusát is. Megerősítettem kísérleti úton, hogy tervezési üzemzavari körülmények között egy hűtőközegvesztés-esemény nem vezet a fűtőelemek sérüléséhez. Továbbá súlyos baleseti, légbetöréses folyamatot modelleztem extrém körülmények között, gőz- és oxigénhiányos környezetben. Olyan üzemzavart is modelleztem, amelynek során nitrogén kerül a reaktor aktív zónájába. Rámutattam, hogy nitrogén jelenlétében heterogén nitrid- és oxidrétegek jönnek létre a fűtőelem-burkolatán, és ez felgyorsította a cirkóniumkomponensek vízgőzös oxidációját. A VVER-440 reaktorokban nemrég bevezetett új típusú burkolattal (E110G SLIM) végzett hűtőközegvesztéses-méréssel rámutattam, hogy a vékonyabb burkolattal sem következik be a fűtőelem felhasadása üzemzavari körülmények között. Továbbá, a szivacsos technológiával készült újfajta burkolat (E110G) sokkal jobb oxidációs viselkedést mutat, mint az eddig használt hagyományos ötvözet (E110). Krómbevonatos (balesetálló) és hagyományos nyugati optZIRLO™ burkolatból összeállított köteggel végzett integrális mérésekből megállapítottam, hogy 1300 °C fölött mind a két típusú burkolat súlyosan károsodik. A degradációs folyamatok azonban különbözőek: amíg a hagyományos burkolatnál a cirkónium oxidációja miatti ridegedés a meghatározó folyamat, addig a krómbevonatos burkolat esetében a króm-cirkónium eutektikum képződése vezet a burkolat sérüléséhez.

A 97. ábrán összehasonlítottam a különböző burkolatanyagokkal végzett integrális CODEX kísérletek során mért maximális nyomás értékeket. A mérések azt mutatták, hogy az optZIRLO™ burkolat magasabb nyomáson hasad fel LOCA körülmények között, mint az E110 és a SLIM burkolat és ez összhangban van a kisléptékű kísérletek eredményeivel.



97. ábra: CODEX kísérletek során mért maximális nyomás értékek különböző felhasadt burkolatok esetén

A CODEX berendezésnek vannak állandó szerkezeti elemei, de egyúttal egy folyamatosan változó konstrukció. A különböző baleseti körülményekhez különböző megoldásokat kellett alkalmaznom. A munkám során részletesen bemutattam, hogy milyen változtatásokat kellett eszközölnöm a készüléken. Ez a berendezés készen áll, hogy a jövőben újabb kísérletet, illetve kísérlet sorozatot végezzek el a segítségével.

## 6.1 Az eredmények hasznosíthatósága

A munkám során az E110, E110G, vékonyfalú E110G, optZIRLO™ és krómbevonatos optZIRLO™ ötvözetekkel végzett integrális kísérletek során összegyűjtött kísérleti eredmények egyrészt támogatják a nukleáris biztonsági hatósági munkát, másrészt alapot adnak a fűtőelem-modellek számítógépes fejlesztéséhez. Segítik a súlyos baleseti folyamatok megértését, mert részletes adatokat adnak a cirkónium burkolatok oxidációjáról, nitridképződéséről és hidrogénfelvételéről különböző atmoszférában (gőz, levegő, H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>), valamint segítik feltárni a fűtőelemburkolat

degradációjának mechanizmusait (oxidréteg felhasadás, breakaway oxidáció, nitridizáció–reoxidáció ciklus).

Kódfejlesztésre és validációra is használhatóak a CODEX mérési adatok (ASTEC, MELCOR, ATHLET-CD, FRAPTRAN, TRANSURANUS). A legújabb fejlesztésű balesetálló fűtőelemek szimulálásához nélkülözhetetlen mérési adatok állnak a rendelkezésre a CODEX-ATF és CODEX-ATF-AIT kísérletekből. Ezeket a mérési adatokat a müncheni székhelyű Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) GmbH intézet munkatársai is felhasználták az ATHLET-CD kód oxidációs számításának pontosításához, továbbá a legújabb AC<sup>2</sup> (AC<sup>2</sup>=ATHLET+ATHLET-CD+COCOSYS) programcsomag krómréteggel bevont burkolat oxidációs számításának a fejlesztéséhez.

A mérések hozzájárulhatnak a LOCA kritériumok pontosításához, amely alapot adhat a magyar és nemzetközi szabályozások módosításához (pl. a LOCA során felhasadó fűtőelemek részaránya tekintetében). Ezzel segítik a hatóságokat abban, hogy megalapozott döntéseket hozzanak üzemanyag-engedélyezési és biztonsági kérdésekben.

A CODEX mérések adatbázisait használták több EU és NAÜ projektben. A nemzetközi összehasonlító tesztek (pl. QUENCH-CODEX párhuzamos mérés) validációs bázisként szolgálnak, és lehetővé teszik néhány fontos effektus hatásának az értékelését.

Az E110 és E110G ötvözetek összehasonlítása egyértelműen igazolja, hogy a paksi atomerőműben bevezetett E110G burkolat alkalmazása biztonsági szempontból előnyösebb. Megnyugtató választ ad arra kérdésre, hogy a vékonyabb burkolattal sem következik be a fűtőelem felhasadása üzemzavari körülmények között.

## 7 TÉZISPONTOK

### 1. tézispont

Megterveztem és létrehoztam a CODEX berendezésen azokat a kísérleti konfigurációkat, amelyek lehetővé tették különböző üzemzavari és baleseti körülmények vizsgálatát. Kísérleti kötegeket hoztam létre különböző atomerőművekben használt burkolatanyagokból, különböző geometriai elrendezésekben. Kialakítottam azokat a műszaki megoldásokat, amelyek lehetővé tették a kísérletek során a szükséges határfeltételek biztosítását és az online adatgyűjtést. [S1][S2][S3][S4][S5][S6][S7][S8][S9][S10][S11] [S12]

### 2. tézispont

A VVER-440 reaktorokban használt E110 és E110G ötvözetből készült burkolatanyagokkal végzett kísérletsorozat alapján megerősítettem, hogy tervezési üzemzavari körülmények között egy hűtőközeg-vesztés esemény nem vezet a fűtőelemek sérüléséhez. A CODEX-LOCA-200, a CODEX-LOCA-200B és a CODEX-LOCA-E4 kísérletekben megfigyelt burkolatsérülések olyan körülmények között léptek fel, amikor a belső nyomás meghaladta a tervezési üzemzavar során várható értéket, illetve amikor a magas hőmérsékletű vízgőzös oxidáció hosszabb ideig történt, mint ami a referencia forgatókönyv szerint elképzelhető. A CODEX-LOCA-E4 kísérlet jelezte azt is, hogy az új technológiával gyártott E110G ötvözetből készült fűtőelem-burkolat kevésbé oxidálódik és tovább megőrzi épségét a tervezési alapon túli balesetek során. [S1][S2]

### 3. tézispont

A VVER-440 reaktorokban nemrég bevezetett új típusú, E110G SLIM burkolattal végzett hűtőközeg-vesztéses CODEX-SLIM méréssel rámutattam, hogy a vékonyabb burkolattal sem következik be a fűtőelem felhasadása üzemzavari körülmények között. Továbbá a szivacsos technológiával készült újfajta burkolat sokkal jobb oxidációs viselkedést mutatott, mint az eddig használt hagyományos ötvözet. [S8][S9]

### 4. tézispont

Súlyos baleseti, légbetöréses folyamatot modelleztem extrém körülmények között, gőz- és oxigénhiányos környezetben E110G ötvözetből készült burkolattal. A magas

hőmérsékletű kémiai reakciók következtében összetett oxid- és nitridszerkezetek jöttek létre a cirkóniumburkolatban. Az online mérési adatok és a köteg metallográfiai vizsgálata megerősítette, hogy a CODEX-AIT-3 kísérletben nemcsak a cirkónium oxidációja és nitridizációja ment végbe a folyamat során, hanem a cirkónium-nitridek újraoxidációja is. [S3]

## **5. tézispont**

A CODEX-NITRO kísérletben E110 és E110G ötvözetből készült burkolattal modelleztem egy olyan üzemzavart, amelynek során nitrogén kerül a reaktor aktív zónájába hűtőközeg-vesztéses üzemzavari körülmények között. Rámutattam, hogy nitrogén jelenlétében heterogén nitrid- és oxidrétegek jönnek létre a fűtőelem-burkolatán, és ez felgyorsítja a cirkóniumkomponensek vízgőzös oxidációját. A kísérlet jelezte azt is, hogy amíg alacsonyabb hőmérsékleten (500 °C alatt) a nitrogén csak nemkondenzálódó gázként jelenik meg a baleseti folyamatban, addig magasabb hőmérsékleten (1000 °C felett) komoly kémiai reakciót eredményez a cirkóniumburkolattal. [S4][S5][S6]

## **6. tézispont**

Integrális kísérlettel igazoltam, hogy egy atomerőműben a teljes feszültségkiesés következtében kialakuló, magas hőmérsékletű súlyos baleseti körülmények a fűtőelem-burkolat jelentős mértékű degradációját okozhatják. A CODEX-SBO kísérleti kötegben használt E110 és E110G ötvözetből készült burkolat összehasonlítása nem jelzett számottevő különbséget a nagyon magas hőmérsékletű tranziens során. Mindkét burkolattípus nagymértékben oxidálódott. [S6][S7]

## **7. tézispont**

Krómbevonatos (balesetálló) és hagyományos optZirlo™ cirkónium burkolatból összeállított CODEX-ATF köteggel végzett integrális mérésből megállapítottam, hogy 1300 °C fölött mind a két típusú burkolat megsérülhet. A degradációs folyamatok azonban különbözőek: amíg a hagyományos burkolatnál a cirkónium oxidációja miatti ridegedés a meghatározó folyamat, addig a krómbevonatos burkolat esetében a króm-cirkónium eutektikum képződése vezet a burkolat sérüléséhez. [S10][S11][S12]

## 8 SUMMARY

The primary objective of my research was the design and development of an experimental facility capable of performing integrated investigations of nuclear fuel elements of nuclear power plants under accident conditions. Throughout the course of my work, I developed the necessary engineering solutions to reliably establish and maintain the required boundary conditions for such experiments.

A wide range of accident scenarios was simulated on fuel rod bundles comprising multiple fuel rods. In addition to varying the boundary conditions associated with the accident scenarios, I also altered the type of fuel claddings that make up the bundle. Experimental results confirmed that, under design-basis accident conditions, a loss-of-coolant event does not result in mechanical failure of the fuel elements.

Loss-of-coolant accident measurements conducted on the newly introduced E110G SLIM cladding material for VVER-440 reactors revealed that even with reduced wall thickness, cladding rupture does not occur under loss-of-coolant accident conditions. Furthermore, the novel sponge-based E110G cladding material exhibited substantially improved oxidation resistance compared to the conventional E110 zirconium alloy.

I conducted severe accident simulations involving air ingress under extreme conditions, specifically in steam- and oxygen-starvation conditions. A LOCA scenario with nitrogen ingress into the reactor core was also examined. The results demonstrated that, in the presence of nitrogen, heterogeneous nitride and oxide layers form on the fuel cladding, which accelerate the steam oxidation kinetics of zirconium-based components.

Integral experiments performed on mixed bundles containing both chromium-coated (accident-tolerant) and conventional optZIRLO™ cladding indicated that both cladding types are susceptible to damage above 1300 °C. However, the underlying degradation mechanisms differ: for conventional zirconium cladding, embrittlement due to high-temperature oxidation of zirconium is the dominant cause of failure, whereas for the chromium-coated cladding, failure is driven by the formation of a chromium–zirconium eutectic.

## 9 PUBLIKÁCIÓK

### 9.1 A tézispontokhoz kapcsolódó publikációk

- [S1] Zoltán Hózer, Imre Nagy, Nóra Vér, Róbert Farkas: Simulation of Loss-of-Coolant Accidents in the CODEX integral test facility, EHPG, Lillehammer, Norway, 25-28. September, 2017, paper F2.7
- [S2] Hózer, Zoltán; Nagy, Imre; Farkas, Róbert; Vér, Nóra; Horváth, Márta; Novotny, Tamás; Perez-Feró, Erzsébet; Király, Márton; Kis, Zoltán; Maróti, Boglárka et al. Experimental Simulation of the Behavior of E110 Claddings under Accident Conditions Using Electrically Heated Bundles In: Yagnik, Suresh K.; Motta, Arthur T., Zirconium in the Nuclear Industry: 19th International Symposium ASTM International (2021) pp. 813-832. Paper: STP162220190010, 20 p.
- [S3] R. Farkas, Z. Hózer, I. Nagy, N. Vér, M. Horváth, M. Steinbrück, J. Stuckert, M. Grosse: Effect of steam and oxygen starvation on severe accident progression with air ingress, Nuclear Engineering and Design 396, 2022
- [S4] Nagy, I ; Farkas, R ; Vér, N ; Hózer, Z ; Szabó, P ; Szabó, G ; Kostka, P ; Lajtha, G ; Téchy, Zs: A CODEX-NITRO integrális atomerőművi súlyos baleseti kísérlet NUKLEON 12 Paper: 222 (2019)
- [S5] R. Farkas, I. Nagy, N. Vér, Z. Hózer, M. Horváth, P. Szabó: The CODEX-NITRO experiment, 25th International QUENCH Workshop 22-24 October 2019 Karlsruhe, Institute of Technology Karlsruhe, Germany, Editor: Martin Steinbrück DOI: 10.5445/IR/1000100298
- [S6] R. Farkas, Z. Hózer, I. Nagy, N. Vér, P. Szabó, M. Horváth, P. Kostka, G. Lajtha: Experimental simulation of selected design extension condition scenarios without core meltdown (DEC-A) in the CODEX facility, Progress in Nuclear Energy, 161, 2023
- [S7] R. Farkas, I. Nagy, N. Vér, Z. Hózer, P. Szabó, G. Szabó, M. Horváth: The CODEX-SBO experiment, Proceedings of TopFuel 2022 Light Water Reactor Fuel Performance Conference ISBN: 978-0-89448-787-3
- [S8] Farkas R., Hózer Z., Kis Z., Perez-Feró E., Király M., Horváth L., Novotny T., Szabó P., Bubonyi T.: Hűtőközegvesztéses atomerőművi üzemzavar kísérleti modellezése, Anyagvizsgálók Lapja 2023/III., 2023

- [S9] Farkas, R., Hózer, Z., Kis, Z., Perez-Feró, E., Király, M., Horváth, M., Novotny, T., Szabó, P., Bubonyi, T. (2024). Simulation of loss-of-coolant accident with thin-walled cladding tubes. *Nuclear Materials and Energy*, Volume 40, 101695.
- [S10] R. Farkas, N. Vér, B. Bürger, P. Szabó, Z. Hózer: The CODEX-ATF experiment, 28th International QUENCH Workshop 5-7 December, 2023 Karlsruhe, Institute of Technology Karlsruhe, Germany, Editor: Martin Steinbrück DOI: 10.5445/IR/1000152245
- [S11] Z. Hózer, R. Farkas, N. Vér, B. Bürger: CODEX-ATF: Integral Bundle Test With Accident Tolerant Fuel, Proceedings of TOPFUEL 2024, Grenoble, ENS, ISBN 978-92-95064-41-6
- [S12] Róbert Farkas, Nóra Vér, Berta Bürger, Péter Szabó, Anna Pintér Csordás, Levente Illés, Zoltán Kovács, Dávid Cinger, Zoltán Hózer: CODEX-ATF Test, Experimental Programme of Accident Tolerant and Advanced Technology Fuels (ATFs), Final Report of a Coordinated Research project (Vol. 1, 2026), IAEA TECDOC (megjelenés alatt)

## 9.2 Egyéb publikációk

- [E1] Hózer, Z; Nagy, I; Kunstár, M; Szabó, P; Vér, N; Farkas, R; Trosztel, I; Vimi, A: Experimental investigation of the coolability of blocked hexagonal bundles, *Nuclear Engineering and Design* 317 pp. 51-58., 8 p. (2017)
- [E2] Farkas Róbert: Hévíztermelő és visszasajtoló kutak által okozott hőmérséklet-változás modellezése, XXX. OTDK, 248. (2011)
- [E3] Farkas, Róbert, Lenkey László: Visszasajtoló kutak által okozott hőmérséklet-változás modellezése, *Hidrológiai Közlöny* 92: 3 pp. 74-78., (2012)
- [E4] Hózer, Z. ; Adorni, M. ; Arkoma, A. ; Busser, V. ; Bürger, B. ; Dieschbourg, K. ; Farkas, R. ; Girault, N. ; Herranz, L.E. ; Iglesias, R. et al.: Review of experimental database to support nuclear power plant safety analyses in SGTR and LOCA domains, *ANNALS OF NUCLEAR ENERGY* 193 Paper: 110001 , 12 p. (2023)
- [E5] Vér, N. ; Farkas, R. ; Bürger, B. ; Pintér-Csordás, A. ; Novotny, T. ; Perez-Feró, E. ; Szabó, P. ; Illés, L. ; Kovács, Z. ; Cinger, D. et al.: Side-by-side high-temperature accident performance of ATF and conventional claddings in the CODEX-ATF experiment, *NUCLEAR ENGINEERING AND DESIGN* 450 Paper: 114770 , 12 p. (2026)

## 10 FELHASZNÁLT IRODALOM

- [1] J.P. Abriata, J. Garces, and R. Versaci, „The O-ZR (oxygen-zirconium) system,” *Bull Alloy Phase Diagr* 7 (1986):116
- [2] D. O. Northwood: *The Development and Applications of Zirconium Alloys. Materials and Design*, Vol. 6, No. 2, p. 58-70 (1985)
- [3] O. S. Ivanov, V. K. Grigorovich: *Structure and properties of zirconium alloys. Technical Report. Second International Conference on Peaceful Uses of Atomic Energy*, Geneva, 1958.
- [4] C. R. F. Azevedo: *Selection of fuel cladding material for nuclear fission reactors. Engineering Failure Analysis*, Vol. 18, Issue 8, p. 1943-1962 (2011)
- [5] Donald R. Olander, Arthur T. Motta, Brian Wirth: *Light Water Reactor Materials, Volume 1: Fundamentals. American Nuclear Society* (2017), Chapter 17.
- [6] 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*, *Journal of Nuclear Materials*, 418 (2011) 1–7.
- [7] 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.
- [8] Peter Rudling, Ronald B. Adamson: *ZIRAT-5 Special Topical Report On Manufacturing, Advanced Nuclear Technology Sweden AB, ANT*, 2000.
- [9] E. T. Hayes, A. H. Roberson, *Some Effects of heating zirconium in air, oxygen, and nitrogen*, *J. Electrochem. Soc.* 96 (1949) 142-151.
- [10] E. B. Evans, N. Tsangarakis, H. B. Probst, N. J. Garibotti, *Critical role of nitrogen during high temperature scaling of zirconium*, in: *Proceedings of the Metallurgical Society of AIME Symposium on High Temperature Gas–Metal Reactions in Mixed Environments*, Boston, 9–10 May 1972.
- [11] C. Duriez, T. Dupont, B. Schmet, F. Enoch, *Zircaloy-4 and M5® high temperature oxidation and nitriding in air*, *J. Nucl. Mater.* 380 (2008) 30-45.

- [12] M. Steinbrück, M. Böttcher, Air oxidation of Zircaloy-4, M5® and ZIRLO™ cladding alloys at high temperatures, *J. Nucl. Mater.* 414 (2011) 276-285.
- [13] K. Terrani, Accident tolerant fuel cladding development: promise, status, and challenges, *J. Nucl. Mater.*, 501 (2018), pp. 13-30
- [14] C. Tang, M. Stueber, H. Seifert, M. Steinbrueck, Protective coatings on zirconium-based alloys as accident-Tolerant fuel (ATF) claddings, *Corros. Rev.*, 35 (2017), pp. 141-165
- [15] J.C. Brachet, E. Rouesne, J. Ribis, T. Guilbert, S. Urvoy, G. Nony, C. Toffolon-Masclat, M. Le Saux, N. Chaabane, H. Palancher, A. David, J. Bischoff, J. Augereau, E. Pouillier, High temperature steam oxidation of chromium-coated zirconium-based alloys: kinetics and process, *Corros. Sci.*, 167 (2020), Article 108537
- [16] M. Steinbrück, U. Stegmaier, M. Große, L. Czerniak, E. Lahoda, R. Daum, K. Y ueh, High-temperature oxidation and quenching of chromium-coated zirconium alloy ATF cladding tubes with and w/o pre-damage, *J. Nucl. Mater.*, 559 (2022), Article 153470
- [17] M. Steinbrück, Hydrogen absorption by zirconium alloys at high temperatures, *J. Nucl. Mater.*, 334 (1) (2004), pp. 58-64
- [18] Király, M., Horváth, M., Nagy, R., Vér, N., Hózer, Z., Segmented mandrel tests of as-received and hydrogenated WWER fuel cladding tubes, *Nuclear Engineering and Technology*, 2021, 53(9), pp. 2990–3002
- [19] Lee, S.-U., Kim, H., Ševeček, M., Király, M., High-temperature creep behavior of Cr-coated optimized ZIRLO™ cladding via inverse analysis based on finite element method, *Nuclear Engineering and Design*, 2025, 444, 114383
- [20] Slonszki Emese, Király Márton, Nagy Richárd, Perezné Feró Erzsébet, Peidl Balázs, Pinténné Csordás Anna, Illés Levente: Krómbevonatos cirkóniumburkolat felhasadásos mérése. Kutatási jelentés, EK-FRL-2022-252-1-1-M0, 2022.
- [21] Király Márton, Perez-Feró Erzsébet, Novotny Tamás: Kisléptékű mérések a Westinghouse fűtőelemek burkolatával. Kutatási jelentés, EK-TFO-2023-751-5-1-M0, 2023.
- [22] Trosztel István: Nagyatmérőjű primerköri csővezeték 200%-os törésének vizsgálata, MTA-EK-RAL-2012-703/22/M3

- [23] Perezné Feró Erzsébet, Hózer Zoltán: Összefoglaló az E110 burkolat LOCA körülmények közötti viselkedéséről az E110G jelű burkolattal történő összehasonlítás céljából, AEKI-FL-2009-744-01/01.
- [24] Kemény Tamás, Győri Csaba: Az E110G Zr ötvözet fázisátalakulásának vizsgálata termikus módszerekkel, AEKI-FL-2010-744-01/01.
- [25] Perezné Feró Erzsébet, Novotny Tamás. Az E110G jelű burkolat magas hőmérsékletű vízgőzös oxidációja, AEKI-FL-2010-744-01/02.
- [26] Nagy Imre, Vimi András, Windberg Péter, Hózer Zoltán: E110G burkolat felfűvódása és felhasadása, I. mérési sorozat, AEKI-FL-2010-744-01/03.
- [27] Nagy Imre, Vimi András, Windberg Péter, Hózer Zoltán, Kraczk Gergely, Kunstár Mihály, Perezné Feró Erzsébet, Novotny Tamás: Az E110G burkolat felfűvódása és felhasadása magas hőmérsékleten, AEKI-FL-2011-744-01/01.
- [28] Perezné Feró Erzsébet, Novotny Tamás, Pintéerné Csordás Anna: Oxidréteg felhasadásának vizsgálata 800 és 1200 °C közötti tartományban, AEKI-FL-2009-255-01/01.
- [29] Horváth Lászlóné, Hózer Zoltán, Kraczk Gergely, Novotny Tamás, Perezné Feró Erzsébet: Az oxidált E110G burkolat mechanikai vizsgálata, AEKI-FL-2011-744-01/02.
- [30] Pintéerné Csordás Anna, Horváth Lászlóné, Kunstár Mihály, Novotny Tamás, Perezné Feró Erzsébet, Hózer Zoltán, Dobosy Mária: Az E110 és E110G ötvözetek összetétele és az oxidált gyűrűminták mikroszerkezetének vizsgálatai, AEKI-FL-2011-744-01/03.
- [31] March, P., & Simondi-Teisseire, B. (2013). Overview of the facility and experiments performed in Phébus FP. *Annals of Nuclear Energy*, 61, 11-22.
- [32] Clément, B., & Zeyen, R. (2013). The objectives of the Phébus FP experimental programme and main findings. *Annals of Nuclear Energy*, 61, 4-10.
- [33] Fuketa, T., Nagase, F., Grandjean, C., Petit, M., Hozer, Z., Kelppe, S., ... & Wiesenack, W. (2010). *Safety significance of the Halden IFA-650 LOCA test results* (No. NEA-CSNI-R--2010-5). Organisation for Economic Co-Operation and Development, Nuclear Energy Agency-OECD/NEA.
- [34] Karb, E. H., Prüssmann, M., Sepold, L., Hofmann, P., & Schanz, G. (1983). *LWR fuel rod behavior in the FR2 in-pile tests simulating the heatup phase of a LOCA* (No.

KFK--3346). Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH (Germany, FR).  
Hauptabteilung Ingenieurtechnik.

- [35] Karb, E. H., Sepold, L., Hofmann, P., Petersen, C., Schanz, G., & Zimmermann, H. (1982). LWR fuel rod behavior during reactor tests under loss-of-coolant conditions: results of the FR2 in-pile tests. *Journal of Nuclear Materials*, 107(1), 55-77.
- [36] Hofmann, P., Hagen, S. J., Noack, V., Schanz, G., & Sepold, L. K. (1997). Chemical-physical behavior of light water reactor core components tested under severe reactor accident conditions in the CORA facility. *Nuclear Technology*, 118(3), 200-224.
- [37] Cirkónium Anyagtudományi Kutatások (2026) <https://cak.energia.mta.hu/>

## 11 RÖVIDÍTÉSJEGYZÉK

BWR	Boiling Water Reactor (forralóvízes reaktor)
ATF	Accident Tolerant Fuel (balesetálló burkolat)
CODEX	COre Degradation EXperiment (hazai súlyos baleseti kísérleti berendezés)
CORA	Karlsruhében 1987-1995 között működő súlyos baleseti kísérleti berendezés
E110	Nióbium tartalmú orosz cirkónium-ötvözet (elektrolitikus eljárással gyártva)
E110G	Nióbium tartalmú orosz cirkónium-ötvözet (Kroll eljárással gyártva)
E125	2,5 m/m% nióbium tartalmú orosz cirkónium-ötvözet
LOCA	Loss of Coolant Accident (hűtőközegvesztéses-üzemzavar)
NAÜ	Nemzetközi Atomenergia Ügynökség
PWR	Pressurized Water Reactor (nyomottvízes reaktor)
RIA	Reactivity Initiated Accident (reaktivitás üzemzavar)
SS	Stainless steel (rozsdamentes acél)
VVER	Orosz tervezésű nyomottvízes reaktor
QUENCH	Karlsruhében (Németország) működő súlyos baleseti kísérleti berendezés
Zr1%Nb	1 m/m% nióbium tartalmú cirkónium-ötvözet

## 12 TÁBLÁZATJEGYZÉK

1. táblázat A leggyakoribb fűtőelemburkolat-ötvözetek összetétele tömeg%-ban	12
2. táblázat A QUENCH berendezésen elvégzett kísérletek.....	20
3. táblázat A CODEX berendezésen elvégzett kísérletek .....	21
4. táblázat A CODEX kísérleti kötegek fő jellemzői .....	32
5. táblázat: Az adatgyűjtő-vezérlő rendszer részegységei .....	36
6. táblázat: A CODEX berendezésen a vezetésemmel végrehajtott mérések .....	42
7. táblázat: A fűtőelemek felhasadásának jellemző körülményei. ....	48
8. táblázat: A fűtőelemek felhasadásának jellemző körülményei .....	58
9. táblázat: A pálcák felhasadási hőmérséklete és nyomása.....	105

## 13 ÁBRAJEGYZÉK

1. ábra: Kétkomponensű Zr-O rendszer fázisdiagram.....	9
2. ábra: A CODEX berendezés fő komponensei .....	24
3. ábra: A kivágott cirkónium távtartórácsok (balra), és elhelyezésük a köteg végén (jobbra) .....	25
4. ábra: A hegesztés előtt álló fűtőelemrudak és a végüket lezáró cirkónium dugók (balra), valamint a hegesztés utáni állapotuk (jobbra) .....	25
5. ábra: A volfrám fűtőszál a sárga kerámia bevonattal (balra), illetve a grafit tömítőkorongok beépítése (jobbra) .....	26
6. ábra: A modell fűtőelemrúd felépítése .....	27
7. ábra: A 7,65 mm átmérőjű és a 9 mm átmérőjű $Al_2O_3$ tabletták rajza és képe .	28
8. ábra: A fűtőszálra felfűzött kerámia pelletek .....	28
9. ábra: A mérőszakasz rajza a hőszigetelés nélkül (balra), valamint a rudak fűtéséhez használt tápegységek (jobbra).....	29
10. ábra: A kazettafal cirkóniumlemezeinek megmunkálása (marás, geometria összeállítás, hegesztés).....	30
11. ábra: A kazettafal szigetelése (balra) és köpeny a külső szigeteléssel és a köpenyfűtéssel (jobbra).....	31
12. ábra: Az alsó közgyűrű víz és gáz csatlakozásai (balra), illetve a felső közgyűrű kivezetései (jobbra).....	33
13. ábra: A gőzfejlesztő fűtőtestek elhelyezkedése. A jobb oldali ábrán a zöld körök mutatják a gőzfejlesztő fűtőtesteinek csatlakozását, a fehér körök a túlhevítő fűtőtestek csatlakozásait jelzik. A tárcsa közepén a hidegvíz- és argonbetáplálás csöve látható.....	34
14. ábra: A gőzfejlesztő fűtőtestek (balra) és a gőzfejlesztő tartály (jobbra) fényképe.....	34
15. ábra: A kondenzátor és a csapadékgyűjtő tartály .....	35
16. ábra: Az adatgyűjtő modulok (balra) és a vezérlő számítógépek képe (jobbra) .....	37
17. ábra: Termoelemek kivezetései az alsó (balra) és felső tárcsák között (jobbra) .....	38
18. ábra: A termoelemek kiosztása a kötegen .....	38
19. ábra: Az egyes pálcák nyomását vezérlő szelepek, puffertartályok és nyomástávadók .....	39
20. ábra: A mérés vezérlő szoftver képernyőképe a mérés során.....	40
21. ábra: A mintavételi szakaszok csatlakozása .....	41
22. ábra A kötegre adott teljesítmény változása a CODEX-LOCA-200 kísérlet során.....	44
23. ábra: A hőmérséklet változása a CODEX-LOCA-200 kísérlet során pálcánként, az A (50 mm), B (250 mm), C (400 mm) és D (500 mm) szinteken .....	45
24. ábra: A nyomás változása a CODEX-LOCA-200 kísérlet során .....	46
25. ábra: A teljes kísérleti köteg a CODEX-LOCA-200 kísérletet követően.....	47
26. ábra: A kísérleti köteg legmagasabb hőmérsékletű, felfűvődött szakasza .....	47
27. ábra: A rudak axiális hőmérséklet profilja 6694 s-nál.....	48

28. ábra: Az E110 és az E110G burkolat felhasadása 900 °C-on kisléptékű kísérletekben és a CODEX-LOCA-200 mérésben .....	49
29. ábra: A kötegre adott teljesítmény változása a CODEX-LOCA-200B kísérlet során.....	51
30. ábra: A hőmérséklet változása a CODEX-LOCA-200B kísérlet során a 7-es számú rúd felületén az A (50 mm), B (250 mm), C (400 mm) és D (500 mm) szinteken .....	51
31. ábra: A hőmérséklet változása a hét fűtőelem legmelegebb pontján (D) a .....	52
32. ábra: A nyomás változása a CODEX-LOCA-200B kísérlet során.....	53
33. ábra: A fűtőelem hőmérséklete 400 mm (C) és 500 mm (D) magasságban, valamint a referenciahőmérséklet történet (ATHLET).....	53
34. ábra: A fűtőelemek belső túlnyomása, valamint a referencia nyomáskülönbség a CODEX-LOCA-200B kísérlet során (ATHLET-FRAPTRAN).....	54
35. ábra: A kötegre adott teljesítmény változása a CODEX-LOCA-E4 kísérlet során.....	55
36. ábra: A hőmérséklet változása a CODEX-LOCA-E4 kísérlet során a 7-es és 1-es (középső) számú rudak felületén az A (50 mm), B (250 mm), C (400 mm) és D (500 mm) szinteken .....	56
37. ábra: A hőmérséklet változása a hét fűtőelem legmelegebb pontján (D szint) a CODEX-LOCA-E4 kísérlet során .....	57
38. ábra: A nyomás változása a CODEX-LOCA-E4 kísérlet során .....	58
39. ábra: A köteg felső részéről készített felvételek, az ábrák alatt a közepén látható rúd sorszámát és anyagát tüntettük fel .....	59
40. ábra: A fűtőelem hőmérséklete 400 mm (C) és 500 mm (D) magasságban, valamint a referenciahőmérséklet-történet (ATHLET) .....	60
41. ábra: Burkolat-hőmérsékletek az egy rúddal végzett kísérlet során .....	64
42. ábra: Keresztmetszeti kép a második egyrudas kísérlet során degradálódott alsó részről .....	65
43. ábra: Teljesítmény, gőz- és gázáramlási sebesség történet a CODEX-AIT-3 teszt során .....	66
44. ábra: Belső nyomásértékek a nem fűtött középső rúdban .....	67
45. ábra: A középső rúd burkolatának hőmérséklete különböző magasságokban	68
46. ábra: A köteg tengelyirányú hőmérsékletprofilja különböző időpillanatokban a mérés során .....	69
47. ábra: A mért gázáramlási sebességek és a középső rúd hőmérséklete (300 és 850 mm-es magasságban) a CODEX-AIT-3 kísérlet előoxidációs és légbetöréses fázisában .....	70
48. ábra: A CODEX-AIT-3 kísérlet kötegének keresztmetszete 900 mm magasságban a felhasadt középső rúddal.....	71
49. ábra: Az 1. (bal) és az 5. (jobb) számú csőről 300 mm magasságban készített optikai mikroszkópos képek, skálacsík: 100 µm .....	72
50. ábra: Az 1. (bal) és a 2. (jobb) számú csőről 400 mm magasságban készített optikai mikroszkópos képek, skálacsík: 100 µm .....	72
51. ábra: Az 1. (bal) és a 7. (jobb) számú csőről 550 mm magasságban készített optikai mikroszkópos képek, skálacsík: 100 µm .....	73

52. ábra: Az 1. (bal) és a 3. (jobb) számú csőről 650 mm magasságban készített optikai mikroszkópos képek, skálacsík: 100 $\mu\text{m}$ .....	73
53. ábra: Az 1. (bal) és a 4. (jobb) számú csőről 750 mm magasságban készített optikai mikroszkópos képek, skálacsík: 100 $\mu\text{m}$ .....	74
54. ábra: Az 1. (bal) és a 2. (jobb) számú csőről 900 mm magasságban készített optikai mikroszkópos képek, skálacsík: 100 $\mu\text{m}$ .....	74
55. ábra: Az E110G anyagu burkolatcső keresztmetszetein azonosított rétegek ..	76
56. ábra: Oxidréteg-vastagság a fűtőelempálcák külső felületén .....	77
57. ábra: Teljes nitrid rétegvastagság a fűtőelem-burkolatokon .....	78
58. ábra: A köteg és a mérőszakasz külső fűtésének elektromos teljesítménye a CODEX-NITRO kísérlet során.....	81
59. ábra: A 7 pálcá különböző magasságokban (50-500 mm) mért burkolat-hőmérsékletei a CODEX-NITRO kísérlet során .....	81
60. ábra: A mérőszakaszba bejuttatott gázok tömegárama a CODEX-NITRO kísérletben.....	82
61. ábra: A 7 pálcá 16000 és 20000 s között, különböző magasságokban (50-500 mm) mért burkolat-hőmérsékletei a CODEX-NITRO kísérlet során.....	83
62. ábra: A kazettafalon (TSH) és az acélcsövön (TSS) különböző magasságokban mért hőmérsékletek a CODEX-NITRO kísérlet során .....	84
63. ábra: A kilépő gáz összetétele a CODEX-NITRO kísérletben.....	84
64. ábra: A CODEX-NITRO köteg keresztmetszete 200 mm (balra) és 500 mm (jobbra) magasságban .....	85
65. ábra: Az 1. számú rúd burkolatának optikai mikroszkópos keresztmetszeti felvételei különböző magasságokban és kerületi pozíciókban, skálacsík: 100 $\mu\text{m}$ .....	86
66. ábra: Külső oxidréteg vastagsága CODEX-NITRO rudakon.....	88
67. ábra: Nitridréteg vastagsága a CODEX-NITRO rudakon.....	88
68. ábra: A fűtőteliesség és a rúd hőmérséklet alakulása a CODEX-SBO kísérletben.....	90
69. ábra: A mért gázok tömegárama a CODEX-SBO kísérletben .....	91
70. ábra: A kilépő gázok tömegárama és az 1. számú fűtőelem hőmérséklete 500 mm-es magasságban, a CODEX-SBO kísérletben.....	91
71. ábra: A CODEX-SBO kötegről készített felvétel, ami a köteg tetejét mutatja	92
72. ábra: A CODEX-SBO köteg alsó távtartórácsán összegyűlt törmelék .....	93
73. ábra: A CODEX-SBO köteg felhasadt középső rúdja.....	93
74. ábra: A CODEX-SBO köteg nagymértékben oxidálódott E110 csövének felülete .....	93
75. ábra: A CODEX-SBO köteg felsőrésze, a fűtőelemek lehegesztett végeivel .	93
76. ábra: A CODEX-SBO köteg vízszintes metszete 550 mm magasságban (alsó és felső metszet).....	94
77. ábra: A CODEX-SBO fűtőelempálcák külső felületének oxidrétegvastagsága. ....	95
78. ábra: Hőmérsékletek és teljesítmény a tranziens során.....	97
79. ábra: A hőmérsékletek alakulása az elárasztás során .....	97
80. ábra: Nyomások a tranziens fűtési szakasz és az elárasztás között.....	98
81. ábra: Endoszkópos felvétel a CODEX-SLIM köteg felső részéről.....	99

82. ábra: Endoszkópos felvétel a köteg belsejében, a felhasadt burkolatról .....	99
83. ábra: Optimalizált ZIRLO™ (alsó) és krómozott optimalizált ZIRLO™ (felső) burkolatcső.....	102
84. ábra: A CODEX-ATF kísérlet teljesítménytörténete .....	102
85. ábra: Argon, gőz és víz tömegáramok a CODEX-ATF kísérlet során .....	103
86. ábra: Burkolat-hőmérsékletek a CODEX-ATF kísérlet során.....	103
87. ábra: A fűtőelemrudakon mért axiális hőmérsékleteloszlás a CODEX-ATF kísérlet során .....	104
88. ábra: A fűtőelem rudak és a rendszer nyomása a CODEX-ATF kísérlet során .....	106
89. ábra: Kilépő gázok tömegárama a CODEX-ATF kísérlet során.....	107
90. ábra: A degradálódott CODEX-ATF köteg felülnézeti képe .....	108
91. ábra: A CODEX-ATF köteg felső része: a fűtőelemek lehegesztett végei és a kazettafal.....	108
92. ábra: A 3. számú fűtőelemrúd felső vége (krómbevonatos optZIRLO™)....	109
93. ábra: A 4. számú fűtőelemrúd felső vége (optZIRLO™).....	109
94. ábra: A CODEX-ATF köteg keresztmetszeti csiszolatai és a számozásuk...	111
95. ábra: Optikai mikroszkópos képek, a krómozott optZIRLO™ csövek oxidációjának összehasonlítása a nagymértékben felfúvódott 1. és a közel változatlan geometriájú 5. számú cső esetén 410 és 470 mm között, skálacsík: 20 μm.....	112
96. ábra: Optikai mikroszkópos képek, a Cr-Zr eutektikum képződés az 5. számú csövön 500 és 560 mm között.....	113
97. ábra: CODEX kísérletek során mért maximális nyomás értékek különböző felhasadt burkolatok esetén.....	116

## 14 KÖSZÖNETNYILVÁNÍTÁS

Köszönetemet szeretném kifejezni nagyszüleimnek, szüleimnek, feleségemnek, gyerekeimnek és barátaimnak a folyamatos támogatásukért, illetve türelmükért.

Hálával tartozom témavezetőmnek, Dr. Hózer Zoltánnak, aki szüntelenül szorgalmazta és támogatta a doktori dolgozat megírását. Folyamatosan mutatta az irányt a kutatómunkám során. A tanácsait mindig érdemes volt megfogadnom, iránymutatásai többek között a publikációk elkészítésénél is nagyon hasznosak voltak.

Óriási köszönet illeti Nagy Imre kollégámat, akinek a nukleáris ipar világába történő beilleszkedésemet köszönhetem. A mai napig nagyon hiányoznak a velem folytatott hosszas beszélgetéseink, akár szakmai, akár magánéleti témákról. Imrétől mind emberileg, mind szakmailag rengeteget tanulhattam. Nála elhivatottabb, kísérleti munkával foglalkozó kutatót nehéz találni. Remélem, hogy onnan Fentről figyelemmel kíséred a CODEX berendezésen folytatott munkát, és tetszik, amit látsz.

Köszönettel tartozok Vér Nóra és Bürger Berta munkatársamnak a többéves közös kutatómunkáért, Horváth Lászlónénak a négy pontos hajlító vizsgálatokért és Pintérné Csordás Annának az optikai és elektronmikroszkópos vizsgálatok elkészítéséért, továbbá a kísérletek során megfigyelt jelenségek értelmezéséért. A hidrogéntartalom mérésekért a PGAI-NR módszerrel történő elvégzésért Kis Zoltánnak, a forró extrakciós mérésekért Perez-Feró Erzsébetnek és Novotny Tamásnak kell köszönetet mondanom. A számítógépes tomográfiai méréseket pedig Bubonyi Tamásnak köszönöm.

Köszönetet szeretnék mondani munkahelyemnek is, a HUN-REN Energiatudományi Kutatóközpontnak, és valamennyi munkatársamnak, akik segítségemre voltak a kutatómunkám elvégzésében.

## NYILATKOZAT

### A MUNKA ÖNÁLLÓSÁGÁRÓL, IRODALMI FORRÁSOK MEGFELELŐ MÓDON TÖRTÉNT IDÉZÉSÉRŐL

Alulírott Farkas Róbert kijelentem, hogy az

**Atomeróművi fűtőelemek anyagszerkezetének változása baleseti körülmények között**

című benyújtott doktori értekezést magam készítettem, és abban csak az irodalmi hivatkozások listáján megadott forrásokat használtam fel. Minden olyan részt, amelyet szó szerint, vagy azonos tartalomban, de átfogalmazva más forrásból átvettem, a forrás megadásával egyértelműen megjelöltem.

Budapest, 2026.04.12.



(aláírás)