

ČESKÉ VYSOKÉ UČENÍ TECHNICKÉ V PRAZE

Fakulta strojní

Ústav energetiky

**Validace výpočtového kódu na experimentu při zaplavení
palivového svazku v časně fázi rozvoje těžké havárie**

**Validation of computational code on an experiment during
flooding of the fuel bundle in the early stage of developing of a
severe accident**

Diplomová práce

Studijní program: Jaderná energetická zařízení

Vedoucí diplomové práce: Ing. Václav Železný

Andrea Forejtová

Praha 2016

Prohlašuji, že jsem tuto diplomovou práci vypracovala samostatně a výhradně s použitím citovaných pramenů, literatury a dalších odborných zdrojů.

Beru na vědomí, že se na moji práci vztahují práva a povinnosti vyplývající ze zákona č. 121/2000 Sb., autorského zákona v platném znění, zejména skutečnost, že České vysoké učení technické v Praze má právo na uzavření licenční smlouvy o užití této práce jako školního díla podle §60 odst. 1 autorského zákona.

V dne

Podpis autora

Anotační list

Jméno autora:	Andrea Forejtová
Název DP:	Validace výpočtového kódu na experimentu při zaplavení palivového svazku v časně fázi rozvoje těžké havárie
Anglický název:	Validation of computational code on an experiment during flooding of the fuel bundle in the early stage of developing of a severe accident
Akademický rok:	2015/2016
Ústav/Odbor:	Ústav energetiky/Jaderná energetická zařízení
Vedoucí DP:	Ing. Václav Železný
Konzultanti:	Ing. Miroslav Kotouč, PhD. Ing. Jan Škarohlíd
Bibliografické údaje:	Počet stran: 119 Počet obrázků: 60 Počet tabulek: 5 Počet příloh: 2
Klíčová slova:	jaderná bezpečnost, těžká havárie, vysokoteplotní oxidace, zirkoniové slitiny, kód MELCOR, QUENCH experimenty
Keywords:	nuclear safety, severe accident, high-temperature oxidation, zirconium alloys, MELCOR code, QUENCH experiments
Anotace:	Jednou z forem prevence těžkých havárií je provádění bezpečnostních analýz. K tomuto účelu se využívají i výpočtové kódy, které simulují průběh a následky takových událostí. Důležitým předpokladem použití takového kódu je zajištění dostatečné důvěryhodnosti jeho modelů pro predikci průběhu těžké havárie z hlediska termohydrauliky, oxidace, přenosu tepla, a dalších. Výpočtový kód MELCOR je v případě této práce využit pro predikci zdrojového členu vodíku, který vzniká jako produkt exotermické oxidační reakce palivového pokrytí s vodní párou za vysokých teplot. Před samotnou simulací

průběhu experimentu je provedena modifikace vstupního souboru z podmínek experimentu QUENCH-01 pro experiment QUENCH-06. Součástí práce je rovněž teoretický rozbor dějů probíhajících v časně fázi rozvoje těžké havárie uvnitř tlakové nádoby reaktoru s důrazem na vysokoteplotní oxidaci zirkoniových slitin.

Abstract:

Performing safety analyses is one way to prevent occurrence of severe accidents. Computer codes are used to simulate progress and consequences of such events. They should be adequately validated in terms of thermohydraulics, oxidation, heat transfer etc. In this thesis, a computer code MELCOR is used to predict the hydrogen source term. Hydrogen is produced during exothermic oxidation reaction of fuel cladding with water vapour at high temperatures. Before the simulation of the experiment is conducted, modification of the input file, which consists of conditions change from experiment QUENCH-01 to QUENCH-06, is made. The first part of the thesis introduces the phenomena occurring during the early phase of severe accident progression. High-temperature oxidation of zirconium alloys, which are used as material of fuel cladding, is described in detail.

Na tomto místě bych ráda poděkovala svému manželovi, který mi je velkou oporou i rádcem a vzorně se o mě i o mou psychickou pohodu v průběhu celého období příprav této práce staral. Dále bych chtěla poděkovat celé své rodině, která mě po celou dobu podporuje a která si snad již brzy oddechne od mých dalších studijních eskapád, a přátelům, kteří mi byli svými letošními studijními úspěchy vzory k následování.

Velké poděkování bych rovněž chtěla věnovat vedoucímu této práce i oběma svým pánům konzultantům, kteří v různých fázích museli čelit mým artikulovaným i písemným dotazům a výstupům, stejně jako limitám mého chápání, a především všem zúčastněným děkuji za trpělivost a chladnou hlavu.

Obsah

Seznam použitých zkratk	5
Seznam obrázků	8
Seznam tabulek	11
Úvod	13
1 Těžké havárie s oxidací pokrytí palivových tyčí	15
1.1 Těžká havárie se ztrátou chladiva a fenomenologický popis její iniciační události	17
1.1.1 Klasifikace jevů probíhajících v průběhu těžké LOCA havárie	18
1.2 Jevy probíhající během těžké havárie uvnitř TNR	19
1.2.1 Oxidace komponent AZ v průběhu odpařování chladiva a zahřívání AZ	19
1.2.1.1 Nastínění mechanismu oxidace Zry-4 při zahřívání AZ	20
1.2.1.2 Oxidace nerezové oceli za vysokých teplot	22
1.2.2 Chemické interakce Inconelu se zirkoniem a vytváření eu- tektických tavenin	22
1.2.3 Produkce vodíku jako výsledek oxidační reakce kovových komponent v průběhu odkrývání AZ	23
1.2.4 Nafouknutí, praskání a selhání palivového pokrytí v dů- sledku vysokých teplot	24
1.2.5 Tavení a přesun materiálů konstrukcí AZ v první fázi těžké havárie	25
1.2.6 Proces znovuzaplavení odkryté AZ	27
1.2.6.1 Mechanismy chlazení palivových tyčí	28
1.2.6.2 Oxidace komponent AZ v průběhu znovuzaplavení	29

1.2.6.3	Změna geometrie AZ v důsledku oxidace během znovuzaplavení	31
1.2.7	Dopady rozdílných konstrukcí AZ či TNR na průběh těžké havárie	33
1.2.7.1	Oxidace a tavení komponent AZ odlišných konstrukcí	34
1.3	Vysokoteplotní oxidace palivového pokrytí	35
1.3.1	Absorpce a produkce vodíku v průběhu vysokoteplotní oxidace	37
1.3.2	Zirkonium, oxid zirkoničitý a slitiny zirkonia: jejich struktura a základní vlastnosti	38
1.3.2.1	Oxid zirkoničitý a jeho fázové přeměny	39
1.3.2.2	Obvyklé legury a nečistoty zirkonia	40
1.3.2.3	Slitiny zirkonia a průběh jejich oxidace	42
1.3.3	Termodynamika vysokoteplotní oxidace	47
1.3.4	Růst, struktura a vlastnosti povrchového oxidu	51
1.3.4.1	Vlastnosti vzniklého povrchového oxidu	53
1.3.4.2	Pilling-Bedworthův poměr	56
1.3.5	Kinetika vysokoteplotní oxidace	57
1.3.5.1	Difúze a parabolický zákon růstu oxidu	57
1.3.5.2	Zákon lineárního růstu oxidu	59
1.3.5.3	Typy korelací kinetiky vysokoteplotní oxidace	62
1.4	Bezpečnostní analýza jako prostředek prevence těžkých havárií	69
1.4.1	Bezpečnostní analýza s aplikací deterministického přístupu	69
1.4.1.1	Kritéria přijatelnosti	71
1.4.2	Výpočtové kódy využívané při provádění havarijních analýz	72
1.4.2.1	Klasifikace výpočtových kódů	73
1.4.2.2	Modelování vybraných těžkohavarijních jevů a jejich neurčitosti	75
1.4.2.3	Validace výpočtových kódů	78
2	Experimenty typu QUENCH a výpočtový kód MELCOR	83
2.1	Popis experimentálního zařízení QUENCH	83
2.2	Obecný průběh experimentu typu QUENCH	86
2.3	Experimenty QUENCH-01 a QUENCH-06	88
2.3.1	Průběh experimentu QUENCH-01	88

2.3.2	Průběh experimentu QUENCH-06	90
2.4	Výpočtový kód MELCOR a jeho využití pro simulace experimentů	92
2.4.1	Struktura kódu MELCOR a průběh výpočtu	94
2.4.1.1	Hlavní knihovny využívané při výpočtu experimentu QUENCH-06	95
3	Modifikace vstupního souboru pro experiment QUENCH-06	99
3.1	Kontrolní objemy hydrodynamiky (CVH)	99
3.2	Spojky (FL)	101
3.3	Tepelné struktury (HS)	102
3.4	Externí soubory dat (EDF)	102
3.5	Kontrolní funkce (CF)	103
4	Výpočet a zpracování výsledných dat pro experiment QUENCH-06	105
4.1	Průtoky médií v průběhu experimentu	105
4.2	Elektrický výkon palivového svazku	106
4.3	Maximální teplota palivového svazku	107
4.4	Průběh chlazení palivového svazku	108
4.5	Axiální rozdělení teplot a tloušťky oxidické vrstvy	109
4.6	Produkce vodíku během experimentu	115
	Závěr	119
	Bibliografie	120
	Seznam příloh	131
	Příloha A	133
	Příloha B	135

Seznam použitých zkratek

ACM	pokročilé materiály palivového pokrytí (<i>advanced cladding materials</i>)
AEAT	britská společnost <i>AEA Technology</i>
AECL	Kanadská společnost pro jadernou energii (<i>Atomic Energy of Canada Limited</i>)
ANL	Národní laboratoř Argonne (<i>Argonne National Laboratory</i>)
AZ	aktivní zóna reaktoru
BDBA	nadprojektová havárie (<i>beyond design basis accident</i>)
BHS	typ tepelných struktur výpočtového kódu MELCOR, které ohraničují aktivní zónu (<i>boundary heat structures</i>)
BWR	varný reaktor (<i>boiling water reactor</i>)
CANDU	typ těžkovodního reaktoru s horizontálními průtočnými tlakovými kanály (<i>Canadian deuterium uranium</i>)
CEA	Komisariát pro jadernou energii a alternativní energie (<i>Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives</i>)
CET	experimenty provázaných jevů (<i>coupled-effect tests</i>)
CF	knihovna kontrolních funkcí výpočtového kódu MELCOR (<i>control functions</i>)
CFD	výpočetní dynamika tekutin (<i>computational fluid dynamics</i>)
COR	knihovna výpočtového kódu MELCOR popisující chování AZ (<i>core</i>)
CSARP	Kooperativní program výzkumu těžkých havárií (<i>Cooperative Severe Accident Research Program</i>)
CSNI	Výbor pro bezpečnost jaderných zařízení (<i>Committee on the Safety of Nuclear Installations</i>)

CVH	knihovna kontrolních objemů hydrodynamiky výpočtového kódu MELCOR (<i>control volume hydrodynamics</i>)
DBA	projektové havárie (<i>design basis accident</i>)
ECCS	system havarijního chlazení aktivní zóny (<i>emergency core cooling system</i>)
EDF	knihovna výpočtového kódu MELCOR pro načítání dat z externího souboru (<i>External Data File</i>)
EXEC	prováděcí knihovna výpočtového kódu MELCOR (<i>executive</i>)
FL	knihovna spojek výpočtového kódu MELCOR (<i>flow paths</i>)
FZK	Výzkumné centrum Karlsruhe (<i>Forschungszentrum Karlsruhe</i>), od roku 2009 KIT
GRS	Společnost pro bezpečnost jaderných zařízení a reaktorů (<i>Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit</i>)
HS	knihovna tepelných struktur výpočtového kódu MELCOR (<i>heat structures</i>)
IAEA	Mezinárodní agentura pro atomovou energii (<i>International Atomic Energy Agency</i>)
INL	Národní laboratoř Idaho (<i>Idaho National Laboratory</i>)
IRSN	Institut pro ochranu před radiací a jadernou bezpečnost (<i>Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire</i>)
ISP	Mezinárodní standardní problém (<i>International Standard Problem</i>)
JE	jaderná elektrárna
KfK	Centrum pro jaderný výzkum Karlsruhe (<i>Kernforschungszentrum Karlsruhe</i>), od roku 1995 FZK
KIT	Technologický institut Karlsruhe (<i>Karlsruhe Institute of Technology</i>), dříve KfK (do roku 1995) a FZK (do roku 2009)

LB LOCA	LOCA způsobená prasknutím hlavního primárního potrubí s následným neomezeným oboustranným výtokem chladiva (<i>large break LOCA</i>)
LOCA	havárie se ztrátou chladiva (<i>loss of coolant accident</i>)
LWR	lehkovodní reaktor (<i>light water reactor</i>)
MCAP	Program zaměřený na posuzování kódu MELCOR (<i>MELCOR Code Assessment Program</i>)
MP	knihovna materiálových vlastností kódu MELCOR (<i>material properties</i>)
NCG	knihovna nekondenzovatelných plynů výpočtového kódu MELCOR (<i>noncondensable gas</i>)
NEA	Agentura pro jadernou energii (<i>Nuclear Energy Agency</i>)
NS	nenosné struktury knihovny COR výpočtového kódu MELCOR (<i>non-supporting structures</i>)
NSI	Inspekce pro jadernou bezpečnost (<i>Nuclear Surety Inspection</i>)
NUPEC	japonská společnost zabývající se jaderněenergetickým strojírenstvím (<i>Nuclear Power Engineering Corporation</i>)
OECD	Organizace pro hospodářskou spolupráci a rozvoj (<i>Organisation for Economic Co-operation and Development</i>)
PB poměr	Pilling-Bedworthův poměr
PCI	interakce palivové pelety s pokrytím (<i>pellet-cladding interaction</i>)
PHWR	těžkovodní reaktor s horizontálními průtočnými tlakovými kanály (<i>pressurized heavy-water reactor</i>)
PNNL	Pacifická severozápadní národní laboratoř (<i>Pacific Northwest National Laboratory</i>)
PSA	pravděpodobnostní bezpečnostní analýza (<i>probabilistic safety analysis</i>)

PWR	tlakovodní reaktor západního typu (<i>pressurized water reactor</i>)
RBMK	reaktor s varnými kanály (<i>reaktor bolšoj moščnosti kanalnyj</i>)
RCS	chladicí systém reaktoru (<i>reactor cooling system</i>)
SARNET	výzkumný systém zaměřený na těžké havárie (<i>Severe Accident Research NETwork of excellence</i>)
SET	experimenty dílčích jevů (<i>separate-effects tests</i>)
SNL	Národní laboratoř Sandia (<i>Sandia National Laboratories</i>)
SS	nosné struktury knihovny COR výpočtového kódu MELCOR (<i>supporting structures</i>)
SÚJB	Státní úřad pro jadernou bezpečnost
TF	knihovna tabulárních funkcí výpočtového kódu MELCOR (<i>tabular functions</i>)
TMI-2	havárie 2. bloku jaderné elektrárny Three Mile Island, USA
TNR	tlaková nádoba reaktoru
US NRC	Jaderný regulační úřad Spojených států amerických (<i>United States National Regulatory Commission</i>)
VVER	tlakovodní reaktor východního typu (<i>vodo-vodjanoj energetičeskij reaktor</i>)
Zry-4	zirkoniová slitina Zircaloy-4

Seznam obrázků

- 1.1 Zatížení palivového pokrytí při LB LOCA (F_q - celkový koeficient nerovnoměrnosti výkonu, tedy poměr maximální hustoty výkonu ke střední hustotě výkonu). [24] 18

1.2	Různé mechanismy chlazení palivových tyčí během ideálního případu znovuzaplavení. [15]	29
1.3	Během znovuzaplavení z teplot 873 nebo 973 K dochází při nízkých rychlostech chlazení k obnově tažnosti materiálu (fraktografie zobrazující lomové chování původní β -Zr. [43]	31
1.4	Tvorba oxidického povlaku a růst jeho tloušťky během vysokoteplotní oxidace kovu. [54]	36
1.5	Nákres vytvoření vrstvy ZrO_2 a α -Zr(O) a koncentrace kyslíku v jednotlivých vrstvách. [5]	38
1.6	Alotropické fáze ZrO_2 . [2]	39
1.7	Binární fázový diagram soustavy zirkonium-kyslík. [1]	42
1.8	Hmotnostní přírůstek na jednotku plochy v průběhu oxidace v páře při teplotě 1 273 K různých materiálů palivového pokrytí. [18]	44
1.9	Různé fáze ZrO_2 při teplotě 1 273 K na povrchu zirkoniových slitin E110 a M5. [43]	44
1.10	Porovnání průřezů palivových svazků experimentů QUENCH-06 a QUENCH-12 na výškové úrovni 550 mm. [71]	45
1.11	Tlak při prasknutí palivového pokrytí VVER (E110) a PWR (Zircaloy-4). [10]	47
1.12	Ellinghamův diagram volné energie v závislosti na teplotě pro oxidaci materiálů. [54]	49
1.13	Pourbaixho diagram závislosti elektrického potenciálu na pH pro čisté zirkonium. Šedě jsou vyznačeny oblasti náchylné ke korozi. Značky 0, -2, -4 a -6 jsou logaritmy aktivity rozpustných iontů pro vyznačené přímky. [54]	50
1.14	Ellinghamův diagram termodynamiky Zr/O a dalších systémů. [55]	51
1.15	Oxid (ZrO_2) s přebytkem kovu typu n s aniontovými vakancemi \square^{2+} a volnými elektrony e^- . [54]	52
1.16	Procesy odehrávající se v povrchovém oxidickém povlaku během vysokoteplotní oxidace oxidu typu n . [54]	53
1.17	Schéma napětového namáhání a selhání zoxidovaného palivového pokrytí při chlazení nad teplotou fázové změny oxidu. [71]	55
1.18	Schéma napětového namáhání a selhání zoxidovaného palivového pokrytí při chlazení pod teplotou fázové změny oxidu. [71]	55
1.19	Zákony růstu oxidických vrstev. [53]	58
1.20	Difúze kyslíku do stěny palivového pokrytí. [43]	60

1.21	Mapování kyslíku pomocí elektronového mikroanalyzátoru (<i>electron probe microanalyzer</i> , EPMA) a profily koncentrace kyslíku napříč tloušťkou stěny palivového pokrytí. [43]	60
1.22	Druhy vysokoteplotního selhání následující po zaplavení. [43]	61
1.23	Vlevo: Odlupování malých kruhových kousků oxidu z palivové tyče o průměru 10,8 mm. Vpravo: Pokročilé stádium odlupování oxidu (průměr palivové tyče 10,8 mm). [42]	61
1.24	Naznačení mechanismu oxidace odlupování v Zircaloyi dle Leistikowa et al [in [43]].	63
1.25	Přehled fází, přechodů a oblastí tavení zirkonia a ZrO_2 se zákony růstu oxidického povlaku Zry-4 v závislosti na teplotě. [12]	64
1.26	Teplotní závislost hmotnostního přírůstku oxidu vyjádřená různými korelacemi. [20]	68
1.27	Teplotní závislost tloušťky oxidického povlaku vyjádřená různými korelacemi. [20]	68
2.1	Schema experimentálního zařízení QUENCH. [27]	84
2.2	Obecný průběh experimentu typu QUENCH (QUENCH-06). [30]	86
2.3	Porušení pokrytí palivových tyčí ve výškové úrovni 900 mm. [27]	89
2.4	Stav pláště na horním konci vyhřívané oblasti po ukončení testu. [30]	91
2.5	Průřezi palivového svazku na výškových úrovních 837-950 mm (sloupec vlevo - pohled zespodu, sloupec vpravo - pohled shora). [30]	91
3.1	Původní vstup CV201B2 z QUENCH-01.	100
3.2	Změněný vstup CV201B2 pro QUENCH-06.	100
3.3	Původní vstup CV601A3 z QUENCH-01.	101
3.4	Změněný vstup CV601A3 pro QUENCH-06.	101
3.5	Původní definice TF105 z QUENCH-01.	102
3.6	Změněná definice TF105 pro QUENCH-06.	102
3.7	Příklad zadání EDF020,021,005,006, které se mezi experimenty QUENCH-01 a QUENCH-06 po formální stránce neliší, ale různí se obsahem datových souborů: quenchp.dat, quenchu.dat, Tjacketa.dat a Tjacketb.dat.	103
4.1	Vypočítaný průtok různých médií testovacím úsekem.	105
4.2	Celkový elektrický výkon palivového svazku.	106
4.3	Maximální teplota palivového svazku.	107

4.4	Průběh chlazení palivového svazku během zaplavení.	108
4.5	Naměřený průběh teploty po délce palivového svazku v čase 6 620 s.	109
4.6	Vypočítané rozdělení teplot po délce palivového svazku dle výpočtu A (nahore) a výpočtu B (dole) v čase 6 620 s.	110
4.7	Naměřené hodnoty tloušťky oxidického povlaku po délce tyče vy- tažené z rohu palivového svazku v čase \sim 6 630 s.	111
4.8	Hodnoty tloušťky oxidického povlaku po délce palivového svazku v čase 6 620 s dle výpočtu A (nahore) a výpočtu B (dole).	112
4.9	Hodnoty konečné tloušťky oxidického povlaku po délce palivového svazku dle výpočtu A (nahore) a výpočtu B (dole).	113
4.10	Naměřené hodnoty konečné tloušťky oxidického povlaku po délce palivového svazku.	114
4.11	Celkové množství uvolněného vodíku.	115
4.12	Množství vodíku uvolněné během zaplavení.	116
4.13	Rychlost uvolňování vodíku.	116
4.14	Průběh tlaku na vnější straně pláště palivového svazku během za- plavení.	117
A1	Průřez simulátorem palivového svazku (nahore) a umístění termo- článků a označení tyčí (dole). [27]	133
A2	Simulátor vyhřívání tyče (vlevo) a simulátor nevyhřívání tyče (vpravo). [27]	134
B1	Kontrolní objemy knihovny CVH (nahore). Spojení kontrolních ob- jemů CVH spojkami FL (dole).	135
B2	Buňky knihovny COR (vlevo) spolu s příslušnými kontrolními ob- jemy CVH a umístěním paliva (vpravo).	136
B3	Buňky knihovny COR spolu s příslušnými kontrolními objemy CVH, umístěním paliva a elektrického vyhřívání (vlevo). Buňky knihovny COR spolu s komponentami paliva, palivového pokrytí, pláště, nos- ných struktur a vyhřívání (vpravo).	137
B4	Buňky knihovny COR spolu s tepelnými strukturami knihovny HS (vlevo). Buňky knihovny COR spolu s hraničními tepelnými struk- turami knihovny HS (vpravo).	138
B5	Buňky knihovny COR spolu s kontrolními objemy CVH, oběma druhy tepelných struktur knihovny HS, komponentami paliva, vy- hřívání a dna TNR (nahore). Celková nodalizace (dole).	139

Seznam tabulek

1.1	Složení některých zirkoniových slitin (koncentrace v hmotnostních % či ppm). [57, 28]	43
1.2	Přehled různých korelací pro vyjádření kinetiky růstu oxidického povlaku. [20]	65
2.1	Matice QUENCH experimentů s hodnotami jejich hlavních parametrů. [62, 16]	87
2.2	Část validační matice výpočtového kódu MELCOR. [50, 51]	93
3.1	Okrajové podmínky pro experiment QUENCH-06. [46]	99

Úvod

Po haváriích s tavením aktivní zóny, ke kterým došlo na jaderných elektrárnách Three Mile Island (1979), v Černobylu (1986) a ve Fukušimě (2011) došlo načas k paralyzaci veřejnosti, která vedla k tomu, že část lidí začala vnímat jadernou energii jako hrozbu. Mýlit se je ovšem lidské a běžný postup je vzít si z vlastních chyb ponaučení pro příště. Tím se řídí i proces zvyšování bezpečnosti jaderných zařízení, který ovšem nespolehá na reálné „vyzkoušení si“ těžkých havárií, ale preferuje jejich simulaci moderními výpočetními nástroji - výpočtovými kódy. Tak lze včas zachytit a odstranit možné nedostatky v již uskutečněných nebo chystaných projektech jaderných zařízení a tím zmírnit či ideálně zabránit rozvoji havárie jakéhokoli druhu. Ani v dnešní době však nejsme schopni přesně modelovat všechny děje, které se v průběhu potenciální havárie mohou odehrát. Pro rozšíření našeho poznání je důležitá experimentální zkušenost a její výsledky, které nám mohou pomoci formulovat zákonitosti, podle kterých tyto jevy probíhají a které lze kvantifikovat. Odstranění mezer v našem poznání umožní aplikovat nové poznatky i do struktury výpočtových kódů, které nás mohou dále vést k dalšímu zvyšování bezpečnosti, ochraně veřejnosti i životního prostředí. Výpočtové kódy jsou produktem lidské snahy včas predikovat průběh havárií, odstranit jejich možné příčiny či zmírnit jejich následky, a tak se i k nim váže stín nedokonalého poznání a nedostatků. Pro kontrolu tříbení jejich schopností modelovat celkový průběh havárie nebo jeho dílčí části se využívají experimenty, jejichž výsledkům mají výpočtové kódy snahu se co nejvíce přiblížit a tak prokázat své schopnosti predikce.

Experiment QUENCH-06 simuloval proces znovuzaplavení zoxidované aktivní zóny, jež je v případě těžké havárie důležitým prostředkem k zastavení jejího dalšího průběhu. Úspěšnost tohoto opatření však není vždy jistá a v některých případech může vést k diametrálně odlišným účinkům, které jsou způsobeny exotermickou oxidační reakcí palivového pokrytí ze zirkoniových slitin s vodní parou. Oxidace má vedle lokálního růstu teploty rovněž za následek produkci vodíku, která může v průběhu havárie překročit rychlosti uvolňování vodíku, na které jsou navrženy havarijní systémy jeho spalování uvnitř i vně tlakové nádoby reaktoru a ohrozit tak integritu kontejnmentu, která hraje zásadní úlohu pro zabránění úniku štěpných produktů do životního prostředí.

V první kapitole této práce jsou popsány jevy, které se odehrávají v časně fázi průběhu těžké havárie uvnitř tlakové nádoby reaktoru včetně zaplavení aktivní zóny.

Další část této kapitoly se věnuje tématu vysokoteplotní oxidace zirkoniových slitin, jejímž důsledkem je vedle jejího exotermického charakteru právě i produkce vodíku. Ve třetí části je uveden koncept bezpečnostní analýzy a využití výpočtových kódů v jeho rámci.

Druhá kapitola představuje účel, průběh a popis podstaty experimentů typu QUENCH. Větší prostor je dán testům QUENCH-01, z jehož vstupního souboru pro výpočtový kód MELCOR se v další fázi vycházelo, a QUENCH-06, který byl cílem modifikace tohoto vstupního souboru. Další část se zabývá charakterizací výpočtového kódu MELCOR a jeho modelů a představuje jeho knihovny, jejichž vstupy během modifikace vstupního souboru pro experiment QUENCH-06 doznaly některých změn.

Třetí kapitola obsahuje popis a vysvětlení provedených modifikací.

Ověření schopnosti výpočtového kódu MELCOR simulovat všechny důležité děje v průběhu experimentu QUENCH-06, s důrazem na produkci vodíku, je obsahem čtvrté kapitoly.

1. Těžké havárie s oxidací pokrytí palivových tyčí

Havárie s tavením aktivní zóny reaktoru (AZ) byly původně označovány jako havárie zahrnující degradaci AZ. V současné době se pro ně nejčastěji používá výraz těžké havárie, ale lze se setkat i s termínem nadprojektová havárie (*beyond design basis accident*, BDBA). Těžkou havárii lze definovat různými způsoby: [59]

- **International Atomic Energy Agency (IAEA)**: Těžké havárie je taková havárie, jejíž havarijní podmínky jsou těžší než havarijní podmínky maximální projektové havárie (*design basis accident*, DBA) a zahrnují i podstatnou degradaci AZ. [67]
- **United States National Regulatory Commission (US NRC)**: Těžká havárie je typ havárie, který může vyžadovat zásah bezpečnostních systémů v míře větší, než se předpokládalo. [66]
- **Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN)**: Termín těžká havárie se vztahuje k události, která způsobuje podstatné poškození reaktorového paliva, které může vést ke kompletnímu tavení AZ. Ve světle preventivních opatřeních zavedených provozovateli jsou tyto havárie vysoce nepravděpodobné. Uvolnění radioaktivních produktů do životního prostředí by však mohlo mít vážné následky, a proto jsou těžištěm důležitého výzkumu. [63]
- **Státní úřad pro jadernou bezpečnost (SÚJB)**: Těžká havárie je BDBA, při které došlo k vážnému poškození a ztrátě struktury AZ reaktoru nebo palivových souborů, a která může vést k radiační nehodě. Pro lehkovodní reaktory (*light water reactors*, LWR) se těžká havárie ztotožňuje s havárií spojenou s významným tavením AZ. [74]

Výzkum těžkých havárií započal s přelomem 70. a 80. let 20. století v souvislosti s vydáním závěrečné Rasmussenovy zprávy (1978), která upozorňovala na to, že

pravděpodobnost tavení AZ je vyšší, než se očekávalo. ¹ Tato čísla neodpovídala převažujícím představám o jaderné bezpečnosti, a proto se začaly hledat způsoby, jak těžkým haváriím zabránit nebo alespoň zmírnit jejich následky. [4]

Nejprve probíhaly experimenty s tavením palivových tyčí a později došlo k rozvoji rozsáhlé experimentální databáze zaměřené na porozumění průběhu a následků těžkých havárií a vývoji specializovaných těžkohavarijních kódů. ² [41] Havárie 2. bloku americké jaderné elektrárny Three Mile Island (TMI-2) tyto snahy ještě posílila a potvrdila potřebu rozvoje jaderné bezpečnosti. Na jedné straně způsobila opravdový šok pro celý jaderný průmysl i regulační úřady a na druhé straně byla důkazem toho, že LWR může ohrozit veřejnost pouze v případě havárie s tavením AZ. Po této události se výzkum a zavedená opatření dělí do tří po sobě jdoucích fází: [4]

1. V první řadě byla zavedena zmírňující opatření zaměřená proti určitým následkům tavení AZ. Mezi prvními riziky, která se řešila, byl problém postupného přetlakování kontejnmentu vedoucí k jeho možnému prasknutí či reakce dolní části kontejnmentu s roztaveným kóriem (roztavenými komponentami AZ) vyteklým po selhání tlakové nádoby reaktoru (TNR).
2. Ve druhé fázi (mezi lety 1982 a 1985) se stal výzkum prevence a mírnění těžkých havárií systematictější (provádění pravděpodobnostních studií a vývoj mechanistických modelů). Došlo k označení dalších jevů, které byly zařazeny mezi riziky, jako například vysokotlaká sekvence tavení AZ, exploze vodíku, parní exploze uvnitř či vně TNR.
3. Třetí část výzkumu těžkých havárií začala po havárii 4. bloku jaderné elektrárny (JE) v Černobylu. Zaměřuje se na zavádění pasivních bezpečnostních opatření a na prevenci úniku radioaktivních produktů. Aplikovaná omezení jsou přísnější než ta, uplatněná ve druhé fázi (kvůli eliminaci či redukcii

¹Tato hodnota pravděpodobnosti (řádově 1 na 20 000 reaktorroků pro tehdy provozovaných zhruba 500 bloků) předpovídala, že by k tavení AZ mělo docházet v průměru jednou za 40 let. Vzhledem k tomu, že většina tehdejších reaktorů byla provozována přibližně 20 let, nebyl tento výhled do budoucna moc konejšivý. Nicméně stejná Rasmussenova zpráva zároveň předpokládala, že pouhé jedno ze 100 tavení AZ by mohlo způsobit zdravotní následky (do 10 obětí na životě). [4]

²V Evropě probíhal za mezinárodní spolupráce pod patronací IRSN program Phébus FP, v rámci kterého probíhaly experimenty s tavením AZ na prototypch palivových svazků se štěpnými produkty, primárním okruhu a kontejnmentu představující typ systémů tlakovodních reaktorů západního typu (PWR). [5]

nutnosti evakuace populace a opatření zaměřených na dekontaminaci území). [4]

V současné době se klade velký důraz na udržení integrity kontejnmentu (důsledky havárií TMI-2 a 4. bloku JE v Černobyli), zajištění celistvosti TNR a udržení kórie uvnitř TNR a na řešení dalších technických problémů (uvolňování a přesun štěpných produktů, zaplavení poškozené AZ, uchlazenost trosek, zmírňování tavení AZ). Po havárii JE Fukušima se objevila nutnost dále zkoumat podobu nových opatření, která by vedla k omezení vysokoteplotní oxidace palivového pokrytí v páře, k vylepšení systémů pro spalování vodíku a ventilace kontejnmentu. [41, 5]

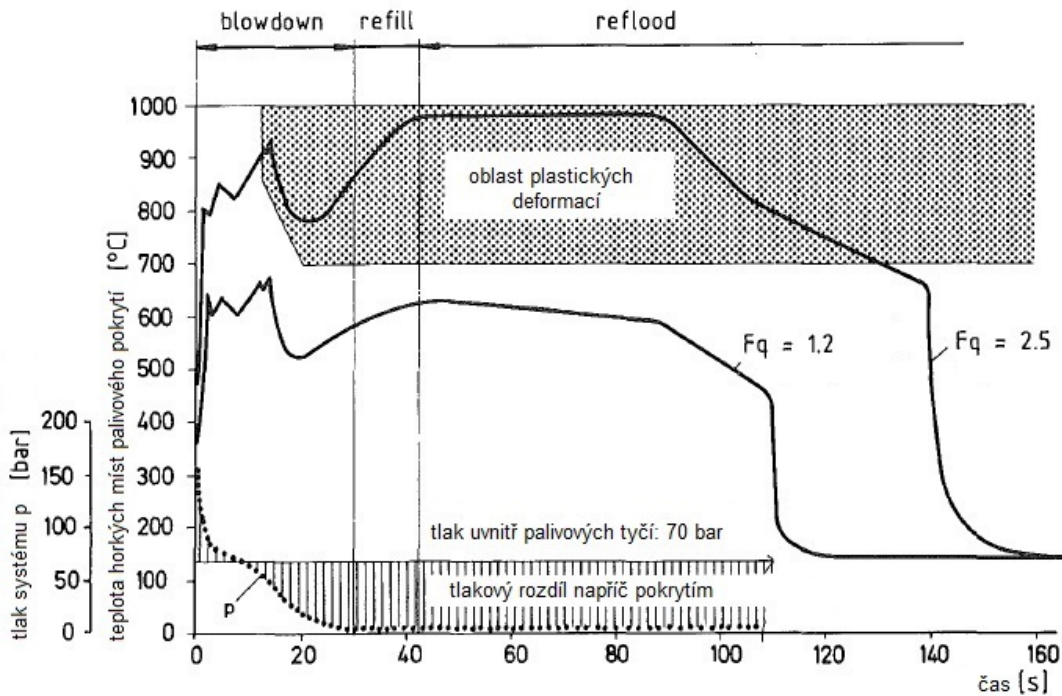
1.1 Těžká havárie se ztrátou chladiva a fenomenologický popis její iniciační události

Těžké havárie mohou být, za předpokladu mimořádného selhání zařízení, způsobeny stejnými příčinami vedoucími k DBA. Havárie se ztrátou chladiva (*loss of coolant accidents*, LOCA), které jsou DBA, představují komplex vzájemně vázaných jevů a procesů, které se velmi obtížně modelují a analyzují. Hlavním důvodem je dosud omezený stupeň poznání některých termohydraulických procesů, jejich komplexní vzájemná vazba, náročnost matematického aparátu a technické obtíže s experimentálním ověřováním. Za současného stavu je proto nutné provádět určité zjednodušující předpoklady umožňující analýzu tohoto procesu. [38, 48]

Prvním zjednodušením je rozdělení průběhu LOCA havárie na čtyři základní fáze:

1. *blow-down* - odtlakování a vyprázdnění primárního okruhu,
2. *refill* - opětovné zaplavení spodního prostoru TNR,
3. *reflood* - opětovné zaplavení AZ reaktoru,
4. dlouhodobé dochlazování AZ.³ [48]

³Uvedené rozdělení platí pouze v případě, že úspěšně zasáhne systém havarijního chlazení AZ (*emergency core cooling system*, ECCS). V opačném případě nastává tavení AZ ohraničené nízkotlakou, respektive vysokotlakou sekvencí. Nízkotlaká sekvence probíhá jako LOCA způsobená prasknutím hlavního primárního potrubí s následným neomezeným oboustranným výtokem chladiva (*large break LOCA*, LB LOCA), při které se nepodařilo opětovné zaplavení AZ nebo ustavení trvalé přirozené cirkulace. K vysokotlaké sekvenci může dojít při úplném výpadku energetických zdrojů včetně rezervních dieselgenerátorů.



Obrázek 1.1: Zatížení palivového pokrytí při LB LOCA (F_q - celkový koeficient nerovnoměrnosti výkonu, tedy poměr maximální hustoty výkonu ke střední hustotě výkonu). [24]

1.1.1 Klasifikace jevů probíhajících v průběhu těžké LOCA havárie

V rámci těžkých LOCA havárií má z hlediska možných účinků na okolí největší vliv LB LOCA. ⁴ [48] Při havárii LB LOCA dochází k bezpečnému odstavení reaktoru, nicméně je nutné z AZ spolehlivě a dlouhodobě odvádět zbytkové teplo, které se generuje jaderným rozpadem štěpných produktů. [24] V případě selhání opětovného zaplavení AZ dojde k složitým fyzikálně-chemickým a radiologickým jevům, které se v průběhu různých fází nehody odehrávají v sekvencích. Tyto jevy a s nimi související fáze těžké havárie se typicky dělí do dvou skupin:

- **jevy probíhající uvnitř TNR (*in-vessel*)**: výtok chladiva prasklinou v primárním okruhu či přepouštěcím ventilem (*blow-down*), pokles hladiny chladiva v reaktoru nejen v důsledku jeho výtoku, ale i vypařování zbylé vody způsobeného zbytkovým teplem (*boil-off*), zahřívání a odkrývání AZ (*heat-up*), odkrytí AZ (*core uncover*), oxidace kovových povrchů v AZ a produkce vodíku, selhání palivových tyčí, uvolňování, přesun a usazování produktů štěpení,

⁴Tento typ havárie původně představoval DBA sloužící při návrhu havarijních systémů, zejména ECCS.

přenos tepla, fyzikální a chemické interakce mezi jednotlivými komponentami AZ, poškození AZ (*core damage*), změna její geometrie (*change of core geometry*) - tyto změny spadají do časně fáze těžké havárie; poté následuje postupné hroucení AZ na dno TNR, formování bazénu kória, protavení konstrukčních částí reaktoru (nosný rošt AZ, aj.), parní exploze ve spodní směšovací komoře TNR, protavení či selhání TNR a uvolnění roztaveného kória do budovy kontejnmentu. [48, 59]

- **děje odehrávající se vně TNR** (*ex-vessel*): pohyb roztaveného materiálu do spodní části šachty reaktoru, parní exploze v šachtě reaktoru, tepelné a chemické interakce mezi troskami AZ a konstrukcí kontejnmentu (betonové základy, apod.), chování kontejnmentu, tvorba nekondenzovatelných, případně výbušných plynů, uvolňování, přesun a odstraňování radioaktivních produktů, hoření a exploze hořlavých plynů (vodík, CO), selhání kontejnmentu. [41, 48]

Další část této práce se zaměřuje na děje, které se v průběhu těžké havárie podílí na nebo ovlivňují produkci vodíku. Ta je rovněž ústředním jevem zkoumaným při experimentu QUENCH-06, jehož simulace pomocí výpočtového kódu MELCOR je obsahem aplikované části této práce. Na základě konfigurace tohoto experimentu se (pokud není uvedeno jinak) dále uvažuje pravoúhle uspořádaný svazek palivových tyčí PWR s palivovým pokrytím ze zirkoniové slitiny typu Zircaloy-4 (Zry-4). Palivový svazek neobsahuje žádný neutronový absorbér (Ag-In-Cd ani B₄C).

1.2 Jevy probíhající během těžké havárie uvnitř TNR

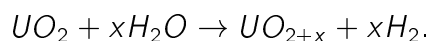
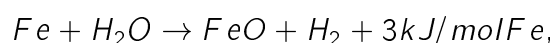
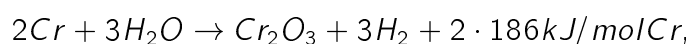
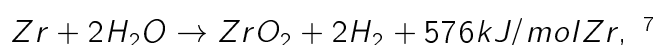
Průběh *in-vessel* fáze těžké havárie rozhoduje o zatížení kontejnmentu štěpnými produkty (jejich uvolněným množstvím, tedy zdrojovým členem), vodíkem i kóriem, které do něj v průběhu *ex-vessel* fáze přiteče. *In-vessel* fázi je proto nutné správně popsat a odhadnout množství a vlastnosti jejích produktů. [5]

1.2.1 Oxidace komponent AZ v průběhu odpařování chladiva a zahřívání AZ

Proudící pára generovaná odpařováním chladiva chladí přehřáté palivové tyče, ale zároveň se při vysokých teplotách panujících v AZ chová jako silné okysličovadlo a zvyšuje potenciál průběhu silně exotermické chemické reakce. [18] Oxidace

materiálů AZ souvisí s produkcí vodíku a tepla, které může při teplotách kolem 1 500 K převýšit i zbytkové teplo (nad 1 800 K až 10krát). Parametry, které určují množství tepla uvolněné oxidačními reakcemi jsou: teplota, plochy vystavené oxidaci, stupeň preoxidace, ochranný účinek oxidické vrstvy, existence nízkoteplotních eutektických tavenin v AZ (například v důsledku interakce Inconelu se zirkoniem či nerezové oceli s materiálem absorberu neutronů) a typ oxidační atmosféry.⁵ Oxidace způsobuje přechod kovových materiálů, například zirkonia, na materiály keramické, ZrO₂. Růst teploty způsobený oxidací komponent AZ je přímým důsledkem praskání ochranných oxidických filmů zejména konstrukcí ze Zry-4. Tyto praskliny se urychleně oxidují a rovněž dochází k oxidaci nově odhalených povrchů pevné i roztavené Zry-4.⁶ [5, 18]

Následující vztahy popisují reakce kovových částí AZ a paliva při teplotách nad 1 300 K s vodní párou:



Z hlediska chování AZ se za nejdůležitější považuje oxidace Zry-4 v páře, ačkoli v některých případech hraje oxidace jiných materiálů (zejména B₄C) stejně důležitou roli. Oxidace nerezové oceli tvořící povrchovou vrstvu řídicích tyčí a dalších konstrukčních částí reaktoru je, s výjimkou velmi vysokých teplot, energeticky téměř neutrální a oxidace paliva v páře je zanedbatelná. [41, 22, 26]

1.2.1.1 Nastínění mechanismu oxidace Zry-4 při zahřívání AZ

⁸ Na tomto místě jsou uvedeny pouze základní informace týkající se oxidace Zry-4 v průběhu těžké havárie. Této problematice je věnovaná část Vysokoteplotní oxidace palivového povrchu.

⁵Dusík (například v případě oxidace za přístupu vzduchu) urychluje kinetiku oxidace a nedostatek páry (*steam starvation*) ovlivňuje kvalitu oxidického povlaku.

⁶K nárůstu teploty v průběhu znovuzaplavení AZ bylo pozorováno pouze v případě experimentů, ve kterých byly proudící páře vystaveny taveniny s obsahem zirkonia jako například v případě experimentů typu QUENCH.

⁷Teplotě ~ 1 500 K odpovídá entalpie 595 kJ/mol Zr.

⁸Jiné zirkoniové slitiny než Zry-4 se chovají jinak. Jejich kinetika oxidace je poněkud rozdílná (viz část Slitiny zirkonia).

Oxidace zirkonia je řízena růstem teploty v důsledku zbytkového tepla (reálné havárie či *in-pile* experimenty) nebo elektrického příkonu (*out-of-pile* experimenty) a tepelných ztrát. Od teploty 1 300 K se začíná projevovat chemická energie z exotermické oxidace zirkonia, která způsobuje zvýšený ohřev a která může, v případě nedostatečného odvodu tepla do chladiva, vést k nekontrolovatelnému růstu teploty (obvykle při teplotách nad 1 500 K). Teplotní závislost oxidace zirkonia popisuje Arrheniův zákon. Během oxidace se na povrchu palivového pokrytí vytváří typické třívrstvé uspořádání: vnější křehká vrstva ZrO_2 , střední křehká vrstva α -Zr stabilizovaného rozpuštěným kyslíkem (α -Zr(O)) proti přechodu do β fáze zirkonia, a základní materiál v β fázi obsahující menší množství rozpuštěného kyslíku. V případě prasknutí palivového pokrytí může oxidace probíhat v blízkosti místa prasknutí nafouknutého pokrytí taktéž na vnitřním povrchu. [22, 18]

Rychlost oxidační reakce je řízena difúzí aniontů kyslíku přes vrstvu ZrO_2 , která se vyznačuje nedostatkem aniontů. Parabolická kinetika, která je předpokladem Arrheniova zákona, se z hlediska hmotnostního přírůstku, tloušťky oxidické vrstvy (čtverečná (tetragonální) oxidická struktura) a vrstvy α -Zr(O) uplatňuje nad teplotou 1 323 K. Pod teplotou 1 173 K se z hlediska růstu oxidické vrstvy projevuje kubická kinetika (jednoklonná (monoklinická) struktura oxidu), ale růst α -Zr(O) vrstvy zůstává parabolický. V průběhu delší doby (> 30 minut při teplotě zhruba 1 200 K) se charakter oxidace mění na oxidaci odlupováním oxidického povlaku (*breakaway oxidation*), která se vyznačuje lineární kinetikou růstu oxidické vrstvy. Tato skoková změna rychlosti růstu oxidické vrstvy, při které se ale rychlost růstu α vrstvy nemění, nastává při teplotě 1 853 K. Ve stejné teplotní oblasti přechází struktura oxidu z tetragonální na kubickou. [22]

Data prokazující jakoukoli závislost rychlosti oxidační reakce na tlaku systému, druhu materiálu či obsahu (< 10 %) nečistot v páře (například přítomnost dusíku) nejsou pro vysoké teploty v dostatečném množství k dispozici. Jedinou závislostí, která byla v tomto ohledu do této doby zjištěna, je, že vysoká koncentrace vodíku (při > 50 % parciálního tlaku) oxidační reakci tlumí. Rychlost oxidace Zry-4 je primárně řízena dostupností vodní páry v AZ a difúzí kyslíku. V oblasti nižších teplot ($\leq 1 500$ K) je oxidace omezena zejména difúzí kyslíku do Zry-4. Nicméně jakmile maximální teplota AZ překročí 1 500 K, dochází, v důsledku redukce účinnosti pozitivní zpětné vazby mezi teplotou AZ a rychlostí oxidace způsobené růstem tloušťky vnější oxidické vrstvy, k omezení ohřevu AZ a snížení oxidační rychlos-

ti.⁹ Nicméně dříve než v AZ zoxiduje veškeré množství Zry-4, je ochranný účinek oxidického povlaku přemožen růstem rychlosti difúze kyslíku do Zry-4, která je přímo úměrná teplotě. S rostoucí teplotou AZ se více než teplotní závislost oxidace projevuje význam *in-vessel* termohydraulických podmínek, zejména zvýšené koncentrace vodíku v horní části AZ či snížení rychlosti produkce páry v důsledku snížené hladiny chladiva, které, zejména v horní části AZ, omezuje maximální rychlost oxidace. [41, 22]

1.2.1.2 Oxidace nerezové oceli za vysokých teplot

Pro oxidační reakce nerezové oceli v oblasti vysokých teplot neexistuje dostatek dat. Její oxidický povlak se skládá z několika vrstev. Při delších časových úsecích (více než 6 - 28 minut) se nad teplotou 1 273 K, projevuje parabolická kinetika oxidace, i když v první fázi může mít lehce lineární charakter. Oxidační kinetika nerezové oceli nad teplotou 1 425 K předstihne kinetiku Zry-4, avšak pro daný hmotnostní přírůstek je uvolněné teplo ve srovnání se Zry-4 desetinné. [22]

1.2.2 Chemické interakce Inconelu se zirkoniem a vytváření eutektických tavenin

Inconel je druh korozivzdorné slitiny niklu, chromu a železa či molybdenu, ze které se pro jaderný průmysl vyrábí například distanční mřížky. Experimentálně se zjistilo, že k jejich tavení a selhání dochází pod teplotou tavení Inconelu ($\sim 1\,723\text{ K}$). Vytváření prvotních tavenin je způsobeno eutektickými interakcemi niklu a dalších komponent inconelové slitiny se zirkoniem, což bylo ověřeno vizuálním pozorováním a měřením teplot v rámci experimentů typu CORA. Příčinou jejich vzniku je termodynamická nestabilita komponent z nízkolegovaných zirkoniových slitin, nerezových ocelí a Inconelu. Kritická jsou místa styku distančních mřížek s palivovým pokrytím, pokrytím neutronových absorbérů či vodicími trubkami. [52] O začátku tavení nerozhoduje teplota tavení čistých materiálů, ale chování jejich slitin či směsí. Tenké vrstvy ZrO_2 na povrchu zircaloyového pokrytí sice oddalují počátek chemických interakcí Zry-4 s Inconelem, ale nemohou jim zabránit. Před tím je však nutné tento oxidický povlak rozpustit. Čím větší je počáteční tloušťka ZrO_2 , tím déle je eutektickým interakcím zabráněno. K počátku tavení dochází v okolí teploty 1 273 K. Rychlé a úplné roztavení Zry-4 a Inconelu nastává nad teplotou

⁹Rychlost oxidace se s růstem tloušťky oxidu snižuje, tj. rychlost oxidace je nepřímo úměrná tloušťce vrstvy oxidu.

1 523 K, tedy asi 200 K pod bodem tavení Inconelu. Reakční kinetika obou komponent je snížena větším množstvím kyslíku rozpuštěného v α -Zr(O), které odsouvá tavení do vyšších teplot. [22, 48]

1.2.3 Produkce vodíku jako výsledek oxidační reakce kovových komponent v průběhu odkrývání AZ

Vodík je produktem oxidačních reakcí komponent AZ, zejména exotermické reakce Zry-4, s vodní párou.¹⁰ Rychlost jeho produkce závisí zejména na teplotě zircaloyového palivového pokrytí a na tloušťce ochranné oxidické vrstvy. Proces produkce vodíku během odkrývání AZ je dostatečně prozkoumaný a těžkohavarijní výpočtové kódy nemají problém s jeho modelací. Celkové množství vodíku uvolněné před znovuzaplavením AZ je integrálním měřítkem stupně preoxidace palivového svazku. [18]

Pro vytvoření vhodného návrhu *in-vessel* i *ex-vessel* havarijních systémů spalování vodíku je nutná znalost rychlosti produkce vodíku, která v průběhu těžké havárie nesmí, spolu s jeho celkovým množstvím, překročit kritické hodnoty uvažované JE:

- Pasivní autokatalytické rekombinátory potřebují ke svému rozběhnutí určitou minimální koncentraci vodíku. Pracují zvolna, a proto je nutné správně určit plochu jejich povrchu i jejich umístění v rámci kontejnmentu.
- Koncentrace vodíku v kontejnmentu se může stát těkavou nedlouho před dosažením meze výbušnosti, což použitelnost pasivních autokatalytických rekombinátorů omezuje. [27]

Rychlost a míra produkce vodíku, který místem prasknutí primárního okruhu proniká do kontejnmentu, ovlivňuje jeho integritu. Na základě oxidační kinetiky lze v případě neměnné geometrie AZ míru produkce vodíku v průběhu těžké havárie odhadnout. Praskáním, selháním a tavením palivového pokrytí a jeho odtokem se vytváří nové zoxidovatelné plochy a úroveň neurčitosti takových odhadů se podstatně zvyšuje. V případě velkých PWR o elektrickém výkonu 1 000 až 1 500 MW se může celkové množství vodíku uvolněného během těžké havárie pohybovat v rozmezí 500 až 1 500 kg. Při mísení se vzduchem a souběžné kondenzaci páry

¹⁰Po začátku tavení komponent AZ z jiných materiálů se jejich příspěvky k celkovému množství vodíku vyprodukovaného v TNR redukuje.

na chladných stěnách kontejnmentu může podle průběhu havarijních sekvencí docházet ke vzniku těkavých směsí vodík-pára-vzduch. Stav, kdy do kontejnmentu neproudí dostatečné množství páry, které by ředilo plynnou směs, ovlivňuje činnost systémů spalování vodíku v kontejnmentu. Vznícení takové směsi by mohlo vést k velkým tlakovým zatížením stěn kontejnmentu a ohrozit jeho těsnost. ¹¹ [22, 26, 5]

1.2.4 Nafouknutí, praskání a selhání palivového pokrytí v důsledku vysokých teplot

Vysokoteplotní zkřehnutí palivového pokrytí má za následek porušení části palivových tyčí. Celkový počet porušených palivových tyčí závisí na mechanických vlastnostech zirkoniové slitiny palivového pokrytí. V průběhu LB LOCA dochází obecně k poklesu tepelné vodivosti a tažnosti materiálů palivových tyčí i dalších konstrukčních materiálů, ale teplotní koeficient roztažnosti, mez kluzu a křehkost těchto materiálů rostou. Schopnost odolávat mechanickým namáháním v první fázi havárie závisí především na míře zkřehnutí palivového pokrytí vlivem oxidace. Oxidace rovněž zvyšuje teplotu tavení materiálů AZ a snižuje jejich tepelnou vodivost a hustotu, což se odráží v chování palivového pokrytí (nafukování, prasknutí, selhání). [22, 48]

Ke ztrátě původní geometrie AZ může docházet postupně, během několika minut až hodin, v teplotním rozsahu od 1 000 do 3 000 K. Konkrétní časový a teplotní průběh silně závisí na konkrétních materiálech, prvotním odkrytí AZ, rychlostech jejího zahřívání, tlaku v systému a celkové termohydraulické odezvě JE. Geometrie AZ se mění hlavně s nárůstem lokální teploty AZ, a tak většina těchto změn může nastat v různých oblastech AZ současně. V počátečních fázích přechodových událostí, které v čase obvykle vedou ke zvýšení maximální a průměrné teploty AZ a v průběhu nízkotlakých havarijních sekvencí dochází při dosažení teploty AZ kolem 1 000-1 200 K k nafouknutí palivového pokrytí (*ballooning*) a praskání palivových tyčí. Nafouknutí palivového pokrytí nastane v případě, že tahové napětí, způsobené rozdílem tlaků napříč tloušťkou pokrytí, přesáhne mez kluzu materiálu, a to zejména až po přechodu do β fáze zirkonia. Z hlediska uchlazenosti AZ by dle všech dosavadních experimentů nemělo nafouknutí palivového pokrytí představovat žádný problém. Oxidace takové chování může oddálit nebo mu dokonce zamezit a to díky poklesu rychlosti tečení α -Zr(O) fáze. Existence této vrstvy vede

¹¹Energie uvolněná spálením 1 kg vodíku (120 MJ/kg) odpovídá energii 30 kg TNT.

k největšímu zpevnění materiálu. Jeho dalším zahřátím se vytvoří dvojitá struktura α fáze rozptýlené v matici β fáze, jejíž výsledná vyšší rychlost tečení odpovídá slabší β fázi a dosažené zpevnění je malé. Do dosažení hranice $\frac{\beta}{\alpha} + \alpha$ neovlivňuje přídavek kyslíku v pevném roztoku creepové chování β -Zr. Další následující přídavek kyslíku přispívá k vytvoření vnější vrstvy silnější α fáze a v jejím důsledku ke snížení rychlosti tečení. [41, 22, 49, 36]

Hlavními parametry, které ovlivňují deformaci a prasknutí palivových tyčí, jsou napětí, pevnost a teplota. S rostoucí teplotou se snižuje pevnost, strukturální integrita i korozní odolnost materiálů. Mechanické vlastnosti dále závisí na vlastnostech legur, tlaku v systému, oxidaci v průběhu přechodové události a stupni ozáření. Výzkumu oxidace, zkřehnutí, deformace a prasknutí palivového pokrytí se věnovalo mnoho experimentů. Většina z nich se zaměřovala na určení teploty a tlaku prasknutí a deformačního profilu jedné či více palivových tyčí. Z hlediska křehnutí došlo k určení kritérií založených na podílu zbývající β fáze, rozsahu oxidace a podílu kyslíku v β fázi. Vnitřní mechanismus deformace lze vysvětlit mechanickým namáháním souvisejícím s vysokým objemovým poměrem oxidu ku spotřebované kovové matici. Hlavními důsledky tohoto druhu změn geometrie AZ je rozpad vrstvy ZrO_2 a základní, křehké a na kyslík bohaté, vrstvy α -Zr(O) zircaloyového palivového pokrytí. [22, 5]

Vnitřním přetlakem prasklých palivových tyčí se do primárního okruhu uvolní plynné štěpné produkty. Tento druh poškození geometrie AZ způsobuje změny proudění v AZ důsledkem vytvoření lože trosek a dalšími způsoby ovlivňuje vývin tepla v důsledku oxidace:

- zvětšením plochy povrchu palivového pokrytí využitelné pro další oxidaci a přestup tepla,
- prasknutím palivového pokrytí pára vnikne do mezery mezi palivovými peletami a nafouknutým pokrytím, kde může zoxidovat jeho vnitřní stranu,
- praskáním oxidické vrstvy palivového pokrytí se odhalují nové zoxidovatelné kovové povrchy. [41]

1.2.5 Tavení a přesun materiálů konstrukcí AZ v první fázi těžké havárie

Tavení materiálů AZ je silně ovlivněno profilem oxidace palivového pokrytí určující množství nezoxidované Zry-4, které přispívá k rozpouštění UO_2 a ZrO_2 , a

tloušťkou vrstvy ZrO_2 schopnou udržet na místě roztavenou směs U-Zr-O. [22, 5] Do teploty 2 033 K (teplota tavení Zry-4) hraje oxidace Zry-4 v havarijních sekvencích dominantní úlohu. V rozmezí teplot 2 030 až 2 130 K se začíná tavit β -Zr a po dosažení $\sim 2\,400$ K i α -Zr(O). [16, 20] Tavení palivové tyče probíhá podobným způsobem jako stékání a tuhnutí vosku po zapálení svíčky (*candling*). V oxidačním prostředí se na povrchu tyče tvoří tenká vrstva ZrO o vysoké teplotě tavení. Roztavené palivo, umístěné v tomto oxidickém pouzdře, si zachovává původní geometrii. Při porušení oxidické vrstvy začne roztavené palivo vzniklými otvory vytékat na povrch palivové tyče. Nedostatkem *out-of-pile* experimentů s elektricky vyhřívanými tyčemi je, že v průběhu tavení dochází ke ztrátě kontaktu paliva s topnou tyčí, což urychluje jeho tuhnutí, ale ve skutečnosti existují uvnitř paliva zdroje tepla i v průběhu stékání nataveného paliva. [48]

Odtok roztavené Zry-4 do velké míry závisí na teplotní historii. Ochranný oxidický povlak na vnějším povrchu pokrytí ho může zdržet nebo mu zabránit. V případě rychlých přechodových událostí (rychlosti ohřevu nad 0,3 až 0,5 K/s) nebo přechodových událostí s nízkou úrovní hladiny chladiva v AZ je vytváření ochranných oxidických vrstev na vnějším povrchu zircaloyového pokrytí omezeno. Zircaloyové pokrytí se proto ihned po překročení teploty tavení může při absenci ochranného oxidického povlaku začít tavit a odtékat do spodních oblastí AZ. Roztavená Zry-4 nemá možnost začít rozpouštět UO_2 . Vytvoření silné ochranné oxidické vrstvy na vnějším povrchu pokrytí během pomalejších přechodových událostí (rychlost ohřevu pod 0,3 až 0,5 K/s) brání odtoku roztavené Zry-4. Vznik této vrstvy může být urychlen přechodovými událostmi charakterizovanými vícenásobným ohřevem a zchlazováním AZ s maximálními teplotami pod bodem tavení Zry-4. Příkladem takové přechodové události může být cyklické otevírání regulačních ventilů nebo periodické vstřikování hydroakumulátorů. Střední rychlosti počátečního ohřevu AZ vedou ke kombinaci oxidace veškeré Zry-4 a jejího odtoku. [41, 5]

Proces oxidace odtékající Zry-4 po selhání palivového pokrytí sice může dále pokračovat, ale zlepšený přestup tepla při pohybu taveniny do chladnějších oblastí AZ způsobí rychlé ochlazení materiálu, zatuhnutí a zmenšení jeho plochy a ukončí proces oxidace. Roztavená Zry-4 po odtoku do chladnějších oblastí AZ zatuhne na distančních mřížkách či v blízkosti vodní hladiny. Ke snížení oxidace rovněž přispívá vytvoření překážek, které zmenšují plochy povrchů vystavené páře. Přesný popis přenosu tepla a geometrických změn v tavící se AZ je obtížný, zejména s ohledem na nedostatek publikovaných údajů o vlastnostech taveniny. [41, 48, 5]

1.2.6 Proces znovuzaplavení odkryté AZ

Znovuzaplavení AZ lze popsat jako havarijní vstřikování chladiva do poškozené AZ za účelem jejího zchlazení. Tento děj může vést buď ke zchlazení AZ a zastavení havárie (dosažení rovnováhy mezi vývinem tepla a jeho odváděním), nebo k nárůstu teploty a dalšímu rozvoji havárie (nedostatečný chladicí účinek systémů havarijního dochlazování produkující množství páry pro oxidaci palivového pokrytí). [48, 36] Vyznačuje se rovněž komplikovanou termohydraulikou s různými režimy proudění. Současné modelování tohoto procesu výpočtovými kódy zahrnuje stále velké množství neurčitostí, které je nutné pokračováním experimentálního i teoretického výzkumu redukovat. [56] Výchozím stavem před zahájením znovuzaplavení je odkrytá AZ, která se v důsledku zbytkového tepla a energie naakumulované před LB LOCA nepřetržitě zahřívá. [26]

Podmínky pro úspěšné znovuzaplavení AZ lze dle Heringa a Homanna stanovit z korelace stupně jejího poškození způsobeného znovuzaplavením s dodatečnou produkcí vodíku v jeho průběhu. [9] Pro zachování uchlazitelnosti AZ je s rostoucím stupněm jejího poškození zapotřebí rostoucí schopnost jejího znovuzaplavení. Účinnost chlazení rovněž ovlivňují: hmotnostní průtok a způsob vstřikování chladiva, průtočný průřez, teplota a tlak chladicího systému reaktoru (RCS, *reactor cooling system*) při zaplavení, návrh AZ i předchozí průběh teplot. ¹² [9, 18] Z analýzy dat provedené Heringem a Homannem na základě údajů ze znovuzaplavení AZ v průběhu havárie TMI-2, stejně jako *in-pile* a *out-of-pile* experimentů, vyplývá, že při dodávání dostatečně vysokého hmotnostního průtoku chladiva lze AZ s částečně poškozenými palivovými svazky, včetně lokální existence trosek, úspěšně znovuzaplavit až do maximálních teplot $\sim 2\,200\text{ K}$ při zachování dlouhodobé uchlazitelnosti výsledné geometrie. ¹³ Přesná kvantifikace stupně poškození znovuzaplavitelného palivového svazku nicméně zůstává problematická, a to nejen z důvodu jednorozměrného charakteru svazkových experimentů a jejich malého měřítka, ale rovněž kvůli *out-of-pile* typu většiny testovacích zařízení, která je vybavena ohříváky z odporových drátů stabilizujících sloupce palivových pelet i v případě selhání jejich pokrytí. [9] Z výsledků analýzy experimentů prováděných ve

¹²Přechodové události probíhající před znovuzaplavením vedou k silné oxidaci AZ. Jejich důsledky snižují zoxidovatelné množství Zry-4 pro fázi znovuzaplavení a celkově i dopady oxidace probíhající v této fázi. [41]

¹³Při této teplotě už dochází k lokálnímu tavení β fázi zirkonia (Zr), nicméně je stále nižší než teplota globálního selhání a tavení α -Zr(O) (viz dále část Vysokoteplotní oxidace). Výjimkou jsou testy s absorberými neutronů z B₄C (karbidu bóru), který způsobuje vytváření eutektických nízkoteplotních tavenin. [18]

zkušebních zařízení PBF a LOFT odvodil Cronenberg hmotnostní průtok chladiva o velikosti 1-2 g/s na palivovou tyč, který je nutný pro úspěšné znovuzaplavení AZ zahřáté na teplotu 2 000 K a pro zamezení růstu teploty v důsledku exotermických oxidačních reakcí. [7]

Rychlé zahřívání a chlazení AZ mohou ovlivnit rychlost úniku štěpných produktů (viz experimenty PBF SFD-ST a LOFT/LP-FP-2) a tlak v RCS, který vlivem produkce velkého množství páry a vodíku během znovuzaplavení může rychle vzrůst (viz havárie TMI-2, kdy při tlaku RCS ~ 6 MPa došlo po začátku tavení AZ ke krátkému spuštění jednoho z hlavních cirkulačních čerpadel a v důsledku toho i k nárůstu tlaku s amplitudou až 3 MPa). [22, 5, 68, 76]

1.2.6.1 Mechanismy chlazení palivových tyčí

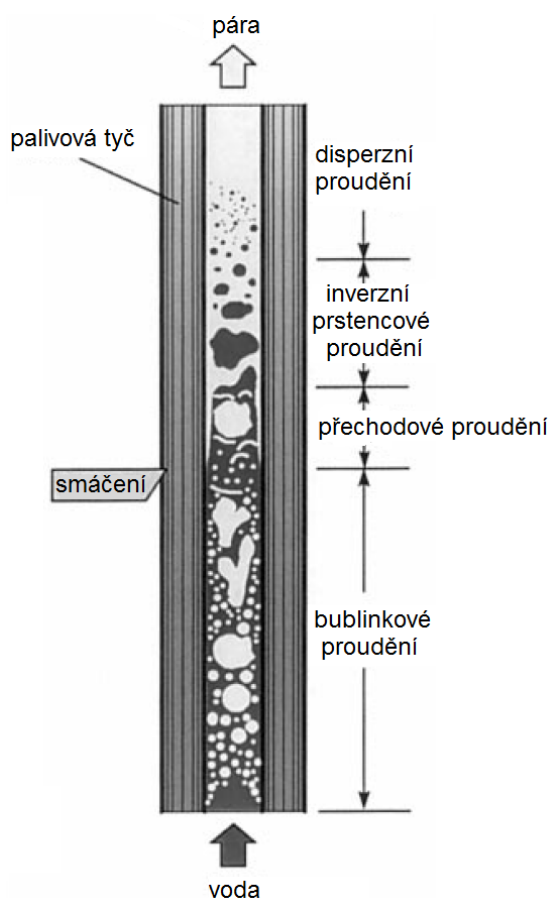
Před znovuzaplavením je úroveň chlazení AZ nedostatečná. Na chlazení se podílí především proudící pára s unášenými kapičkami vody. Typickým je vznik krize varu druhého druhu (vysušení teplosměnných povrchů, *dryout*) a postupné zahřívání palivových tyčí. Za účelem obnovení dostatečného přestupu tepla se přehřáté palivové tyče v AZ PWR obvykle zaplavují zdola.¹⁴ [48, 26]

V průběhu znovuzaplavení ~ 4 metry vysoké AZ reaktoru zažívají palivové tyče různé mechanismy chlazení (viz Obrázek 1.2). Havarijním vstříkáváním chladiva zdola vzniká chladicí fronta (*quench front*), která bude v ideálním případě bude postupně stoupat hladkým kanálem a vytvářet hranici smáčeného pásma.¹⁵ V reálném případě však postup chladicí fronty neprobíhá takto zjednodušeně, ale uplatňuje se při něm celá řada dalších vlivů, včetně různých stavů povrchu, existence dalších konstrukcí uvnitř chladicího kanálu či nerovnoměrnosti rozložení výkonu. Horní část palivových tyčí může být chlazená konvekcí páry vznikající v dolní části palivového svazku. S růstem hladiny chladiva v přehřátém palivovém svazku dochází k přestupu tepla v dvoufázovém proudění. Blízkost chladicí fronty zintenzivňuje přestup tepla z palivových tyčí do směsi páry a vodních kapek. V oblasti blánového varu zabraňuje vysoká teplota palivových tyčí ($\geq 1\,300$ K) opětovnému smáčení vnějšího povrchu palivového pokrytí a přestup tepla má malou intenzitu. Přejechod z blánového varu na bublinkový var (Leidenfrostova teplota), při kterém již ke smáčení dochází, je doprovázen silným nárůstem součinitele přestupu tepla.

¹⁴Existují i varianty vstříkávání chladiva shora AZ nebo kombinovaným způsobem. Prozatím není zcela jasné, který způsob vstříkávání chladiva (shora, zdola či kombinovaný) je pro chlazení přehřáté AZ nejúčinnější.

¹⁵Místo přechodu blánového varu ve var bublinkový.

V závislosti na přechodové události vedoucí k LB LOCA se Leidenfrostova teplota pohybuje od 1 250 K až k 650 K. Chlazení palivových tyčí následně probíhá prouděním do chladiva. [26, 36]



Obrázek 1.2: Různé mechanismy chlazení palivových tyčí během ideálního případu znovuzaplavení. [15]

1.2.6.2 Oxidace komponent AZ v průběhu znovuzaplavení

Přechod do bublinkového varu a jemu odpovídající rychlá změna efektivity chlazení může způsobit napětí vedoucí ke vzniku prasklin v oxidické vrstvě palivového pokrytí. Rychlost pohybu chladící fronty závisí především na teplotě stěny, tloušťce pokrytí, jeho tepelné vodivosti a pravděpodobně i na stavu jeho povrchu. Obecně ji nelze ztotožnit s rychlostí pohybu hladiny, kterou je možno si představit jako horizontální hranici, pod kterou se nachází již jen jednofázové (kapalné) chladivo, v znovuzaplavované AZ. Teplotní gradienty, které dosahují maxima v okolí chladící fronty, mohou vést k odlupování oxidické vrstvy či selhání palivového pokrytí. Nízkoteplotní praskání oxidické vrstvy palivového pokrytí nezpůsobuje nárůst teploty

vlivem oxidace, ale může ovlivňovat uvolňování vodíku rozpuštěného v základovém kovu. Z pohledu oxidace tak není tato teplotní oblast nijak zásadní. [48, 36]

V již částečně zoxidovaném zircaloyovém pokrytí, zahřátém na vysoké teploty, se při znovuzaplavení v oxidické vrstvě a křehkém α -Zr(O) vytváří praskliny. Tyto defekty vyvolává napětí, které v důsledku rozdílu teplotních roztažností různých vrstev palivového pokrytí při chlazení vzniká. K praskání palivového pokrytí, které je doprovázeno zvýšenou oxidací, může dojít též v důsledku fázové změny materiálu během znovuzaplavení (viz část Vysokoteplotní oxidace palivového pokrytí). Při teplotě 1 473 K přechází ZrO_2 z tetragonální na monoklickou strukturu, což je doprovázeno skokem v teplotním namáhání. I při změně β -Zr na α -Zr dochází během rychlého zchlazení ke vzniku napětí a k radiálním teplotním gradientům. [35, 36]

Produkce vodíku během znovuzaplavení AZ Příčiny rychlého nárůstu produkce vodíku v průběhu znovuzaplavení lze shrnout následujícím způsobem:

- Praskání oxidického povlaku zircaloyového pokrytí jako důsledek velkých mechanických napětí generovaných rychlým zchlazením palivových tyčí či fázovými změnami materiálu během chlazení. Praskliny představují nové povrchy kovové Zry-4 vystavené oxidaci, která má za následek lokální růst teploty a další rychlé uvolňování vodíku.
- Podle podmínek okolního prostředí může Zry-4 v oblasti vysokých teplot fungovat jako spotřebič i zdroj vodíku. Absorpce vodíku silně závisí na morfologii oxidického povlaku. Otevřené praskliny oxidických povlaků vzniklé odlupováním oxidu vedou ke značně vyšším koncentracím vodíku v kovu než by se podle jeho parciálního tlaku v paroplynné směsi dalo očekávat. Zdrojový člen vodíku může ovlivnit absorpce a rozpustnost vodíku v Zry-4 v průběhu oxidace vedoucí ke křehnutí palivového pokrytí a pozdějšímu uvolňování vodíku během znovuzaplavení AZ. ¹⁶ [26, 56, 18, 36]

Množství vodíku vyprodukovaného před a v průběhu znovuzaplavení mezi sebou žádným způsobem nekoreluje. Prostřednictvím existujících korelací pro oxidaci Zry-4 v páře prozatím nelze nárůst produkce vodíku během znovuzaplavení spolehlivě predikovat. [18, 36]

¹⁶Rozpustnost vodíku v ZrO_2 je velmi nízká.

1.2.6.3 Změna geometrie AZ v důsledku oxidace během znovuzaplavení

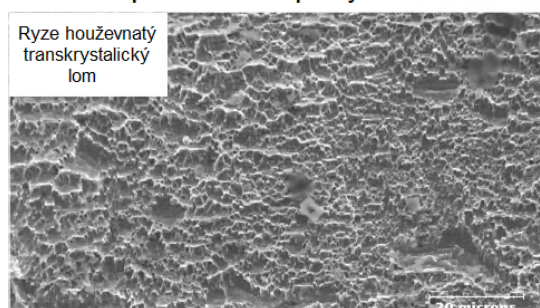
Ztráta hermetičnosti v případě části palivových tyčí může být v průběhu znovuzaplavení AZ způsobena vlivem teplotního šoku. Schopnost jim odolávat při dochlazování AZ závisí především na míře zkřehnutí palivového pokrytí vlivem oxidace. Ke změnám geometrie spojeným s fragmentací palivového pokrytí může v této fázi těžké havárie docházet kdykoli, jakmile konstrukce AZ absorbovala dostatečné množství kyslíku a zkřehla. [41, 22, 48]

Oxid vytvořený na povrchu palivového pokrytí v důsledku oxidace se až do své teploty tavení považuje za křehký materiál. Mikrostruktura zoxidovaného zircaloyového palivového pokrytí silně ovlivňuje jeho schopnost odolávat tepelným šokům během znovuzaplavení. Dominantní úlohu v tomto sehrává vrstva β fáze vyznačující se vysokou tažností, která zamezuje vzniku prasklin a zastavuje růst trhlin vzniklých ve vrstvách oxidu a v α fázi. Kyslík obsažený v α -Zr snižuje její tažnost, a to zejména při nízkých teplotách. [36]

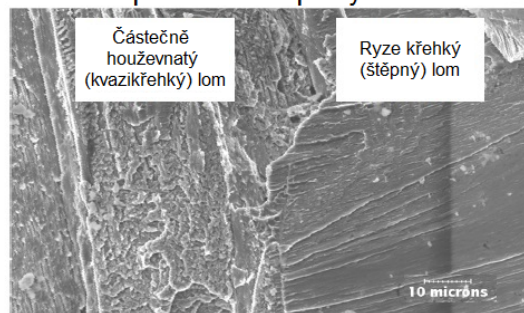
Rychlost chlazení během fázové přeměny $\beta \rightarrow \alpha$ ovlivňuje mikrostrukturu přeměněné β fáze a tedy i lomové vlastnosti materiálu (viz Obrázek 1.3). Obecně lze konstatovat, že:

- s nárůstem rychlosti chlazení během fázové přeměny (~ 5 až 100 K/s) se v přeměněné β fázi snižuje rozsah přerozdělení kyslíku a podíl oblastí ochuzených o kyslík,
- pokud během oxidace při teplotě $\geq 1\ 600$ K přesáhne obsah kyslíku v materiálu $\sim 0,9$ hmotnostních %, zmenší se účinek rychlosti chlazení na přerozdělení kyslíku. [36]

Znovuzaplavení z teploty 973 K



Znovuzaplavení z teploty 1 073 K



Obrázek 1.3: Během znovuzaplavení z teplot 873 nebo 973 K dochází při nízkých rychlostech chlazení k obnovení tažnosti materiálu (fraktografie zobrazující lomové chování původní β -Zr. [43]

Během oxidace při teplotách $< 1\,600\text{ K}$ a pomalých rychlostech chlazení během fázového přechodu ($\sim 5\text{ K/s}$) dochází k nejednotnému uspořádání kyslíku v přeměněné β fázi. Kyslík je přerozdělen mezi křehká α zrna sloupcového tvaru a tažné oblasti mezi zrny. K jednodušší iniciaci praskliny dochází v oblastech bohatých na kyslík. Naopak oblasti s jeho nedostatkem bývají tažnější. Šíření trhlin skrz přeměněnou β fázi, ve které je kyslík přerozdělen, je složitější než skrz relativně homogenní materiál, který odpovídá vysokým oxidačním teplotám a rychlostem chlazení ($\sim 100\text{ K/s}$). Pomalejší chlazení vytváří mikrostrukturu, která je odolnější vůči tepelným šokům. [36]

Proces fragmentace zkřehnutých materiálů palivových tyčí je při teplotách nižších než $1\,500\text{ K}$ relativně dobře znám již z výzkumu zaměřeného na křehnutí pokrytí v průběhu DBA. Změna geometrie při vyšších teplotách již do velké míry závisí na geometrii poškozené AZ v čase znovuzaplavení. V oblastech, kde palivové tyče zůstávají relativně netknuté a maximální teploty se pohybují pod bodem tavení Zry-4, může dojít k fragmentaci paliva i pokrytí a k jejich částečnému zhroucení a vytvoření lože pevných trosek. V oblastech, kde palivové tyče zůstávají relativně netknuté, ale maximální teploty již přesahují bod tavení zircaloyového pokrytí, mohou zůstat palivové pelety relativně beze změn i v případě, že se většina zircaloyového pokrytí již roztavila. Tato relativní stabilita sloupců palivových pelet je způsobena rozpouštěním UO_2 roztavenou Zry-4. Tím dochází k pronikání roztaveného zirkonia do prasklin v palivovém pokrytí i do mezer mezi palivovými peletami a pokrytím. Tento proces svaří palivové pelety dohromady. Ovšem existují zde dvě výjimky. Pokud tavení a odtok roztavené Zry-4 proběhne příliš rychle, dojde během znovuzaplavení ke zhroucení palivových pelet, neboť roztavená Zry-4 nemá dostatek času na to proniknout na rozhraní palivových pelet a do jejich prasklin. Pokud je palivo po delší dobu vystaveno páře, způsobí oxidace UO_2 během znovuzaplavení rozpad palivových pelet po hranicích zrn. [5]

Schopnost zoxidovaného pokrytí odolat zatížením plynoucím ze znovuzaplavení určují:

- Maximální oxidace pokrytí: Vypočítaná celková oxidace palivového pokrytí by nikde neměla překročit 17 % celkové tloušťky palivového pokrytí před oxidací. Celková oxidace znamená celkovou tloušťku kovového pokrytí, z které by se v případě přeměny veškerého absorbovaného a místně zreagovaného kyslíku vytvořil stechiometrický ZrO_2 . Při dodatečné oxidaci vnitřního povrchu pokrytí by měl být do oxidace zahrnut i tento povrch. Tloušťka palivového pokrytí před oxidací znamená tloušťku s ohledem na předpokládané namá-

hání v důsledku prasknutí, deformace nebo napuchání.

- Tloušťka vrstvy β fáze o dané koncentraci kyslíku: Vypočítaná tloušťka pokrytí
 $s \leq 0,9$ hmotnostními % kyslíku založená na průměrné tloušťce stěny by měla být v jakémkoli místě větší než 0,1 mm. [36]

Druhé kritérium je aplikovatelné bez ohledu na teplotu oxidace, počáteční tloušťku stěny, tloušťku stěny po tlakové deformaci a celkový obsah kyslíku v pokrytí, neboť zohledňuje reálné uspořádání kyslíku a kinetiku růstu vrstev. [36] Výše zmíněná kritéria kvalitativně určují selhání pokrytí během znovuzaplavení. K selhání zoxidovaného palivového pokrytí přispívají následující faktory:

- prudké radiální a axiální teplotní gradienty v blízkosti chladící fronty, které vedou k odlupování oxidického povlaku,
- fázová přeměna oxidu a s ní spojená změna teplotní roztažnosti,
- interakce palivové pelety s pokrytím (*pellet-cladding interaction*, PCI) v důsledku různé teplotní roztažnosti palivových pelet i stěny palivového pokrytí. [41, 36]

Geometrické změny AZ v průběhu havárie LB LOCA mohou ucpáním průtočných průřezů mezi jednotlivými palivovými tyčemi zkomplikovat obnovu chlazení. Rovnoměrnost obvodového rozložení teplot rozhodujícím způsobem ovlivňuje obvodovou deformaci palivového pokrytí. V případě nerovnoměrného charakteru zůstávají maximální teploty lokalizované v horkých místech a nedochází ke vzniku rozsáhlých obvodových deformací. Dle experimentálních zjištění nepřesahuje zablokování průtočného průřezu vlivem obvodové deformace palivového pokrytí 60 %, což podstatně neovlivňuje schopnost ECCS. [48]

1.2.7 Dopady rozdílných konstrukcí AZ či TNR na průběh těžké havárie

Mnoho z doposud provedených studií se zaměřovalo na chování palivových svazků a materiálů typických pouze pro PWR a varné reaktory (BWR). Dopady alternativních návrhů AZ a TNR však mohou i přes rozdílné reakce v důsledku jiných teplot tavení nebo vznik slitin s nižším bodem tavení napomoci lepšímu pochopení těžkohavarijních jevů. [41]

V případě typického těžkovodního reaktoru s horizontálními průtočnými tlakovými kanály (PHWR), ve kterých může docházet k průhybu horizontálních palivových svazků a jejich dotyku s vnitřní stěnou průtočných kanálů, se mohou změny geometrie palivového kanálu při teplotách nad 1 000-1 200 K do značné míry odlišovat od změn v LWR se svislými palivovými svazky. V PHWR má roztavený materiál tendenci se lokálně hromadit, neboť se tavenina může přemisťovat pouze do spodní části palivových kanálů. V tomto případě může dojít ke zvýšení počtu překážek omezujících průtok v jednotlivých kanálech. Tyto překážky mohou mít i příznivý účinek, neboť brání páře ve vstupu do kanálů a omezují vznik vodíku. Naproti tomu plášť AZ tlakovodního reaktoru východního typu (VVER), který obsahuje velké množství nerezové oceli, může v případě těžké havárie zafungovat jako velký zdroj produkce vodíku. Ačkoli jsou návrhově celkem podobné PWR, mohou v průběhu těžké havárie JE s VVER, zejména se staršími typy, vykazovat v celkové odezvě významné rozdíly. Dodatečné zásoby vody poměrné k celkovému výkonu AZ v některých VVER, mohou vést k oddálení odkrytí AZ než je tomu u PWR ekvivalentního výkonu. [41, 10]

1.2.7.1 Oxidace a tavení komponent AZ odlišných konstrukcí

Chování AZ, zejména její zahřívání, způsobené oxidací, a tavení jejích materiálů, silně závisí na jejím složení a uspořádání. Ve většině provozovaných energetických reaktorů se používá keramické palivo z UO_2 a palivové pokrytí na bázi zirkoniových slitin. I v případě rozdílných konstrukcí AZ či TNR se proto uplatňují výrazné dopady oxidace zirkonia, s menšími rozdíly v důsledku reálného složení slitin. Například kinetika oxidace slitin zirkonia a niobu (Nb) je o něco nižší než u Zry-4, a proto může být rychlost zahřívání AZ způsobeného vysokoteplotní oxidací o něco nižší než při použití ekvivalentního množství Zry-4. Oxidace a tavení dalších materiálů AZ (materiály distančních mřížek) může mít na její chování důležité, i když značně různorodé dopady. V důsledku silné interakce Inconelu a nerezové oceli se zircaloyovým pokrytím za vzniku slitin s nízkým bodem tavení dochází při relativně nízkých teplotách (1 500 až 1 700 K) ke zničení distančních mřížek z těchto materiálů. Naproti tomu zircaloyové distanční mřížky setrvávají na svém místě do vyšších teplot (2 000 až 2 100 K, a v případě jejich velké oxidace i do teplot vyšších). [41, 5]

1.3 Vysokoteplotní oxidace palivového pokrytí

Vysokoteplotní koroze zirkoniových slitin v oxidujících plynech (vodní páře) je druhem elektrochemické koroze, při které dochází k rozrušování materiálu působením okolního prostředí. Dochází ke znehodnocování povrchové vrstvy, ale také vnitřní struktury materiálu. Oxidační reakce probíhá prostřednictvím následujících pochodů:

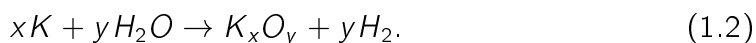
1. přísun kyslíku k povrchu kovu,
2. adsorpce kyslíku,
3. disociace molekuly kyslíku na atomy,
4. rozpuštění kyslíku v kovu až do jeho nasycení,
5. vytržení iontu z kovové vazby a převedení do vazby oxidické. [53]

Po adsorbování kyslíku, a proběhnutí další chemické reakce vznikne na povrchu kovu, K, oxid. Jeho nukleací a nárůstem do stran dojde ke zformování souvislého povlaku, který základní kov pod ním chrání. Může ale rovněž dorůst do neochranného rozsahu, který je doprovázen různými defekty včetně dutin, mikroprasklin a porozity, jak je schematicky zachyceno na Obrázku 1.4. Tyto jevy způsobují zvýšení kinetiky oxidace. Radiální praskliny na povrchu se vytvářejí v oxidické vrstvě a poté i v α -Zr(O) vrstvě. [39, 54]

Oxidaci kovu, K, ve vodní páře lze popsat:

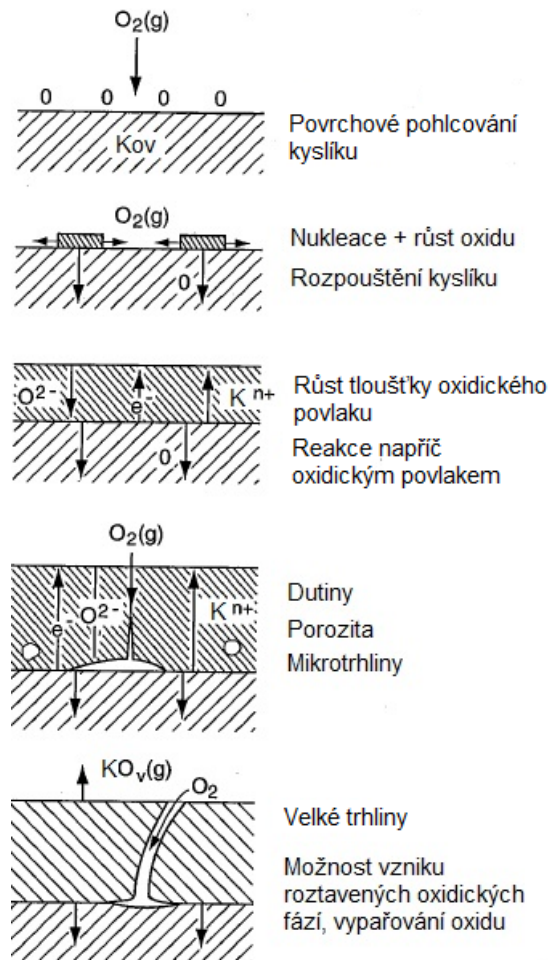


Obecněji



Oxid K_xO_y vytvořený na povrchu kovu dle Obrázku 1.4 se stává bariérou mezi základovým kovem a oxidačním prostředím. Chemické a fyzikální vlastnosti oxidického filmu určují zásadním způsobem kinetiku oxidace a životnosti zařízení vystaveného vysokoteplotním oxidačním prostředím. [54]

Koroze zirkoniových slitin v páře souvisí zejména s oxidací zirkonia, kterou způsobuje kyslík vznikající radiolýzou vody. Kyslík se v malém množství rozpouští i v kovu, ale po překročení meze termodynamické rozpustnosti se na kovovém povrchu



Obrázek 1.4: Tvorba oxidického povlaku a růst jeho tloušťky během vysokoteplotní oxidace kovu. [54]

vytvoří ZrO_2 .¹⁷ Vzniklý oxid je ochranný, neboť omezuje přístup oxidačních složek k základnímu kovu. [32]

Mechanismus oxidace spočívá ve vnitřní migraci iontů kyslíku skrz oxidickou vrstvu, buď přes hranice zrn nebo skrz celý objem. Růst oxidické vrstvy na povrchu kovu závisí na kinetice difúze kyslíku skrz tuto vrstvu. Kinetika koroze se s rostoucí oxidickou vrstvou zpomaluje. Rychlost koroze je řízena přenosem atomových složek v ochranné oxidické vrstvě, buď prostřednictvím difúze kyslíku nebo difúzí elektronů. Pro zachování elektroneutrarity jsou tyto procesy nutně svázány. Legury ovlivňují přenos elektronů či kyslíku v oxidické vrstvě. Pokud není zirkonium legované, je přenos elektronů v ZrO_2 obtížný, neboť se jedná o elektrický izolant. [39]

Zajištění strukturální integrity palivového pokrytí v průběhu LB LOCA havárie

¹⁷Všechny zirkoniové komponenty mají ve stavu po výrobě na svém povrchu obvykle tenký oxidický film (2-5 nm).

je klíčové ze dvou důvodů:

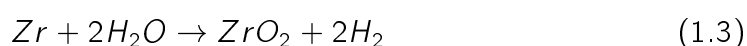
- palivové pokrytí je první bariérou zadržující štěpné produkty,
- je nutné zajistit krátkodobě i dlouhodobě uchlazitelnou geometrii AZ. [43]

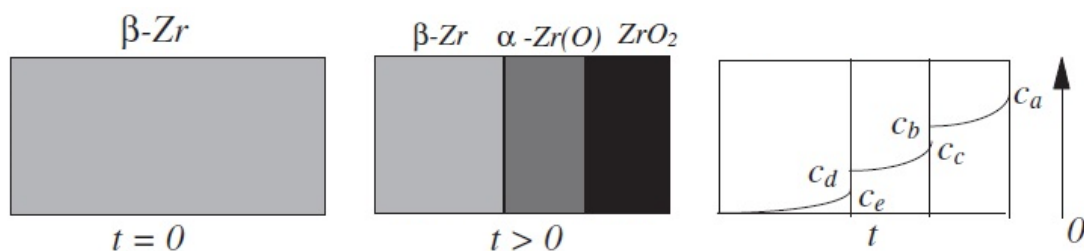
Při teplotách přesahujících 1 300 K přispívá teplo vzniklé vysoce exotermickou oxidací Zry-4 v páře podstatnou mírou (srovnatelnou ke zbytkovému teplu) k zahřívání AZ. Rychlost zahřívání AZ (méně než 1 K/s) způsobená zbytkovým teplem se v experimentu LOFT-FP-2, v důsledku dodatečného vývinu tepla způsobeného oxidací Zry-4, rapidně zvýšila o jeden řád. [22, 23, 31] I když konkrétní důsledek oxidace závisí do určité míry na typu analyzované přechodové události, je exponenciální zvýšení oxidace zircaloyového pokrytí při teplotách přesahujících 1 500 K, způsobující velmi rychlé zvýšení teploty AZ, charakteristickým rysem těžkohavarijních experimentů a simulací JE. Prudký nárůst teploty paliva je přímým důsledkem pozitivní zpětné vazby mezi teplotou a oxidací Zry-4 ve vodní páře. [22, 5] Při teplotách nad 1 850 K dochází k fázové změně molekulární struktury oxidu (z tetragonální na kubickou) vyznačující se vyšší difuzivitou kyslíku, což má za následek velký, téměř skokový nárůst rychlosti oxidace. Teploty palivových tyčí a neporušených komponent AZ se tak rychle zvýší na teplotu vyšší než je bod tavení Zry-4. Jakmile maximální teploty AZ přesáhnou bod tavení Zry-4, stane se následná teplotní odezva AZ, zejména její nejvyšší a nejnižší průměrná teplota, silně závislou na udržované oxidaci Zry-4. [41, 22] Vzhledem k tomu, že celkové množství tepla vzniklého oxidací Zry-4 je dost velké na to, aby se maximální teploty AZ dostaly nad úroveň 3 000 K či k bodu tavení palivových tyčí, je její množství přidané do AZ omezeno (Obrázek 1.5):

1. dostupností páry v AZ,
2. difúzí vodní páry skrz hraniční vrstvu palivového pokrytí bohatou na vodík (*hydrogen blanketing*),
3. difúzní rychlostí kyslíku skrz vnější vrstvu ZrO_2 a základní kovový materiál Zry-4 pod ní. [5]

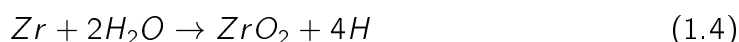
1.3.1 Absorpce a produkce vodíku v průběhu vysokoteplotní oxidace

Při reakci zirkonia s vodní párou vzniká ZrO_2 a atomární vodík (proton):





Obrázek 1.5: Nákres vytvoření vrstvy ZrO_2 a $\alpha-Zr(O)$ a koncentrace kyslíku v jednotlivých vrstvách. [5]



Proton uvolněný oxidací zirkonia se spojí s dalším protonem a vytvoří plyný vodík (rovnice 1.3) nebo difunduje do zirkonia (rovnice 1.4), kde vytváří hydridy zirkonia. Většina protonů vytvořených během oxidace se spojí a vytvoří plyný vodík, ale část vodíku difunduje v průběhu korozního procesu do kovu skrz oxidickou vrstvu. Zirkonium má velmi nízkou rozpustnost vodíku (asi 80 hmotnostních ppm při 583 K a 200 hmotnostních ppm při 673 K).¹⁸ Po překročení meze rozpustnosti vodíku v kovu se vodík vysráží ve formě hydridu zirkonia, který vede k různým typům defektů: vodíkovému zkřehnutí, vzniku puchýřů, ztrátě lomuvé houževnatosti, zpožděnému hydridickému praskání (*delayed hydride cracking*), zrychlení koroze a radiačnímu růstu. Podíl absorbovaného vodíku f_H vyjadřuje podíl vodíku absorbovaného k vodíku uvolněnému během korozní reakce. Celkové množství absorbovaného vodíku je úměrné tloušťce oxidu (s růstem oxidické vrstvy se rychlost absorpce vodíku snižuje, ale v okolí přechodové oblasti oxidu se může opět zvýšit). Konstanta úměrnosti, kterou představuje podíl absorbovaného vodíku, se mění s teplotou, časovou délkou koroze i s typem slitiny. [39]

$$f_H = \frac{H \text{ absorbovaný v palivovém pokrytí}}{H \text{ produkovaný při korozi}}$$

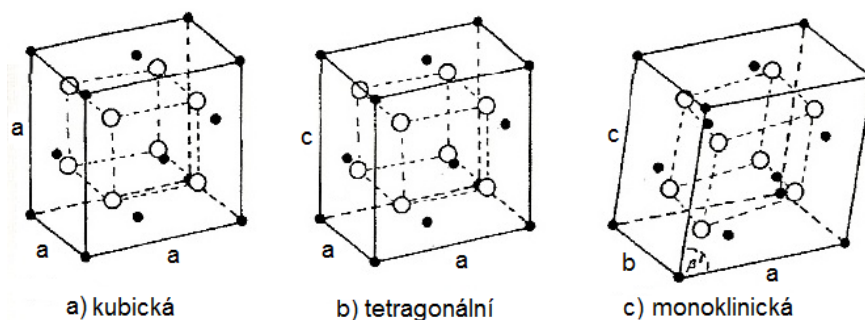
1.3.2 Zirkonium, oxid zirkoničitý a slitiny zirkonia: jejich struktura a základní vlastnosti

Jako alotropický kov se zirkonium vyskytuje ve dvou modifikacích - α a β . Nízkoteplotní α -Zr má těsně uspořádanou hexagonální mřížku a je stabilní až do teploty ~ 1136 K. Vysokoteplotní modifikace zirkonia, β -Zr, má kubickou, prostorově středěnou mřížku a je stabilní až do teploty 2123 K, což je teplota tavení zirkonia. [3]

¹⁸Ppm (*parts per million*) - počet částic na milion, 10^{-6} .

1.3.2.1 Oxid zirkoničitý a jeho fázové přeměny

Kompaktní zirkonium se při zahřátí na 673 až 873 K pokrývá tenkou vrstvou oxidu. [3] Nad teplotou $\alpha \rightarrow \beta$ přechodu zirkonia (nad teplotou $(\alpha + \beta) \rightarrow \beta$ změny zirkoniových slitin) reaguje pára s β -Zr za vzniku povrchové vrstvy ZrO_2 a střední vrstvy α -Zr(O).¹⁹ [19] Kinetika oxidace do značné míry závisí na orientaci zrn během růstu tenkých oxidických vrstev. S rostoucí tloušťkou vrstvy vedou rozdíly v kinetice oxidace jednotlivých zrn ke značnému nárůstu napětí a vzniku trhlin na hranicích zrn, oddělujících rychle a pomalu oxidující oblasti. [6, 75] Monoklinická fáze ZrO_2 je stabilní do teploty 1473 K a nad ní se mění na fázi tetragonální (viz Obrázek 1.6). Při zchlazování je $\beta \rightarrow \alpha$ přechod obvykle bainitický, ale při velmi vysokých rychlostech chlazení (nad 500 K/s) dochází k martenzitickému přechodu. [57] Kinetika a teplota fázové $\beta \rightarrow \alpha$ změny zirkonia i přechodu oxidu z tetragonální na monoklinickou strukturu při chlazení ovlivňují creepové vlastnosti palivového pokrytí i praskání a odlupování jeho oxidického povlaku. [43, 36]



Obrázek 1.6: Alotropické fáze ZrO_2 . [2]

U slitin, stejně jako u čistých kovů, dochází s fázovou přeměnou v tuhém stavu u nové fáze i ke změně struktury a vlastností. V tomto ohledu se může výrazně projevit teplotní závislost koeficientu difúze. Difúzní fázové přeměny v tuhém stavu probíhají prostřednictvím postupného růstu nové fáze a poměrně pomalým posuvem mezifázové hranice. Difúzní přeměny jsou způsobeny difúzí atomů z oblasti jedné fáze do druhé, zatímco bezdifúzní (střihové) přeměny, které se uskutečňují za podstatně vyšších rychlostí, probíhají střihovým mechanismem podobným plastické deformaci. [64] Martenzitická přeměna je zvláštním případem střihové přeměny, při které střihovým mechanismem vzniká, při rychlém ochlazení intersticiální slitiny, metastabilní krystalová struktura. [69]

¹⁹Legury přítomné v zirkoniových slitinách mění teplotu $\alpha \rightarrow \beta$ přechodu v oblasti 150 K, ve které obě fáze koexistují. [57]

1.3.2.2 Obvyklé legury a nečistoty zirkonia

Zirkonium má silnou afinitu ke kyslíku i vodíku a tvoří s nimi stabilní oxidy i hydridy. Kyslík a vodík jsou přitom jedny z nejdůležitějších prvků ovlivňujících fyzikální a mechanické vlastnosti čistého zirkonia i jeho slitin. Účinky nečistot v zirkoniu na jeho vlastnosti:

- zlepšení korozní odolnosti: železo,
- zvýšení tvrdosti: kyslík (pro obsah $< 0,5$ hmotnostních % má zanedbatelný účinek na korozní odolnost a pevnost),
- zhoršení korozní odolnosti: vápník, hořčík, křemík, chlor (ale pouze při překročení obvyklého množství, které se pohybuje v rozmezí $< 0,0015$ až $0,0025$ hmotnostních %),
- znatelné zhoršení korozní odolnosti zirkonia: dusík, hliník, titan, uhlík,
- zhoršení tažnosti zirkonia i jeho slitin: uhlík, vodík, křemík, chlor, fosfor, fluor,
- zvětšení účinného průřezu pro zachyt tepelných neutronů: kadmium, bor, hafnium, kobalt. [72]

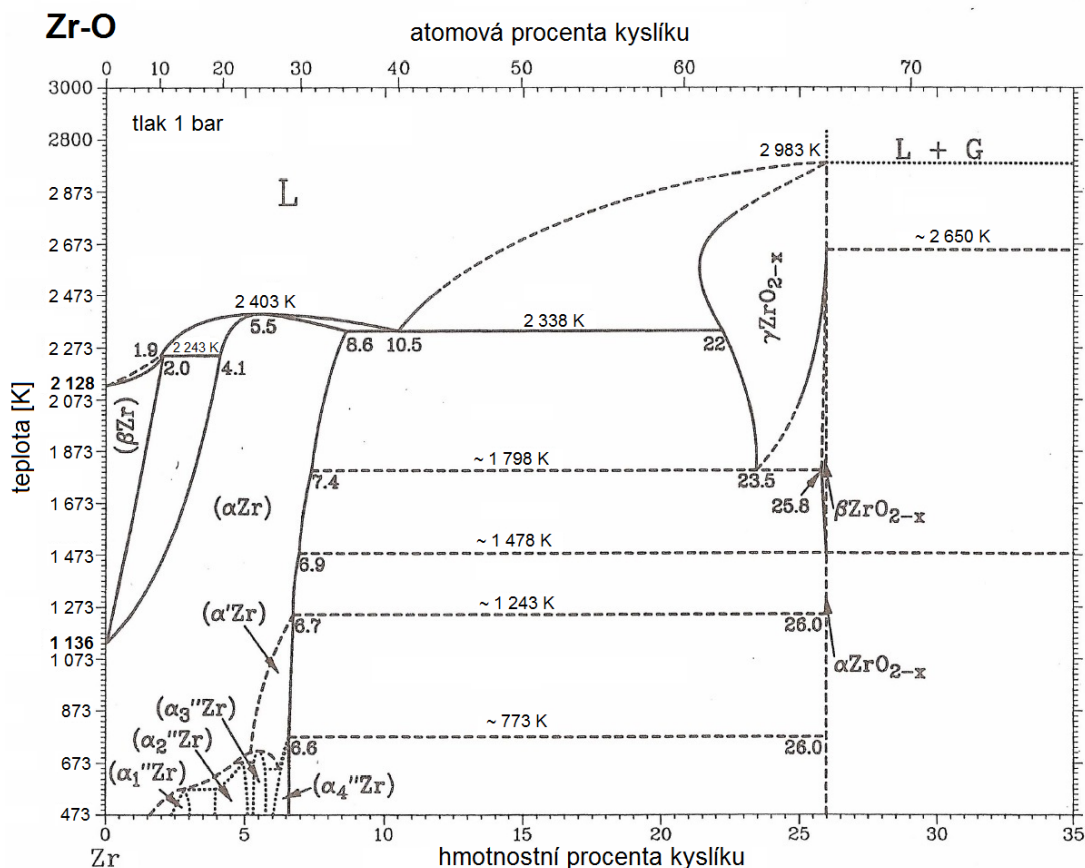
Legury se používají zejména pro zlepšení technických vlastností, v případě zirkonia to jsou zejména korozní odolnost v horké vodě a mechanická pevnost (zvýšení meze kluzu a houževnatosti, snížení rychlosti tečení). Nejčastější legury, které jsou obnaženy v zirkoniových slitinách a které mají nejnižší dopad na vlastnosti potřebné v jaderném průmyslu jsou kyslík, cín a niob. Ostatní legury jako železo, chrom, nikl, a další, se používají pouze v omezených koncentracích (celkově pod $0,5\%$). [57] V této části jsou uvedeny hlavní legury zirkoniových slitin spolu s krátkým popisem jejich vlastností:

- **Kyslík** je vysoce rozpustný v α -Zr. V binárním systému Zr-O vytváří homogenní tuhý roztok až do ~ 27 hmotnostních % kyslíku (viz Obrázek 1.7). Při vysokých teplotách se stabilizuje na α -Zr(O). Určité množství kyslíku, řádově $\sim 1\ 000$ ppm, lze najít i v technicky čistém zirkoniu. Během dalšího zpracování a použití toto množství roste. Přidává se, obvykle v množství 600 - $1\ 200$ ppm, pro zvýšení meze pevnosti bez toho, aniž by snižoval korozní odolnost. Vysoké koncentrace kyslíku ($> 2\ 000$ ppm) snižují tažnost zirkoniových slitin. Největší měrou se podílí na ovlivnění mechanických vlastností

zirkonia a jeho slitin - zejména pevnosti a tvrdosti při nízkých i vysokých teplotách. [57, 64]

- **Vodík** je v malém množství (řádově do $\sim 0,001$ hmotnostních %) obsažen i v technicky čistém zirkoniu. Jeho vysoká pohyblivost v zirkoniové matici mu umožňuje pronikat z povrchu do vnitřního objemu materiálu. Rozpustnost vodíku v zirkoniu je v porovnání s kyslíkem velmi malá. Ve slitinách zirkonia se rozpustnost vodíku váže na obsah legur, například niobu. Přítomnost kyslíku redukuje rozpustnost vodíku. Za určitých podmínek dochází k pronikání vodíku i skrze ochrannou oxidickou vrstvu. Ve vnitřním objemu slitiny se poté vytváří křehké hydridy, které výrazně ovlivňují mechanické vlastnosti materiálu a jeho odolnost proti porušení. [3, 57, 64]
- **Cín** rozšiřuje oblast α -Zr a jeho maximální rozpustnost v α fázi je 9 hmotnostních % při teplotě 1213 K. Přidává se pro zlepšení korozní odolnosti zirkoniové slitiny. Původně se přidával v koncentracích 1,2-1,7 %, zejména pro zmírňování škodlivých účinků dusíku (množství potřebné ke kompenzaci účinku 300 ppm dusíku je ~ 1 % cínu). V zirkoniové slitině bez obsahu dusíku cín korozní odolnost zhoršoval, proto je v současnosti jeho podíl o něco menší (pro zachování dobrých creepových vlastností). [57]
- **Železo, chrom a nikl** jsou při svých obvyklých koncentracích plně rozpustné v β -Zr, nicméně v α -Zr je jejich rozpustnost velmi nízká. V této oblasti vytvářejí malé částice (precipitáty) intermetalických fází, jejichž velký počet urychluje růst pomalu oxidujících zrn. Uspořádání precipitátů dle velikosti silně koreluje s kinetikou koroze. Lepší odolnost vůči uniformní korozi zirkoniových slitin způsobuje obsah velkých precipitátů. S nárůstem průměrů těchto částic z 0,05 do 0,1 μm nebo větších se koroze palivového pokrytí v reaktoru znatelně zmenší. Jejich hlavním přínosem je vytvoření podmínek pro tvorbu rovnoměrné a silnější oxidické vrstvy s mnohem menším sklonem k odlupování. [57, 64]
- **Niob** (kolumbium) se používá za účelem zlepšení korozní odolnosti. Stabilizuje oblast β -Zr, kterou při vysokých teplotách dokáže rozšířit do celého pevného roztoku mezi ryzím zirkoniem a ryzím niobem. Fázová transformace $\alpha \leftrightarrow \beta$ nastává při ~ 893 K a 18,5 atomových % niobu. V případě zirkoniové slitiny Zr1 %Nb, se kterou se lze setkat u VVER a reaktorů s varnými kanály (RBMK) pod označením E110 nebo M5 pro PWR, odpovídá koncen-

trance niobu v zirkoniové matici ve stavu po výrobě maximální rozpustnosti v blízkosti teploty monotektoidní přeměny, která je vyšší než rozpustnost za provozní teploty. [57, 64]



Obrázek 1.7: Binární fázový diagram soustavy zirkonium-kyslík. [1]

1.3.2.3 Slitiny zirkonia a průběh jejich oxidace

Slitiny zirkonia se vyznačují malým účinným průřezem pro zachyt tepelných neutronů a výbornými mechanickými a korozními vlastnostmi. V jaderném průmyslu se využívají pro výrobu palivového pokrytí i pro použití v tlakových kanálech, palivových kanálů a distančních mřížek většiny PWR a BWR, a dokonce i PHWR typu CANDU (*Canadian deuterium uranium*). [39, 3, 17]

Historicky první zirkoniová slitina, slitina zirkonia s 2,5 hmotnostními, % cínu typu Zircaloy-1, se poprvé použila v komerční JE Shippingport v 60. letech 20. století. Obsah cínu byl kvůli špatné korozní odolnosti posléze zredukován. Náhodná kontaminace jedné taveniny Zircaloy-1 kousky nerezové oceli přinesla v důsledku malých přídavků železa, chromu a niklu velké zlepšení jejich vlastností. Optimalizace složení slitiny vedla k vytvoření Zircaloy-2. Její nevýhodou byl obsah niklu, který

	cín	niob	železo	chrom	nikl	kyslík	síra
Zircaloy-1	2,5					0,12	
Zircaloy-2	1,2-1,5		0,07-0,2	0,1	0,05	0,12	
Zircaloy-3	0,25		0,25			0,12	
Zry-4	1,2-1,7		0,18-0,24	0,1		0,1-0,14	
M5		0,8-1,2	<500 ppm			0,11-0,16	10-35 ppm
E110		1	100 ppm			0,05-0,07	
Zr2,5Nb		2,5-2,7	<650 ppm			0,12-0,15	
E125		2,5-2,6				0,04-0,07	
Zirlo	1	1	0,1			0,09-0,12	
E635	1,2	1	0,35			0,05-0,07	

Tabulka 1.1: Složení některých zirkoniových slitin (koncentrace v hmotnostních % či ppm). [57, 28]

způsoboval absorpci velkého množství vodíku.²⁰ Nahrazení niklu železem a chromem o stejném množství vedlo k vytvoření Zry-4, jejímž hlavní legurou s přibližně 1,5 hmotnostními % je stále cín. [39, 57]

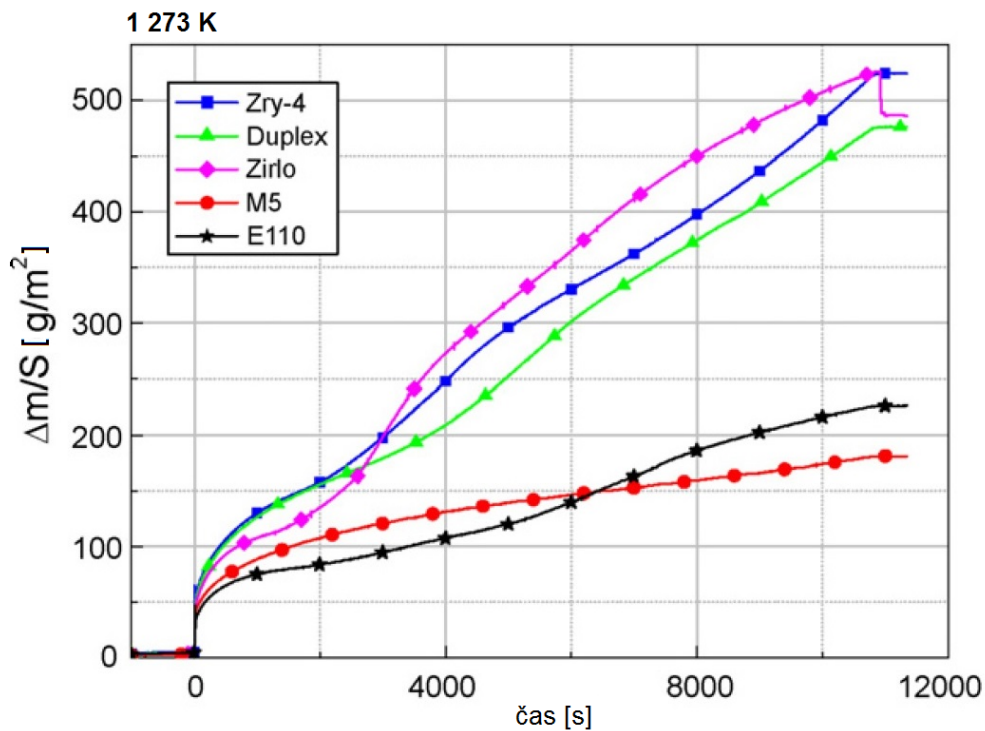
Slitiny zirkonia s původně vysokými koncentracemi niobu (až 4 %) se vyvíjely v Kanadě, Rusku a USA. Pro využití na palivové pokrytí BWR nebyly moc vhodné, a tak se jejich vývoj v USA brzy zastavil. Výsledky použití slitiny Zr2,5 %Nb pro výrobu tlakových kanálů byly celkem uspokojivé, zejména kvůli její malé absorpci vodíku, a proto pokračovala její technická optimalizace v Kanadě i Rusku.²¹ Stejná slitina jako E110 v případě VVER a RBMK, ale s kontrolovanými příměsemi železa a síry, se nyní pod označením M5 využívá v některých PWR, neboť má lepší korozní odolnost než Zry-4. [57]

Oxidace zirkoniových slitin K největším rozdílům mezi různými zirkoniovými slitinami dochází v rozmezí teplot 870- 1 320 K. Při vyšších teplotách dochází k menším, ale stále podstatným, variacím. Kinetika oxidace se řídí rychlostí růstu povrchového oxidického povlaku, který probíhá ideálně podle parabolického nebo, za nižších teplot, podle kubického zákona růstu oxidu. Odlupování oxidického povlaku (vytvoření vrstevnatých a popraskaných oxidických povlaků, které již základní kov nechrání) způsobuje u všech zirkoniových slitiny s výjimkou M5 a vrstvy D4 materiálu DUPLEX přechod z kubické nebo parabolické kinetiky na kinetiku lineární

²⁰Nikl přispíval k hydrolyze vody a bránil opětovnému slučování vodíku s kyslíkem.

²¹Tato slitina se stále využívá pro tlakové kanály CANDU reaktorů.

nebo, při teplotách pod 1 323 K, po určitém čase na kinetiku ještě rychlejší (viz Obrázek 1.8). Odolupávání oxidického povlaku je způsobeno fázovým přechodem oxidu z monoklinické na tetragonální fázi. Během experimentů se odlupávání projevilo pouze u E110, ale po průchodu teplotní oblastí fázového přechodu se opět vytvářel celistvý ochranný oxid (viz Obrázek 1.9). [18]



Obrázek 1.8: Hmotnostní přírůstek na jednotku plochy v průběhu oxidace v páře při teplotě 1 273 K různých materiálů palivového povlaku. [18]



tetragonální fáze ZrO_2
(M5, 1 273 K, 2 400 s)



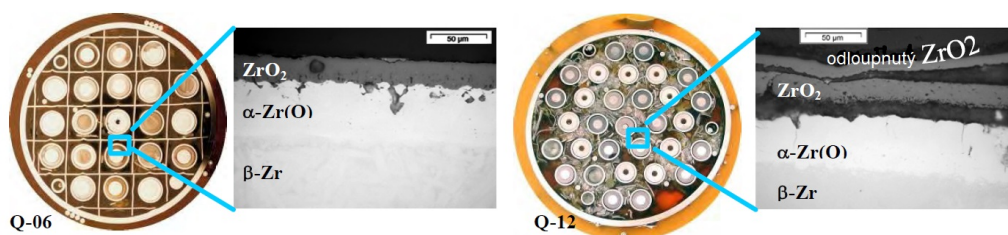
monoklinická fáze ZrO_2
(E110, 1 273 K, 1 400 s)

Obrázek 1.9: Různé fáze ZrO_2 při teplotě 1 273 K na povrchu zirkoniových slitin E110 a M5. [43]

Oxidace E110 Základní mechanismy oxidace jsou pro E110 i Zry-4 totožné (tvorba třívrstvé struktury na povrchu kovu). Přítomnost niobu, který stabilizuje β -Zr, zvyšuje rozpustnost kyslíku v α -Zr a β -Zr fázích a vytváří nepravidelná (α - β)-Zr fázová rozhraní s typickými α -Zr(O) jehlicemi rostoucími v β -Zr. Přeměna ($\alpha \rightarrow \beta$)-Zr teoreticky začíná při teplotě 883 K a končí při 1 153 K, nicméně až do 1 023 K se slitina chová jako α -Zr. V okolí 1 773 K dochází k přeměně krystalické mřížky z tetragonální na kubickou. [52]

Vlastnosti oxidického povlaku E110 závisí na oxidačním prostředí. Oxidický povlak vytvořený v páře pod teplotou 1 023 K (existence α -Zr) má ochranný charakter, ale po krátkém čase se může oddělovat od oxidického povlaku vytvořeném nad 1 023 K. Nový oxid má světlou barvu, je propustný pro vodík a jeho reakční kinetika vykazuje parabolické chování. Množství vodíku v E110 může dosáhnout až 2 000 ppm (v průměru 1 500 ppm). Oxidický povlak vytvořený v argonové atmosféře se vyznačuje parabolickou kinetikou růstu a je černý, ale množství absorbovaného vodíku je zredukováno na 10 ppm, což se blíží hodnotám pro Zry-4. [52]

Rozdíly ve vysokoteplotní oxidaci Zry-4 a E110 Za provozních podmínek se E110 vyznačuje lepší korozi odolností než standardní Zry-4. Nicméně za vysokých teplot absorbuje E110 větší množství vodíku, je křehčí a na jejím povrchu se vytváří oxid horší kvality. [52] Ze závěrů experimentů, které porovnávaly vliv obou slitin (QUENCH-06 se Zry-4 a QUENCH-12 s E110) a příslušných geometrií (QUENCH-06 pro PWR a QUENCH-12 pro VVER) obecně vyplývá, že slitina E110 je k odlupování náchylnější než Zry-4. ²² [52, 17]



Obrázek 1.10: Porovnání průřezů palivových svazků experimentů QUENCH-06 a QUENCH-12 na výškové úrovni 550 mm. [71]

²²Oba experimenty proběhly dle velmi podobného protokolu tak, aby byly rozdíly v konceptech PWR a VVER jednoduše patrné. V případě QUENCH-06 k žádnému odlupování nedošlo. Během QUENCH-12 došlo ve výškové úrovni maximální teploty, tj. 950 mm k vytvoření bazény taveniny, nesouvislému odtoku taveniny, rozpouštění oxidického povlaku a oxidaci taveniny (viz Obrázek 1.10). [71]

Mikrostruktury oxidických povlaků Zry-4 a E110 jsou si velmi podobné. Hmotnostní přírůstky i tloušťku vrstev ZrO_2 a $\alpha-Zr(O)$ lze pro obě slitiny v širokém rozmezí teplot a času popsat zákonem parabolické kinetiky.²³ Absolutní hodnoty hmotnostních přírůstků $\alpha-Zr(O)$ jsou pro E110 obdobné těm pro Zry-4. Fáze $\alpha-Zr(O)$ se v případě E110 pohybuje po hranicích zrn směrem do kovové matrice mnohem dříve než u Zry-4, a proto je v kovové části E110 více kyslíku. Nespojivosti v průběhu kinetiky oxidace jsou způsobeny změnami morfologie povlaku (pevnost, odlupování, porozita, a další). [52] S růstem teploty odráží kinetika oxidace obou slitin fázové změny povrchové vrstvy ZrO_2 z monoklinické na tetragonální a kubickou. Rostoucí podstechiometrie (zvyšující se x ve vzorci ZrO_{2-x}) způsobuje zvýšení difúzních koeficientů kyslíku a tudíž i zvýšení oxidační kinetiky. Přejít od parabolické (nebo v případě nižších teplot kubické) kinetiky oxidace na rychlejší lineární kinetiku způsobuje odlupování oxidického povlaku, které je do jisté míry ovlivněno i drsností daného povrchu.²⁴ [71]

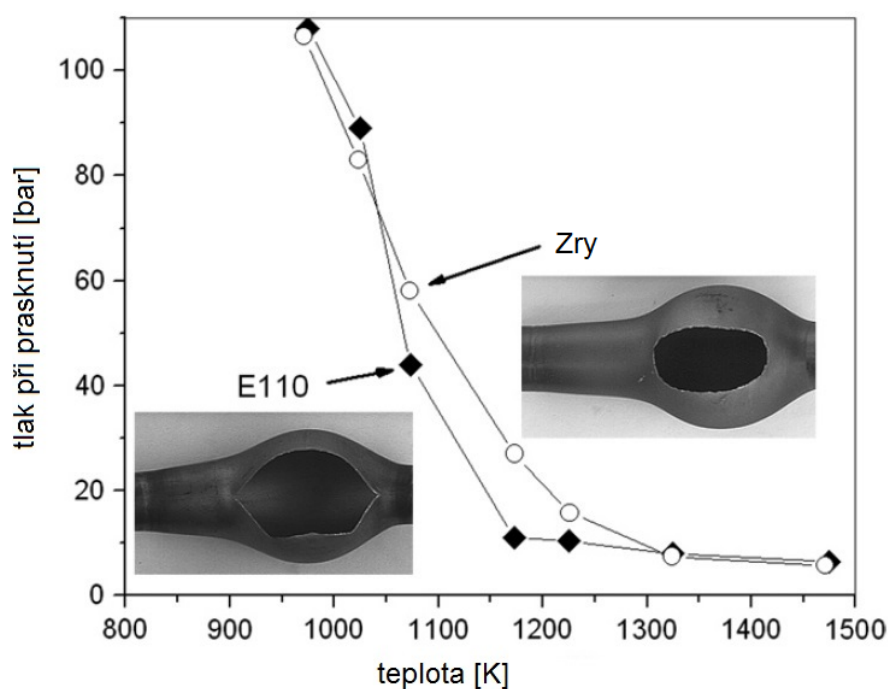
Největší rozdíly mezi E110 a Zry-4 se, i přes malé změny v jejich složení (> 98 hmotnostních % Zr), projevují v souvislosti s odlupováním oxidických povlaků, které vede ke zvýšené oxidaci, absorpci vodíku a v důsledku toho ke křehnutí a brzkému selhání palivového pokrytí. Teplotní rozsah, ve kterém k němu dochází, se u obou slitin liší, ale v obou případech začíná proces oxidace parabolickou kinetikou, která se s rostoucí teplotou mění v lineární. K odlupování za vyšších teplot (~1 273 K) dochází snáze u Zry-4 než u E110 (její aktivační energie je nižší než pro E110). V rozsahu nižších teplot (873 K až 1 273 K) je tomu naopak. Přejít na lineární kinetiku probíhá u Zry-4 náhle, zatímco u E110 je spíše postupný. Kritická tloušťka oxidického povlaku, při které k odlupování dochází, roste s teplotou od několika μm (při 873 K) až k 70 μm pro Zry-4 či 30 μm pro E110 (při 1 273 K). [71] Do teplot 1 273 K vykazuje oxidický povlak E110 při tloušťkách menších než 20 μm vrstevnatý charakter. Vrstvy jsou volné a nedostatečně k sobě přiléhají. Při teplotách nad 1 373 K se struktura oxidického povlaku mění, vrstvy jsou silnější a pevněji provázané. V oblasti teplot, při kterých se odlupování již neprojevuje ($\geq 1 370 K$), se uplatňuje opět parabolická kinetika a obě slitiny se chovají podobně. [17] Korozní odolnost E110 a Zry-4 se v experimentech měnila v závislosti na teplotě a podmínkách prostředí. Při teplotách 970–1 279 K mě-

²³Rychlostní koeficient hmotnostního přírůstku i tloušťky vrstvy ZrO_2 lze popsat přímkovou funkcí převrácené hodnoty teploty (Arrheniův graf).

²⁴Na leštěných površích se vytvářel lesklý černý oxid, ale na površích z výroby docházelo k odlupování oxidického povlaku. [17]

la oxidická vrstva E110 vrstevnatou strukturu. Toto chování se u Zry-4 v ještě výraznější míře pozorovalo až při teplotách mezi 1 220 a 1 320 K. [52, 17]

Fázová $\beta \rightarrow \alpha$ změna zirkonia probíhá v případě E110 při teplotě o 100 K nižší než u Zry-4, což ovlivňuje termomechanické jevy odehrávající se při chlazení mezi 1 100 a 1 300 K, zejména pak plastickou deformaci a praskání palivových tyčí, viz Obrázek 1.11). [10]



Obrázek 1.11: Tlak při prasknutí palivového pokrytí VVER (E110) a PWR (Zircaloy-4). [10]

Shrnutí hlavních rozdílů oxidace Zry-4 a E110:

- Kinetika vysokoteplotní oxidace v páře palivového pokrytí z materiálu E110 je podobná té pro Zry-4. Hlavní rozdíly spočívají v oxidickém povlaku, absorpci vodíku a $(\alpha-\beta)$ -Zr fázovém rozhraní, které ovlivňuje křehkost materiálu. Při teplotách nižších než 1 273 K má oxidická vrstva E110 vrstevnatou strukturu, v rámci které se tloušťka jednotlivých vrstev pohybuje okolo 20 μm .
- α -Zr(O) fáze roste v případě E110 do β -Zr podél hranic zrn i při nižších oxidačních podmínkách, k čemuž v rámci Zry-4 nedochází. [52]

1.3.3 Termodynamika vysokoteplotní oxidace

Termodynamika oxidace určuje, zda je reakce 1.2 za daných podmínek uskutečnitelná. [54] Prostřednictvím fázových přeměn (transformací) se soustavy snaží

dosáhnout, nebo se alespoň přiblížit, stavu s minimální hodnotou volné entalpie (Gibbsovy energie). Působením vnějších sil (teplota a tlak) na rovnovážnou heterogenní soustavu se vyrovnáním chemických potenciálů prostřednictvím přechodu části hmoty z jedné fáze do druhé ustaví nová termodynamická rovnováha soustavy. K polymorfním přeměnám jedné modifikace v druhou dochází v tuhém stavu polymorfních kovů. Rozdíly jednotlivých skupenství a strukturních stavů spočívají v odlišném uspořádání a volnosti pohybu atomů. U slitin může navíc docházet ke změnám chemického složení. Nejvýznamnějšími přeměnami kovových soustav, které jsou většinou ovlivněny difúzí, jsou krystalizace a fázové přeměny v tuhém stavu. [64]

Reakci 1.2 lze pro každý kov termodynamicky popsat standardní změnou volné energie ΔG^0 , která, aby reakce při standardním stavu reaktantů a produktů proběhla spontánně zleva doprava, tak jak je napsaná, musí být záporná. Z definice vyplývá, že $\Delta G^0 = \Delta H^0 - T\Delta S^0$, kde ΔH^0 je standardní změna entalpie, T je termodynamická teplota a ΔS^0 je standardní změna entropie. Graf závislosti ΔG^0 na T odpovídá přímce se změnami sklonu v případě vzniku nové fáze (teplota tavení a varu). Několik takových grafů pro různé oxidační reakce za standardního stavu ($p_{H_2O} = 1$ bar) lze vidět na Ellinghamově diagramu na Obrázku 1.12, který ukazuje relativní termodynamickou stabilitu uvedených oxidů. Čím nižší umístění na diagramu, tím zápornější je standardní volná energie vytvoření oxidu a tím je oxid stabilnější. [54]

Odchýlení ze standardních podmínek reaktantů či produktů určuje pro reakci 1.2 novou změnu volné energie, $\Delta G_{H_2O/KO}$:

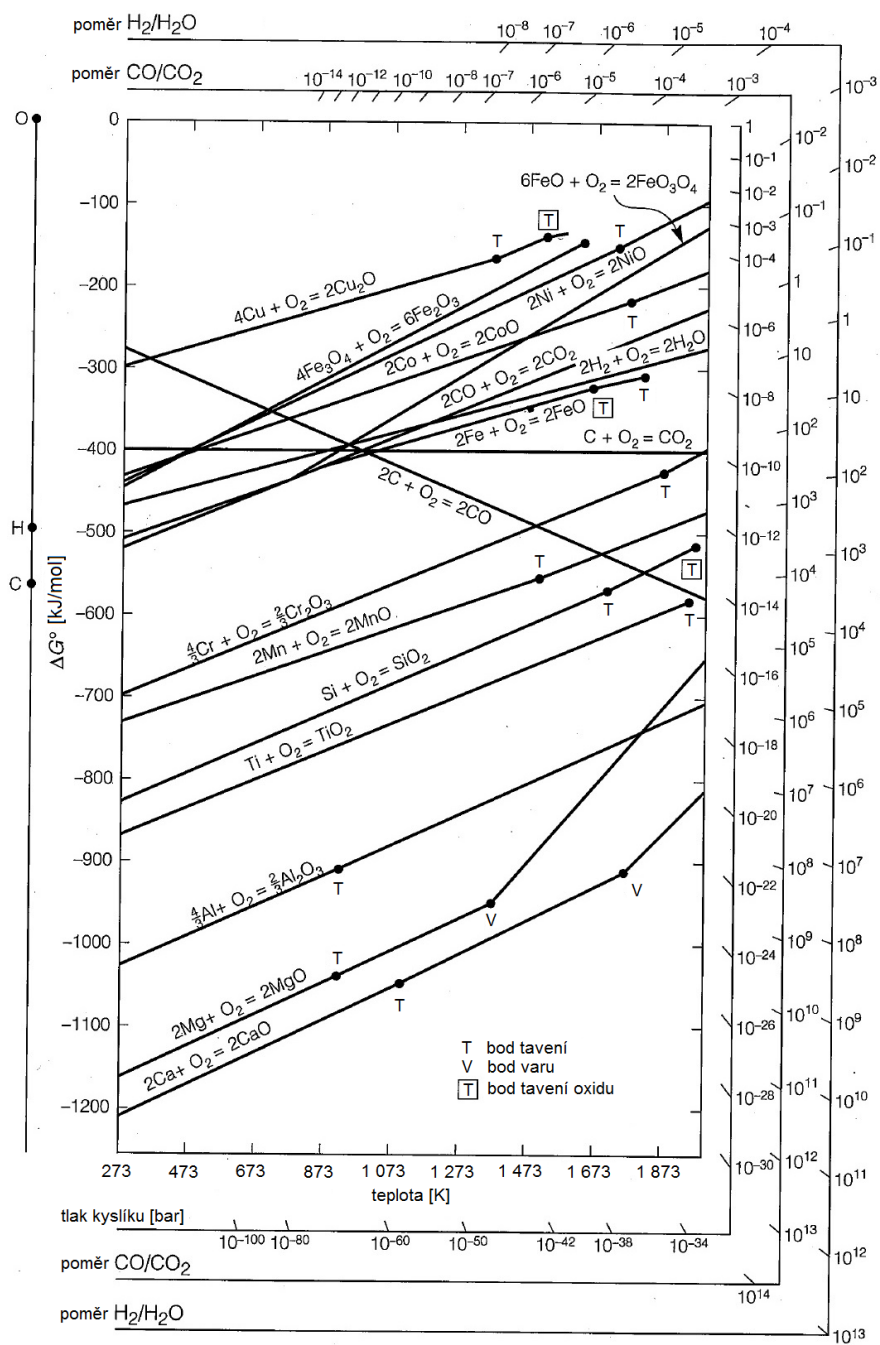
$$\Delta G_{H_2O/KO} = \Delta G_{H_2O/KO}^0 + RT \ln \frac{a_{K_xO_y}}{(a_{K^x})(a_{H_2O^y, KO})}, \quad (1.5)$$

kde R je univerzální plynová konstanta a T termodynamická teplota. Chování čistých pevných látek ve stabilní oblasti je při všech teplotách a tlacích neměnné, rovnice 1.5 se tedy zredukuje na

$$\Delta G_{H_2O/KO}^0 = RT \ln p_{H_2O^y, KO}, \quad (1.6)$$

kdy při rovnováze platí $\Delta G_{H_2O/KO} = 0$ a z definice $p_{H_2O^y, KO} = a_{H_2O^y, KO}$. Rovnice 1.6 definuje vztah mezi standardní změnou volné energie, $\Delta G_{H_2O/KO}^0$, vytvořením čistého oxidu, K_xO_y , na základovém kovu, K a charakteristickým rovnovážným tlakem vodní páry, $p_{H_2O^y, KO}$, pro rozpad oxidu při jakékoli teplotě T . [54]

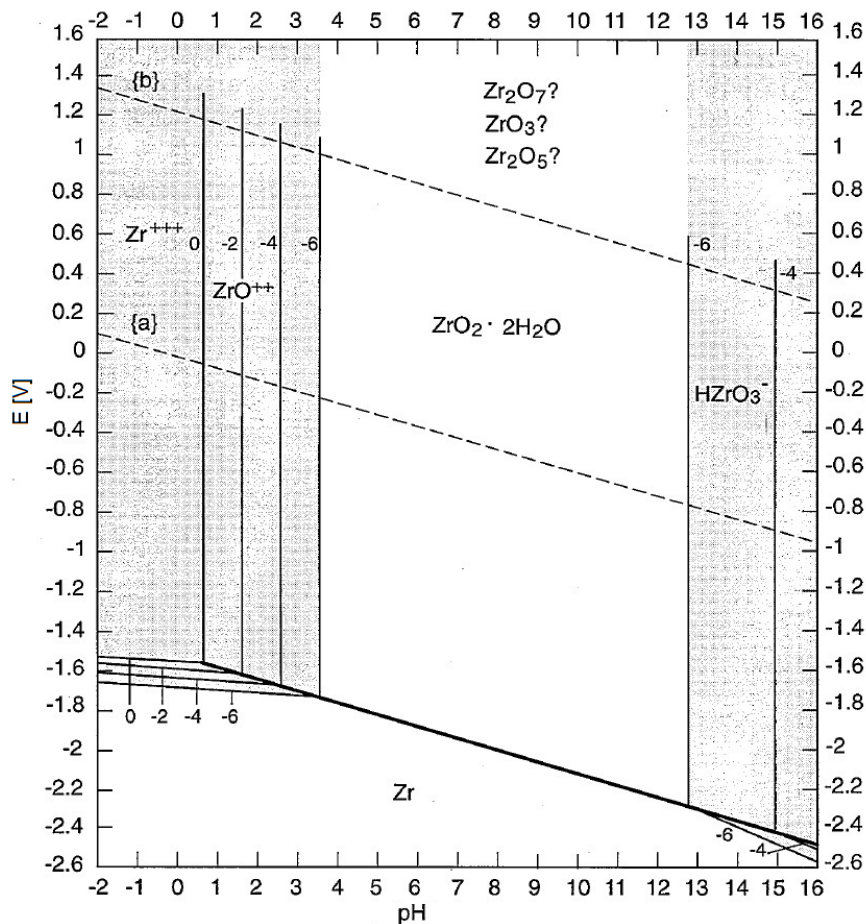
Prodloužením přímky z bodu **H** na levé ose skrz přímku volné energie pro daný prvek při dané teplotě až k ose označené jako poměr H_2/H_2O získáme výsledný



Obrázek 1.12: Ellinghamův diagram volné energie v závislosti na teplotě pro oxidaci materiálů. [54]

rovnovážný poměr vodíku k vodní páře. Při vyšším poměru se oxid daného prvku zredukuje na čistý kov, při nižším poměru se kov oxiduje. [54]

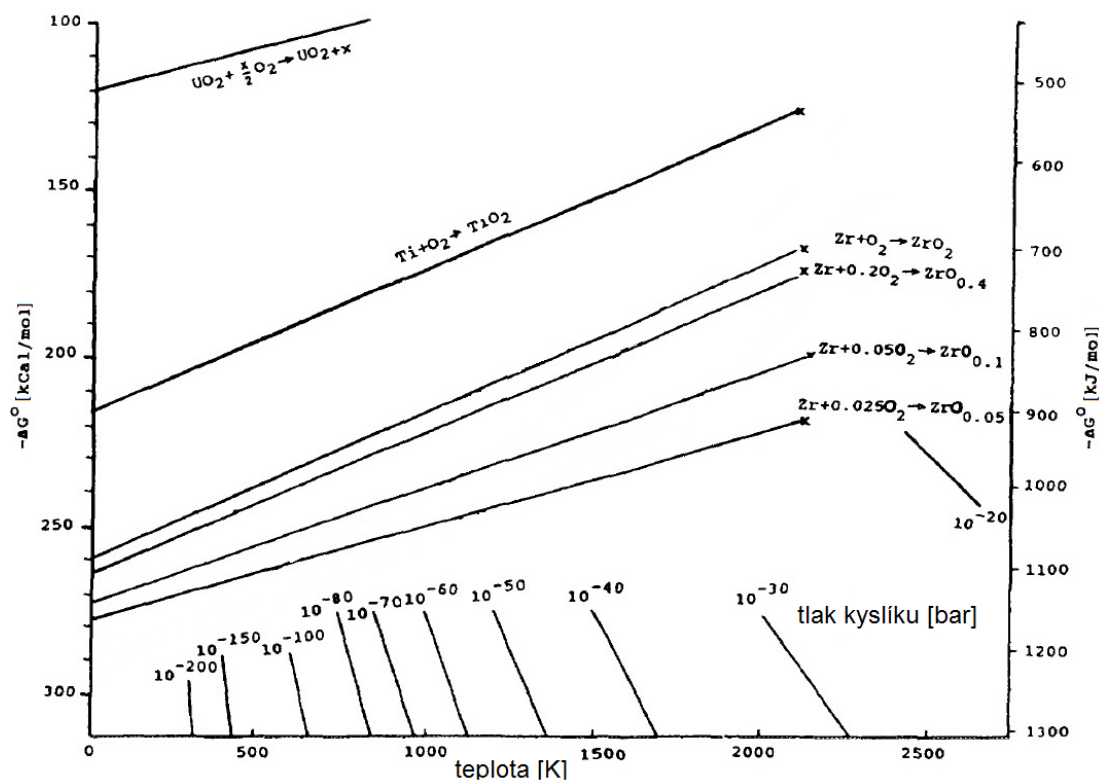
Termodynamické diagramy (Ellinghamův i Pourbaixho, viz Obrázek 1.12 a 1.13) sdílí stejný nedostatek - nepodávají žádnou informaci o rychlostech oxidačních reakcí. Pro oblasti vyšších teplot, při kterých jsou rychlosti většiny chemických reakcí mnohem vyšší, je Ellinghamův diagram užitečnější, neboť Pourbaixho dia-



Obrázek 1.13: Pourbaixho diagram závislosti elektrického potenciálu na pH pro čisté zirkonium. Šedě jsou vyznačeny oblasti náchylné ke korozi. Značky 0, -2, -4 a -6 jsou logaritmy aktivity rozpustných iontů pro vyznačené přímky. [54]

gram je vztažen k teplotě 298 K. [54]

Termodynamickou stabilitu směsí zirkonia s různým obsahem kyslíku lze pro různé teploty a tlaky určit z Ellinghamova diagramu, který je zobrazen na Obrázku 1.14. Během oxidace se může kyslík v zirkoniové matici rozpouštět, neboť pro kyslík je termodynamicky výhodnější být rozpuštěný v kovu ($ZrO_{0,05}$ a $ZrO_{0,1}$, viz Obrázek 1.14) než vytvářet oxidickou vrstvu. [55] Na rozhraní oxid/ α -Zr(O) existuje gradient kyslíkové aktivity, který ovlivňuje přítomnost defektů v oxidickém povlaku a jejich typ, koncentraci a strukturu. Tento gradient určuje, které termodynamicky stabilní sloučeniny mohou v rámci oxidického povlaku existovat (stechiometrický ZrO_2 na rozhraní oxid/vodní pára, nestechiometrický ZrO_{2-x} na rozhraní oxid/ α -Zr(O) a pevné roztoky Zr-O pod oxidickým povlakem). Napříč tloušťkou oxidu existuje gradient napětí s maximem na rozhraní oxid/ α -Zr(O) a minimem na rozhraní oxid/vodní pára. [40, 21] Důsledkem velkých tlakových napětí je metastabilní tetragonální nestechiometrický zirkoniový oxid stabilizovaný



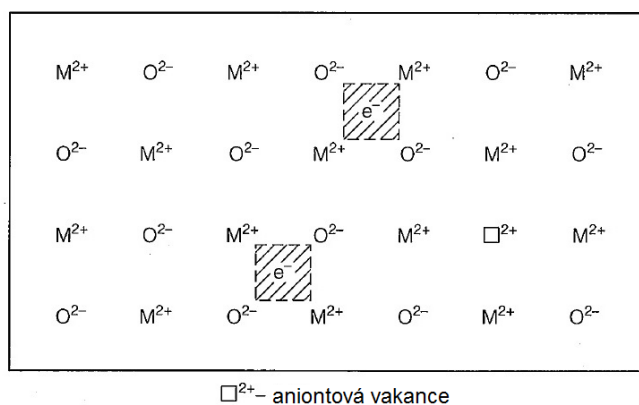
Obrázek 1.14: Ellinghamův diagram termodynamiky Zr/O a dalších systémů. [55]

na rozhraní oxid/ α -Zr(O). V důsledku odlehčení napětí dochází mimo rozhraní oxid/ α -Zr(O) k fázové přeměně z tetragonální do monoklinické fáze o objemové roztažnosti $\sim 7\%$, která způsobuje defekty ve formě prasklin a pórů, které jsou pro difúzi kyslíku lehce přístupné. [58, 14]

1.3.4 Růst, struktura a vlastnosti povrchového oxidu

Oxidy kovů jsou zřídka přesně stechiometrické. Obvykle mají buď přebytek nebo nedostatek kovu, ekvivalentní k nedostatku či přebytku kyslíku. Oxid s přebytkem kovu může tento nadbytek přenášet formou kyslíkových aniontových vakancí. K vytvoření struktury s přebytkem kovu potřebují oxidy, které se vyznačují kationty příliš velkými nebo příliš silně nabitými na to, aby zaujaly intersticiální pozici, aniontové vakance (viz Obrázek 1.15). Kyslíkové anionty s nábojem +2 si během prostupu ZrO_2 vyměňují pozice s aniontními vakancemi. Přebytek záporně nabitých elektronů, který vysvětluje elektrickou vodivost, je nutný k vyrovnání elektrického náboje. Tento druh oxidů se označuje jako polovodiče typu n . [54]

Obrázek 1.16 zachycuje procesy odehrávající se napříč souvislým oxidickým povlakem, který se vyznačuje přebytkem kovu s aniontovými vakancemi. Pro jednoduchost a jednotnost s rovnicí 1.1 se kov K uvažuje jako dvojmocný a jeho



Obrázek 1.15: Oxid (ZrO_2) s přebytkem kovu typu n s aniontovými vakancemi □²⁺ a volnými elektrony e^- . [54]

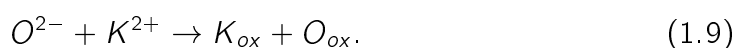
atomy se tak oxidují do podoby K^{2+}



a uvolňují při tom jeden pár elektronů, který, aby se účastnil redukce molekulárního kyslíku, putuje napříč oxidem



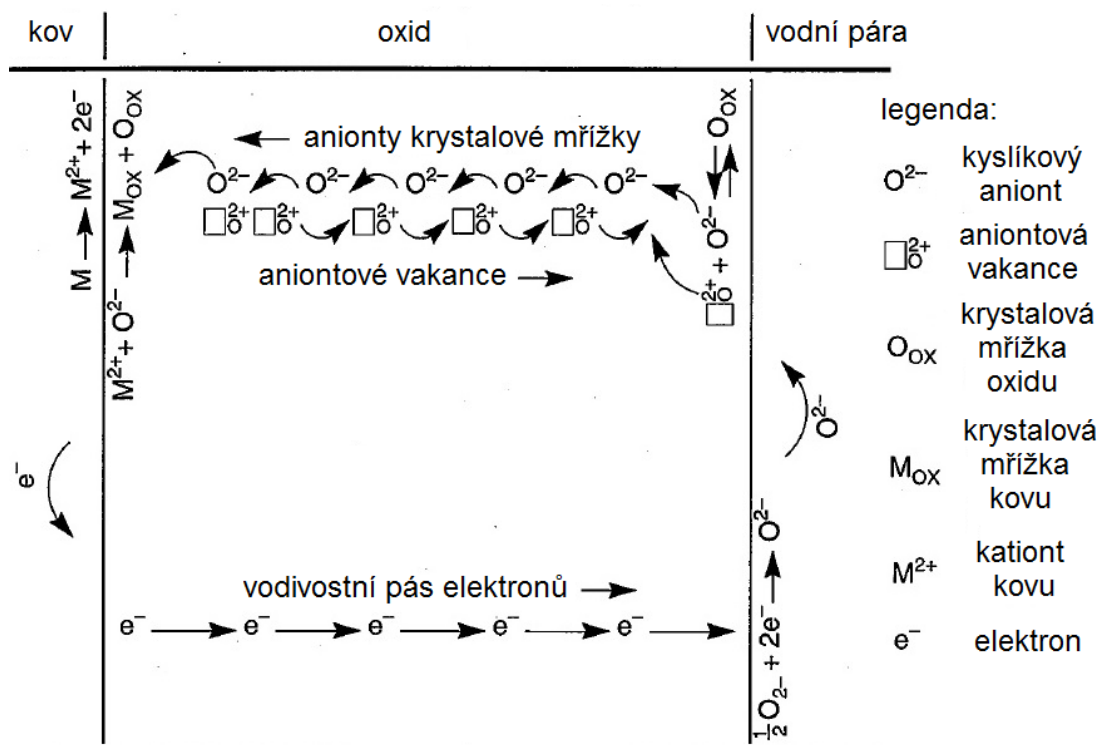
až na rozhraní oxid/vodní pára. Oxid představuje elektrolyt v pevném stavu jak pro anodickou 1.7, tak pro katodickou 1.8 reakci. Přesun elektronů se v oxidech typu n uskutečňuje pohybem volných elektronů (viz Obrázek 1.16). Koncentrace dominantních oxidických defektů (aniontových vakancí) ovlivňuje difuzivitu a tím i kinetiku oxidace. Elektrony se v tomto druhu oxidů přesunují rychleji než jakékoli jiné iontové defekty. Při prostupu krystalovou mřížkou oxidu až k rozhraní oxid/kov se kyslíkové anionty O^{2-} vyměňují s aniontovými vakancemi, kde reagují



Aniontové vakance □_o²⁺ umožňují přesun O^{2-} aniontů v krystalové mřížce oxidu s nedostatkem kyslíku. Výměna pozic mezi těmito částicemi implikuje nutnost pohybu těchto částic opačnými směry. První z produktů anodické reakce 1.7, K^{2+} , je pro reakci 1.9 dodáván na rozhraní oxid/kov, a druhý (volné elektrony) se přesunuje k rozhraní oxid/vodní pára, kde se účastní redukční reakce 1.8. Aniont O^{2-} vzniklý v reakci 1.8 se spojením s aniontovou vakancí začleňuje jako O_{ox} do krystalové mřížky oxidu



Vyměňování pozice mezi aniontovými vakancemi a anionty oxidu umožňuje přesun O^{2-} na rozhraní oxid/kov, kde dochází k základní oxidační reakci 1.9. Kladný (+2) náboj aniontové vakance, \square_{O}^{2+} , je způsoben absencí kyslíkového aniontu, O^{2-} . [54]



Obrázek 1.16: Procesy odehrávající se v povrchovém oxidickém povlaku během vysokoteplotní oxidace oxidu typu n . [54]

1.3.4.1 Vlastnosti vzniklého povrchového oxidu

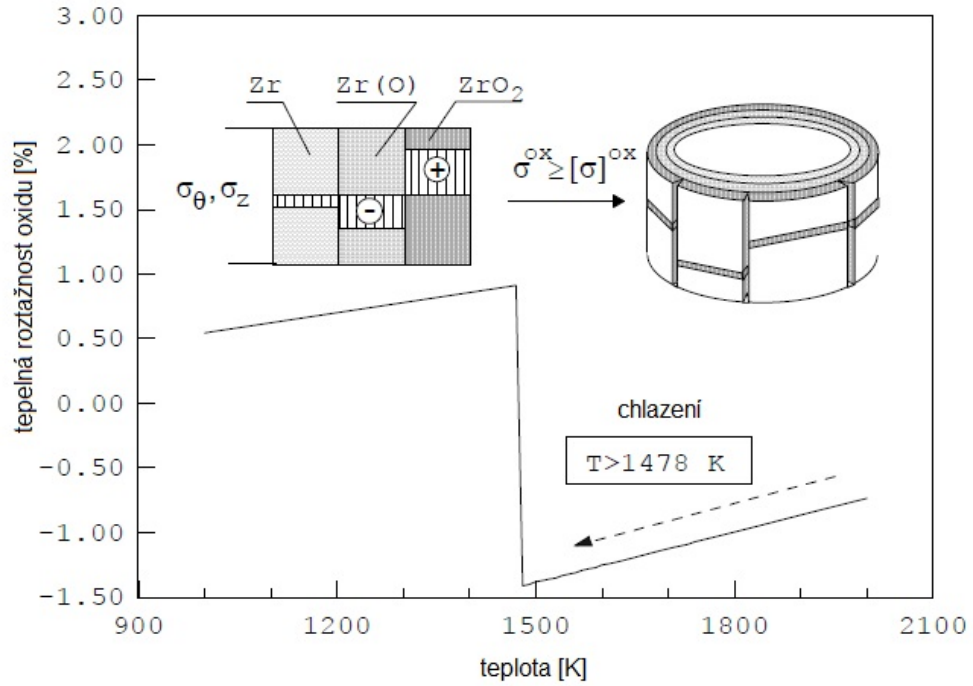
Dopady kinetiky oxidace konkrétní slitiny se minimalizují, pokud se vytvořený oxidický povlak vyznačuje kombinací příznivých vlastností:

1. Dobrá přiléhavost oxidického povlaku brání jeho odlupování.
2. Vysoká teplota tavení oxidu.
3. Nízký tlak par oxidu pro odolávání vypařování.
4. Blízké, ideálně shodné koeficienty tepelné roztažnosti oxidického povlaku a kovu.
5. Vysokoteplotní plasticita oxidického povlaku, díky které se může přizpůsobovat rozdílům hustot a tepelných roztažností oxidu a základního kovu.

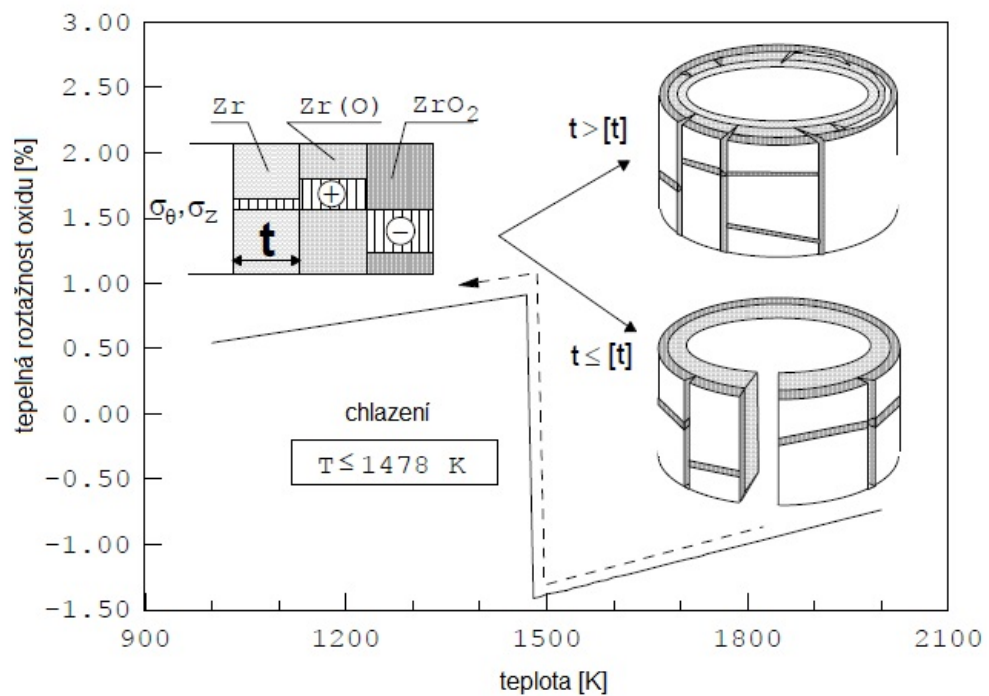
6. Nízká elektrická vodivost oxidického povlaku a nízké difúzní koeficienty pro kyslík a ionty kovů. [54]

Vlastnosti relativně tenkých oxidických povlaků se *in situ* obtížně měří či předpovídají, a tak lze brát výše uvedený seznam vlastností pouze jako kvalitativní. Hodnocení skutečného chování kovů a slitin ve specifických vysokoteplotních oxidačních prostředích vyžaduje empirická měření. [54] Průměrný obsah kyslíku, který ovlivňuje deformační chování během znovuzaplavení, se může lišit v závislosti na průběhu preoxidace. K fázové změně stechiometrického oxidu $Zr_{1-x}O_2$ z tetragonální na monoklinickou, která je doprovázena objemovým nárůstem indukujícím v oxidické vrstvě mechanické napětí, dochází během chlazení při teplotě ~ 1473 K. S nižším obsahem kyslíku se teplota fázové přeměny snižuje a její průběh je hladší, což dává napětí indukovanému fázovou přeměnou v kovových vrstvách dostatek času na relaxaci prostřednictvím plastické deformace kovových vrstev a/nebo praskáním oxidu. Přítomnost prasklin v α vrstvě během znovuzaplavení vzorků bez preoxidace lze vysvětlit rozdílem tepelných namáhání β a α fáze (vrstva oxidu je příliš tenká na to, aby v silné kovové podvrstvě vytvořila dostatečně velké napětí). [52] Během zaplavení zoxidovaného palivového pokrytí vzniká v oxidu tahové napětí v důsledku radiálního teplotního gradientu a rozdílu teplotních roztažností vrstev α -Zr, β -Zr a oxidu. Toto tahové napětí způsobuje iniciaci mikroprasklin v oxidickém povlaku ještě nad teplotami fázového přechodu z tetragonální na monoklinickou strukturu (viz Obrázek 1.17). [71]

Čím silnější je povrchová vrstva oxidu zircaloyového pokrytí, tím silnější je vrstva α -Zr(O) a tím menší je zbytková tažná vrstva β -Zr. Vrstva α -Zr(O) bývá často příliš křehká na to, aby odolala velkým deformacím, ke kterým při znovuzaplavení AZ v důsledku fázové změny ZrO_2 dochází. [52] Při teplotách pod fázovým přechodem oxidu z tetragonální na monoklinickou strukturu se v oxidické vrstvě generuje velké tlakové napětí a ve vrstvě α -Zr vzniká velké tahové napětí. Nízký obsah kyslíku v β -Zr zabraňuje vzniku prasklin napříč stěnou palivového pokrytí. Aby bylo palivové pokrytí s $\leq 0,9$ hmotnostními % kyslíku schopno odolat tepelnému šoku během znovuzaplavení AZ, měla by podle Chung-Kassnerova kritéria být jeho tloušťka větší než 0,1 mm. Pokud je tato vrstva tenčí a oxidický povlak se zbytkovým napětím je dostatečně silný na to, aby ve vrstvě α -Zr vyvolal napětí přesahující mez pevnosti v tahu, objeví se napříč stěnou palivového pokrytí praskliny. V jiném případě se mikrotrhliny objeví v oxidickém povlaku (viz Obrázek 1.18). Mikropraskání oxidů a creepové deformace kovových vrstev vedou k relaxaci velkých napětí. [71]



Obrázek 1.17: Schéma napětového namáhání a selhání zoxidovaného palivového pokrytí při chlazení nad teplotou fázové změny oxidu. [71]



Obrázek 1.18: Schéma napětového namáhání a selhání zoxidovaného palivového pokrytí při chlazení pod teplotou fázové změny oxidu. [71]

Experimenty dílčích jevů prováděné v Centru pro jaderný výzkum Karlsruhe (*Kernforschungszentrum Karlsruhe*, KfK; od roku 1995 Výzkumné centrum Karlsruhe

he, *Forschungszentrum Karlsruhe*, FZK) a Japonském ústavu pro výzkum jaderné energie (*Japan Atomic Energy Research Institute*, JAERI) se zaměřovaly na „nízko-teplotní“ (v rozmezí 1 200 K až 1 690 K, což představuje teploty tavení nerezové oceli a Inconelu) fyzikálně-chemické interakce materiálů. Reakční kinetika se dle jejich výsledků řídí zákony parabolického růstu, což odpovídá tomu, že jsou tyto procesy řízeny difúzí. Teplotní závislost reakční kinetiky lze popsat Arrheniovými rovnicemi. Tenké oxidické vrstvy (10- 100 μm) na povrchu Zry-4 obecně oddalují začátek chemických reakcí a posunují tavení materiálu do vyšších teplot. Do tloušťky oxidických vrstev $\leq 45 \mu\text{m}$ se výsledky KfK i JAERI shodují a lze je vysvětlit difúzí kyslíku ze ZrO_2 do $\beta\text{-Zr}$, kde po jeho úplném rozpuštění vzniká $\alpha\text{-Zr(O)}$. Při větších tloušťkách oxidických vrstev umožňuje porozita ZrO_2 průnik určitého množství železa, niklu a zirkonia, a proto s rostoucí tloušťkou oxidické vrstvy nedochází k oddálení počátku chemických interakcí, jak se tomu děje pod tloušťkou 45 μm . [52]

1.3.4.2 Pilling-Bedworthův poměr

Jako většina iontově a kovalentně vázaných chemických sloučenin jsou oxidické povlaky o mnoho silnější v tlaku než v tahu. V případě, že k růstu oxidu dochází na rozhraní oxid/kov a vytvořený oxidický povlak má větší hustotu než základní kov, je oxid při svém vzniku namáhán tlakem a pravděpodobnost jeho ochranné funkce je vyšší. Pilling a Bedworth jako první přišli s myšlenkou, že poměr objemu oxidu (korozní zplodiny) k objemu kovu může do jisté míry vypovídat o ochranné funkci daného oxidu. [54] Pilling-Bedworthův (PB) poměr je tak dán

$$\text{PB poměr} = \frac{\text{objem vzniklého oxidu}}{\text{objem spotřebovaného kovu}} = \frac{Wd}{nDw},$$

kde W je molární hmotnost a D hustota oxidu, d je hustota a w molární hmotnost čistého kovu a n je počet atomů kovu v molekule oxidu (například 1 pro ZrO_2). PB poměr zirkonia má hodnotu 1,57. Předpokládalo se, že PB poměr by měl být lehce větší než 1, aby posílil střední tlakové napětí v oxidu a přichýlnost k základnímu kovu. Velmi vysoké hodnoty PB poměru však mohou vést k nadměrným tlakovým napětím, která oxidický film ohýbají a ničí jeho přiléhavost (odlupování). Ani oxidy s PB poměrem v blízkosti 1 či výrazně větším/menším než 1 nicméně nemusí být nutně ochranné, a naopak některé kovy s PB poměrem nižším než 1 mohou vytvářet souvislé oxidické povlaky téměř až do teploty tavení daného kovu. Některé oxidické povlaky navíc mohou být i při vysokých teplotách vysoce plastické a schopné deformace a díky tomu zacelovat porozitu způsobenou PB poměrem

< 1. Přímá oxidace kovu ve spodních částech prasklin a trhlin může tyto defekty zaplnit. Z Obrázku 1.12 je patrné, že většina oxidů se s nárůstem teploty stává méně stabilní. [54]

1.3.5 Kinetika vysokoteplotní oxidace

Kinetiku oxidace většiny běžných kovů a slitin lze popsat třemi zákony růstu oxidických vrstev: parabolickým, lineárním a logaritmickým. Množství kyslíku zreagované při vytváření povrchového oxidu se měří hmotnostním přírůstkem na jednotku plochy. Hmotnostní přírůstek během oxidace je v jakémkoli čase, t , přímo úměrný tloušťce oxidu, x . Pokud se oxidy vypařují či vytváří nepřiléhavé povlaky, které se z povrchu základového kovu nepřetržitě odlupují, vyžaduje měření hmotnostních přírůstků pečlivou analýzu. [54]

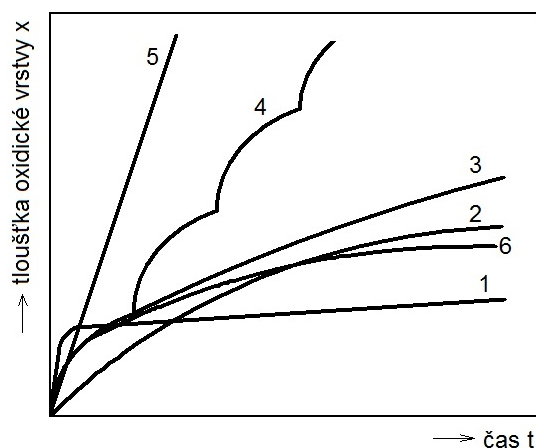
Růst silnějších oxidických vrstev popisuje rovnice: $x^m = k_p t$ (viz Obrázek 1.19), kde:

1. řídicím mechanismem oxidace je přeskok kationtů z kovu do oxidu (logaritmický zákon)
$$1/x = k_1 - k_2 \ln t;$$
2. je oxidace řízena průchodem elektronů oxidickou vrstvou (logaritmický zákon)
$$x = k_3 \ln(k_4 t + 1);$$
3. oxidaci způsobuje difúze iontů silnou oxidickou vrstvou, $m=2$ (parabolický zákon);
4. silné oxidické vrstvy praskají a odlupují se, vrstvy obsahují překážky, které brzdí difúzi (například hrubnutí zrn během difúze po hranicích zrn), $m=3$ (kubický zákon);
5. je kov v přímém styku s atmosférou (vodní párou) a $m=1$ (lineární zákon). [53]

Dále jsou rozvedeny pouze zákony parabolického a lineárního růstu oxidu.

1.3.5.1 Difúze a parabolický zákon růstu oxidu

Zákon parabolického růstu oxidické vrstvy je standardem pro analýzu kinetiky vysokoteplotní oxidace, ve které je reakční kinetika řízena difúzí napříč relativně silnými



Obrázek 1.19: Zákony růstu oxidických vrstev. [53]

oxidickými povlaky. Podle jeho vyjádření je druhá mocnina tloušťky oxidického povlaku, x , přímo úměrná času

$$x^2 = k_p t, \quad (1.11)$$

kde k_p je konstanta rychlosti parabolického růstu (difúzní koeficient), která se obvykle vyjadřuje v jednotkách cm^2/s . [54]

Difúze je děj, při kterém jsou atomy nebo ionty, v důsledku vyrovnávání rozdílů chemického potenciálu (gradientu chemického potenciálu), přesouvány na vzdálenost větší, než je vzdálenost meziatomová. [64] Mechanismem parabolického růstu je prostup iontů (například kyslíkových aniontů) celistvou a dokonale přiléhavou oxidickou vrstvou (viz Obrázek 1.16). Iontovou koncentraci reaktantů (přesněji jejich chemické potenciály) na rozhraních oxid/kov a oxid/vodní pára a iontovou difuzivitu, D , napříč oxidickým povlakem lze za ustáleného stavu považovat za konstantní. První Fickův zákon potom stanoví, že tok reagujících iontů je za ustáleného stavu roven $D(\Delta c/x)$, kde Δc je konstantní rozdíl koncentrace napříč tloušťkou oxidu, x . Tento tok je přímo úměrný rychlosti růstu tloušťky oxidického povlaku, dx/dt , a tak

$$\frac{dx}{dt} = CD\left(\frac{\Delta c}{x}\right), \quad (1.12)$$

kde C je konstanta úměrnosti. Integrací této rovnice získáváme parabolický vztah 1.11, kde $k_p = CD\Delta c$ s $x = 0$ když $t = 0$. Difúzní koeficient je tak přímo úměrný rychlosti difuzivity řídicího druhu iontů povrchového, elektricky vodivého, oxidického povlaku.²⁵ Hmotnostní přírůstek, W , je přímo úměrný tloušťce povlaku,

²⁵Matematické vyjádření hodnoty difúzního koeficientu k_p popisuje pravděpodobnost přeskočení atomu za jednotku času. Ta závisí na tom, zda je energie atomu dostatečně velká na to, aby překonala vazebné síly atomu k sousedním atomům, a zda je v sousedním uzlovém bodě současně vakance, tedy volné místo pro umístění atomu. [64]

x , a proto může být v rovnici 1.11, při změně hodnot konstant k_p a C , zaměněn za x .²⁶ Pokud platí zákon parabolického růstu oxidické vrstvy, je průběh x^2 (nebo W^2) v čase, t , (respektive průběh x v čase \sqrt{t}) lineární. [54]

Teplotní závislost parabolické oxidace se řídí obvyklým Arrheniovým vztahem

$$k_p = k_o e^{-Q/RT}, \quad (1.13)$$

kde k_o je konstanta, Q aktivační energie (entalpie) difúze (dána součtem energie pro vznik a pohyb vakancí, entropický člen), R univerzální plynová konstanta a T termodynamická teplota. Vykreslení logaritmu k_p v závislosti na $1/T$ vykazuje lineární závislost (difúzní koeficient je exponenciální funkcí teploty). [54]

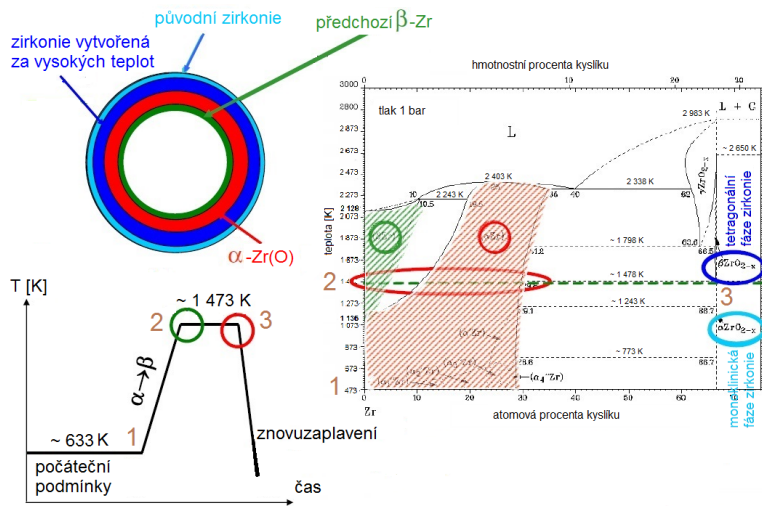
Chemické a metalurgické změny mohou vést k odchylkám důležitých difúzních reakcí. Parabolický zákon nemusí platit v počátečních fázích oxidace, kdy se souvislost a dostatečná tloušťka oxidického povlaku teprve vyvíjí. Odchytky od parabolického zákona v případě zirkonia, které mění exponent v rovnici 1.11 z 2 (parabolický zákon) na 3 (kubický zákon), jsou v průběhu oxidace způsobeny paralelním rozpouštěním kyslíkových atomů v krystalové mřížce základního kovu. [54] Množství kyslíku, které zreaguje s palivovým pokrytím, se jako celek nepřemění na oxid, ale částečně prodifunduje i do základního kovu stěny pokrytí. Změřený hmotnostní přírůstek tak nereprezentuje pouze zvětšování tloušťky oxidu (ZrO_2), ale i atomy kyslíku, které se dostaly do α -Zr(O) vrstvy základního kovu (viz Obrázky 1.20 a 1.21).²⁷ [43]

1.3.5.2 Zákon lineárního růstu oxidu

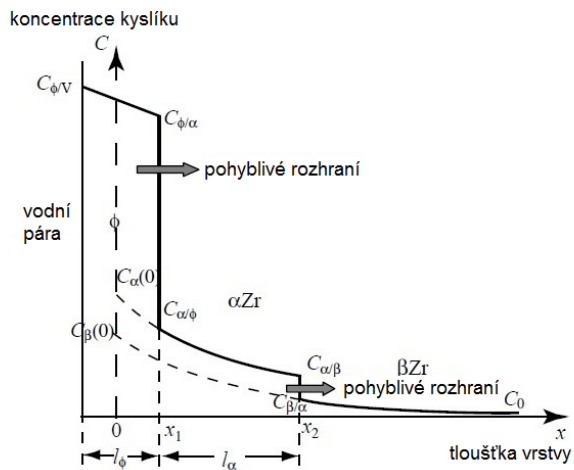
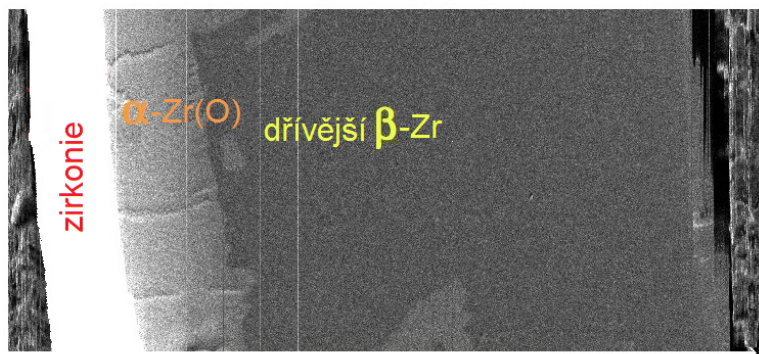
K zákonu lineárního růstu oxidu dochází v případě, že rychlost růstu oxidu řídí oxidační reakce na rozhraní oxid/kov. Jakékoli oxidické povlaky, které se na tomto fázovém rozhraní nacházejí, tak nemohou základní kov chránit. V časných fázích oxidace může k takovému jevu docházet, neboť tloušťka oxidického povlaku není dostatečně silná. S jejím růstem pak často dochází k přechodu na parabolický zákon. V případě silného oxidického povlaku však může při jeho dalším růstu jeho tloušťky docházet k mikropraskání a porositě, k redukci ochranné funkce oxidu a k selhání zákona parabolického růstu oxidu. Po určité době od začátku takové reakce se může rychlost růstu oxidického povlaku přiblížit linearitě. K tomu dochází

²⁶Přepočtový vztah mezi hmotnostním přírůstkem a tloušťkou oxidu je $0,15 \text{ mg/cm}^2 \sim 1 \text{ }\mu\text{m}$. [42]

²⁷Tato částečná difúze silně ovlivňuje mechanické vlastnosti palivového pokrytí po znovuzaplavení AZ (viz Obrázek 1.22).

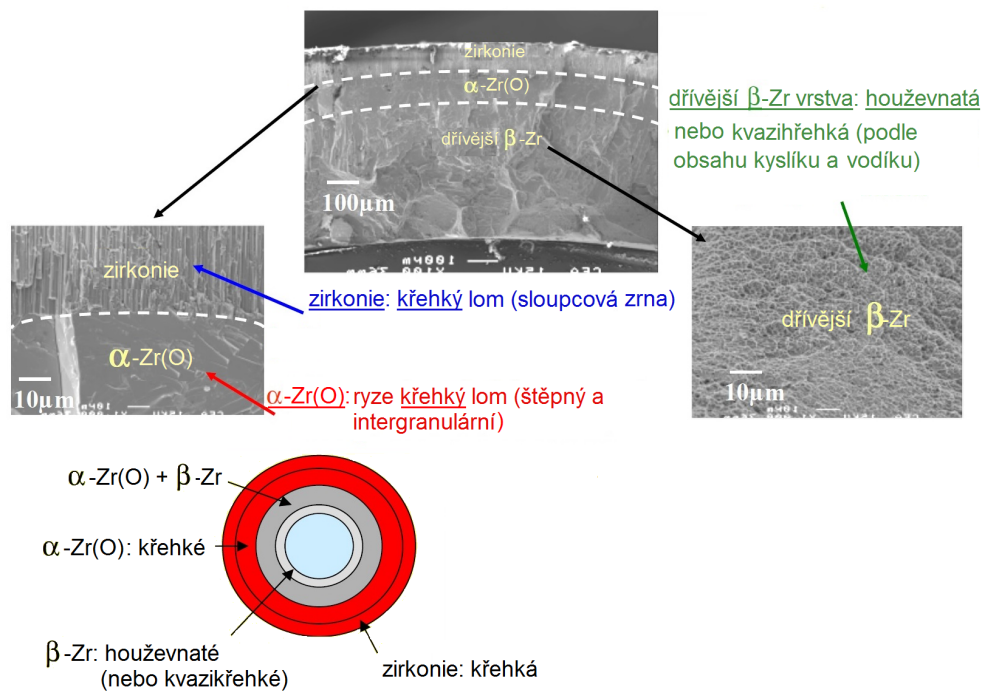


Obrázek 1.20: Difúze kyslíku do stěny palivového pokrytí. [43]



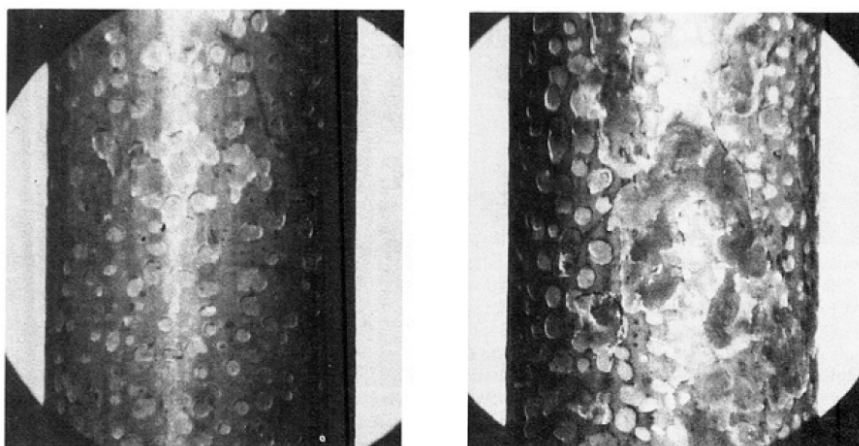
Obrázek 1.21: Mapování kyslíku pomocí elektronového mikroanalyzátoru (*electron probe microanalyzer*, EPMA) a profily koncentrace kyslíku napříč tloušťkou stěny palivového pokrytí. [43]

v případě, že v oxidickém povlaku dojde k fyzikálním nebo chemickým přeměnám vedoucím ke zvýšené difúzi kyslíku. Po rozpadu ochranného povrchového oxidického povlaku na kontinuálně rostoucím počtu míst dojde k nárůstu rychlosti oxidace



Obrázek 1.22: Druhy vysokoteplotního selhání následující po zaplavení. [43]

nebo k odlupování oxidu (viz Obrázek 1.23). Tento jev vede v důsledku absorpce vodíku skrz praskliny k rychlému zkrhnutí palivového pokrytí. Kompaktní oxidické povlaky takovému chování zabraňují a udržují houževnatost pokrytí až do vysokého stupně oxidace. Malé tloušťky oxidu ($< 100 \mu\text{m}$) o vysoké hustotě, které se vytváří po odloupení vnější oxidické vrstvy, generují v α -Zr nižší napětí, které snižuje pravděpodobnost vzniku prasklin napříč stěnou palivového pokrytí. [54, 17]



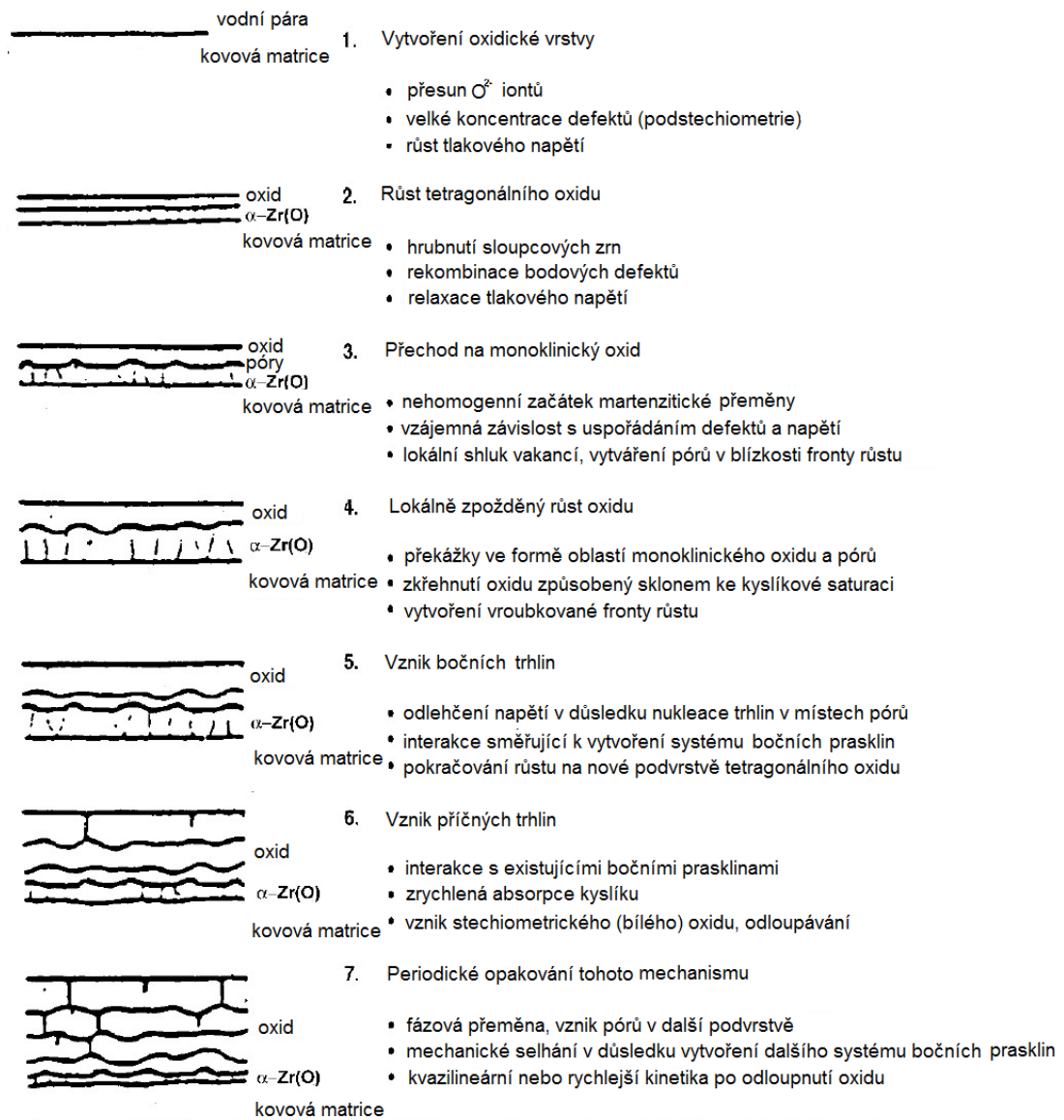
Obrázek 1.23: Vlevo: Odlupování malých kruhových kousků oxidu z palivové tyče o průměru 10,8 mm. Vpravo: Pokročilé stádium odlupování oxidu (průměr palivové tyče 10,8 mm). [42]

Hraniční teplota změny parabolického růstu oxidu na přechodovou kinetiku odlupování je ~ 1350 K. Odlupování oxidického povlaku probíhá souběžně se ztrátou jeho tmavé barvy postupným přechodem z původně duplexní fáze oxidu (s podstatnou částí tetragonální fáze v blízkosti kovového rozhraní, která je pod teplotou 1423 K metastabilní) směrem k monoklinické fázi, která se nachází v blízkosti povrchu (viz Obrázek 1.24). [34] Vyšší hustota, širší rozsah podstechiometrie a menší povrchová energie tetragonální fáze ve srovnání s monoklinickou ovlivňují koexistenci obou fází v teplotním rozsahu ~ 1073 K až ~ 1373 K a vzájemnou martenzitickou přeměnu deformace mřížky. Stabilizace monoklinické fáze následně probíhá při nižších teplotách, působením tlakového zatížení, za vzniku podstechiometrického složení a malé velikosti zrn. Vysoký tlak páry obvykle stabilizuje tetragonální fázi ZrO_2 a nepřímo tak ovlivňuje kinetiku oxidace. [33]

Silně oxidační podmínky obecně vytváří přiléhavé oxidické povlaky o velké tloušťce, které rostou dle parabolického zákona. Nicméně v případě, že je oxidační schopnost prostředí relativně nízká (nízké tlaky kyslíku v částečném vakuu, nízké parciální tlaky kyslíku ve směsi s inertním plynem), přispívají takové podmínky k rozvoji lineární kinetiky oxidace. Parciální tlak kyslíku má velký vliv na hodnotu difúzního koeficientu, ale aktivační energii ovlivňuje jen částečně. Aktivační energie může, zejména u kovů s polymorfní přeměnou, pro jednotlivé fáze nabývat v teplotním rozsahu jejich stability různých hodnot. Analýzu kinetiky oxidace rovněž komplikuje existence vícečetných oxidických fází na povrchu některých kovů. [54, 64] Odlupávání oxidických povlaků by během většiny těžkohavarijních sekvencí nemělo hrát roli, neboť průchod teplotní oblasti odlupávání je dostatečně rychlý. Odlupávání oxidů a jeho následky jsou na druhé straně důležité během dalších sekvencí (havarijní scénáře bazénů skladování použitého paliva nebo sudů pro transport použitého paliva) a projeví se například při nehodě čistící nádrže na JE Pakš v Maďarsku. [18]

1.3.5.3 Typy korelací kinetiky vysokoteplotní oxidace

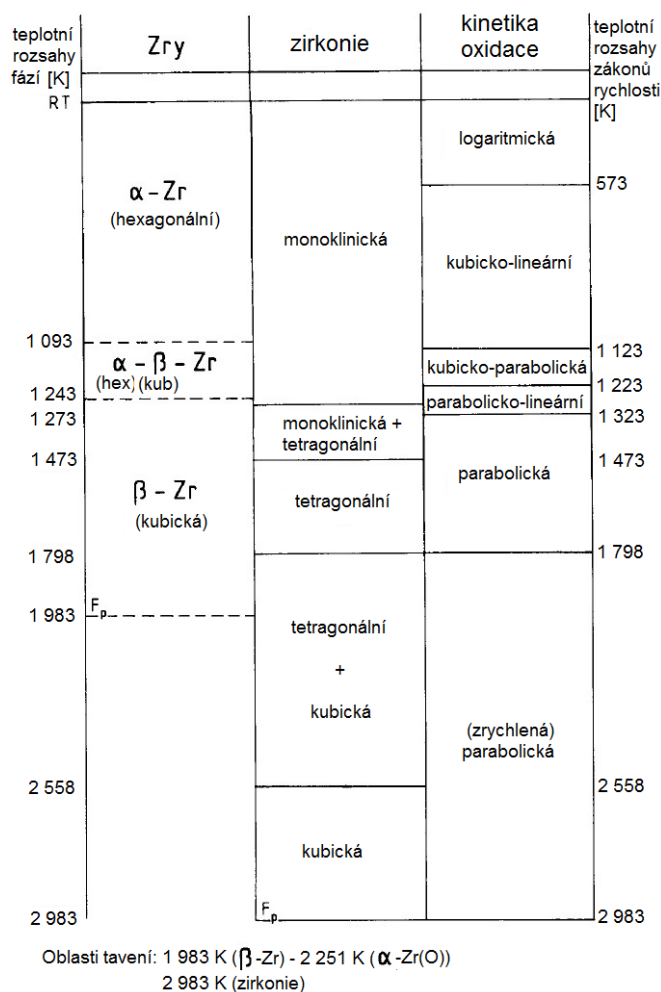
Takzvaná Prozatímní kritéria přijatelnosti vydaná v roce 1971 v USA vyžadovala omezení rozsahu reakce zirkonia v páře (s ohledem na produkci vodíku) a omezovala maximální teplotu palivového pokrytí na 1533 K (s ohledem na zachování uchlazitelnosti geometrie AZ). Nová kritéria přijatelnosti vydaná v roce 1973 definovala teplotní omezení 1477 K, dlouhodobou uchlazitelnost AZ, omezení produkce vodíku odpovídající zreagování 1% z celkového množství materiálu palivového pokrytí a limitní míru lokální oxidace palivového pokrytí 17% z celkové



Obrázek 1.24: Naznačení mechanismu oxidace odlupování v Zircaloyi dle Leistikowa et al [in [43]].

tloušťky pokrytí před oxidací. Poslední procentuální hodnota, která se odkazuje na průměrnou obvodovou tloušťku stěny nafouknutého nebo prasklého pokrytí, byla určena na základě Baker-Justovy korelace oxidace. Od té doby byla podobná kritéria přijatelnosti vyhlášena regulačními úřady celé řady dalších zemí. [33]

Korelace oxidační kinetiky Zry-4 pro teplotní rozmezí 873 až 1 873 K, které vycházejí z experimentálních výzkumů, jsou z velké části konzistentní. Parabolickou rychlost růstu oxidu lze pro toto rozmezí teplot popsat jedinou rovnicí. Existuje několik „klasických“ korelací, které se k výpočtu kinetiky oxidace palivového pokrytí v páře za zvýšených teplot obecně používají (viz Tabulka 1.2). [22, 33, 20] Parabolickou kinetiku oxidace, s parametry odvozenými například Urbanicem



Obrázek 1.25: Přehled fází, přechodů a oblastí tavení zirkonia a ZrO_2 se zákony růstu oxidického povlaku Zry-4 v závislosti na teplotě. [12]

a Heidrickem (in [71]), lze použít až do teploty tavení Zry-4, nicméně z výsledků nedávné studie v rámci projektu COLOSS vyplývá, že pro konkrétní teplotní interval je vhodnější použít příslušné existující korelace, například pro teploty $< 1\,823\text{ K}$ korelaci Leistikowu a pro teploty $> 1\,823\text{ K}$ Prater-Courtrightovu (in [52, 71]).

Od 70. let 20. století probíhal v různých zemích paralelní výzkum kinetiky oxidace, který přinesl velké množství publikovaných informací, které lze v současné době využít pro realistický (*best estimate*) popis chování reálných materiálů. *Best estimate* difúzní koeficienty pro ZrO_2 , α -Zr(O) a β -Zr byly odvozeny pro teplotní rozsah 1 273 až 1 773 K a difúzní koeficient kubického ZrO_2 pro rozsah teplot 1 798 až 2 098 K. ²⁸ Známa hystereze fázové přeměny ZrO_2 z tetragonální na

²⁸Hodnoty difúzních koeficientů se rozlišují podle toho, jestli se získaly z měření „tloušťky vrstev“ (metalografických měření) či z měření „hmotnostních přírůstků“, neboť obě tyto procedury jsou na sobě nezávislé a mohou zahrnovat různé systematické chyby.

	teplotní rozsah [K]	korelace
<i>hmotnostní přírůstek oxidu (kg/m²/s^{1/2})</i>		
Urbanic-Heidrick (AECL, 1977)	1 323 ~ 1 853	1,908 exp(-0,7 × 10 ⁵ /RT)
	1 853 ~ 2 123	3,289 exp(-0,691 × 10 ⁵ /RT)
Cathcart-Pawel (ORNL, 1979)	1 273 ~ 1 773	6,02 exp(-0,836 × 10 ⁵ /RT)
Leistikow-Schanz (FZK, 1983)	973 ~ 1 873	7,24 exp(-0,871 × 10 ⁵ /RT)
Prater-Courtright (PNNL, 1986)	1 900 ~ 2 273	57,4 exp(-1,1 × 10 ⁵ /RT)
FZK (FZK, 2006)	1 073 ~ 1 673	2,78 exp(-0,751 × 10 ⁵ /RT)
Volchek-Zvonarev (NSI&FZK, 2004)	> 1 900	53,37 exp(-1,115 × 10 ⁵ /RT)
	1 800 ~ 1 900	53,37 exp[-1,115 × 10 ⁵ /RT - 3,55 × 10 ⁸ (1/T - 1/1900) ²]
<i>přírůstek tloušťky oxidického povlaku (m/s^{1/2})</i>		
Urbanic-Heidrick (AECL, 1977)	1 323 ~ 1 853	3,6 × 10 ⁻⁴ exp(-0,565 × 10 ⁵ /RT)
	1 853 ~ 2 123	1,4 × 10 ⁻³ exp(-0,665 × 10 ⁵ /RT)
Cathcart-Pawel (ORNL, 1979)	1 273 ~ 1 773	1,5 × 10 ⁻³ exp(-0,751 × 10 ⁵ /RT)
Leistikow-Schanz (FZK, 1983)	973 ~ 1 873	2,8 × 10 ⁻³ exp(-0,84 × 10 ⁵ /RT)
Prater-Courtright (PNNL, 1986)	1 900 ~ 2 273	0,0546 exp(-1,182 × 10 ⁵ /RT)
FZK (FZK, 2006)	1 073 ~ 1 673	2,58 × 10 ⁻³ exp(-0,79 × 10 ⁵ /RT)
Volchek-Zvonarev (NSI&FZK, 2004)	> 1 900	0,093 exp(-1,286 × 10 ⁵ /RT)
	1 800 ~ 1 900	0,093 exp[-1,286 × 10 ⁵ /RT - 6,61 × 10 ⁸ (1/T - 1/1900) ²]

Tabulka 1.2: Přehled různých korelací pro vyjádření kinetiky růstu oxidického povlaku. [20]

monoklinickou způsobuje během teplotních cyklů přechodové události anomálie kinetiky oxidace v rozmezí teplot ~ 1 073 K až ~ 1 373 K. V současné době se uvažuje o revizi kritérií přijatelnosti, která by zohlednila použití paliv o vyšším vyhoření a pokrytí z nových slitin Zr-Nb. Tato revize by mohla vyvolat další rozvoj výzkumu oxidace. [33, 36]

Baker-Justova korelace Baker-Justova korelace je založena na výsledcích experimentů prováděných Bakerem a Justem v oblasti teplot tavení zirkonia (hladké zirkoniové dráty přímo ohříváné ve vodě, pro výpočet reakční rychlosti využití produkce vodíku měřené z kapek taveniny) a výsledcích Lemmona a Bostroma (in [36]), kteří používali indukční vyhřívání vzorků na nižší teploty a k hodnocení reakční rychlosti využívali měření produkce vodíku. Naměřená produkce vodíku je funkcí difúzního součinitele a teploty. Vykreslení logaritmu konstanty parabolické rychlosti růstu v závislosti na převrácené hodnotě termodynamické teploty vykazuje lineární závislost, jejíž sklon představuje aktivační energii. Baker-Justova korelace je nejdůležitější korelací oxidace v popsaném historickém kontextu a až do současnosti se využívá pro licenční účely JE. Její aplikace spadá do konzervativního přístupu, a proto by neměla být součástí výpočtů založených na *best estimate* datech. Nicméně pro vysoké teploty blízké se bodu tavení Zry-4 je tato korelace méně konzervativní. Výhradami proti použití této korelace jsou:

- předpoklad konstantní aktivační energie v celém rozsahu teplot není správný, neboť ZrO_2 se objevuje ve třech různých krystalických formách,
- dle nových experimentálních dat, zvláště pro teplotu nad 1 473 K, by konstanta parabolické rychlosti růstu měla být nižší, než je uvažovaná v tomto typu korelace. [33, 36]

Urbanic-Heidrickovy korelace Urbanic a Heidrick byli prvními autory, kteří pro oxidaci Zry-4 v páře identifikovali diskontinuitu v Arrheniově grafu difúzního koeficientu pro hmotnostní přírůstek vrstvy ZrO_2 a kombinované vrstvy ZrO_2 s α -Zr(O), ke které ale nedochází v případě samotné α -Zr(O) vrstvy. Tento jev souvisí s přechodem ZrO_2 z tetragonální do kubické fáze. Konstanty parabolické rychlosti absorpce kyslíku, vypočítané Urbanicem a Heidrickem, byly podstatně nižší než konstanty uvedené v Baker-Justově korelaci. Urbanic-Heidrickovy korelace se nedoporučuje používat pro *best estimate* výpočty těžkohavarijních výpočetních kódů, neboť při experimentech docházelo, v souvislosti s použitím metody indukčního ohřevu vzorků, k velkým radiálním (možná podobnost s havarijními podmínkami) a axiálními teplotními gradientům. Tento způsob ohřevu vzorků, při srovnání s daty získanými z experimentů využívajících ohřev v pecích, vykazuje jisté rozpory. Urbanic-Heidrickovy nízkoteplotní korelace s klesající teplotou nadhodnocují kinetiku oxidace a naopak, jejich vysokoteplotní korelace s rostoucí teplotou kinetiku oxidace podhodnocují. [33, 36]

Cathcart-Pawelova a Leistikowova korelace Cathcart-Pawelova a Leistikowova korelace se považují za rovnocenné a vysoce hodnověrné. Pro jejich vývoj je typická velká snaha o přesná měření a řízení teplot, dostatečný objem dat a jejich adekvátní a konzistentní vyhodnocování. Podobné výsledky získané v rámci jiných experimentálních programů tento názor potvrzují. Využívání kombinace těchto korelací může zredukovat systematické chyby obou měření. Ve prospěch Cathcart-Pawelovy korelace hovoří standardizovanější procedury a speciální kalibrace teplot, na druhé straně pro volbu Leistikowovy korelace svědčí větší množství dat, lepší dostupnost experimentálně zjištěných hmotnostních přírůstků (absorpce kyslíku) pro všechny testy a lepší shoda v oblasti nižších teplot. [33]

Prater-Courtrightova korelace Nad teplotou 1 800 K je Prater-Courtrightova korelace bezkonkurenčně jedinou možností volby. Experimenty vedené Praterem a Courtrightem, zaměřené na kinetiku oxidace Zry-4 v páře v rozsahu teplot od 1 823

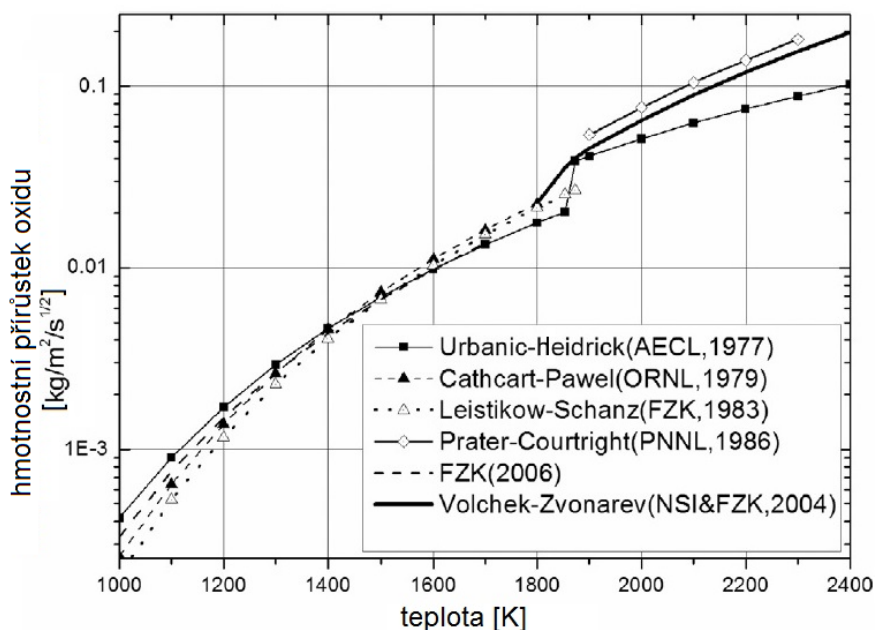
do 2 673 K, vykazovaly parabolický růst vrstev oxidu i α -Zr v celém teplotním rozsahu. V jejich rámci docházelo ve vzorcích k silným teplotním gradientům, a proto lze i pro ně uplatnit stejné výhrady jako v případě Urbanic-Heidrickových korelací. Kvůli náročnosti takových experimentů (měření rychlých reakcí) však pro tuto teplotní oblast zůstává datová základna dodnes omezená a ne zcela přesná. [33, 36]

Metody zahřívání materiálových vzorků Metoda ohřevu materiálových vzorků v peci je výhodnější z hlediska zajištění konstantní teploty stěny palivového pokrytí v průběhu testů. Při indukčním (Urbanic a Heidrick, radiální a axiální teplotní gradienty) nebo přímém elektrickém vyhřívání (Biederman et al. (in [36])), přímé odporové zahřívání vzorků v nevytápěné reakční komoře, ve které proudila přehřátá pára, což umožňovalo výzkum vnější a/nebo vnitřní oxidace trubek) docházelo v důsledku chladného prostředí k teplotním nehomogenitám vzorků. Sawatzky et al. (in [36]) dosáhl úpravou geometrie vzorků a využitím ohřevu v peci na základě těchto výhrad během experimentů, které byly podobné těm vedeným Urbanicem a Heidrickem, důležitého zlepšení teplotní homogenity vzorků a podstatného zvýšení konstanty parabolické rychlosti růstu. [33]

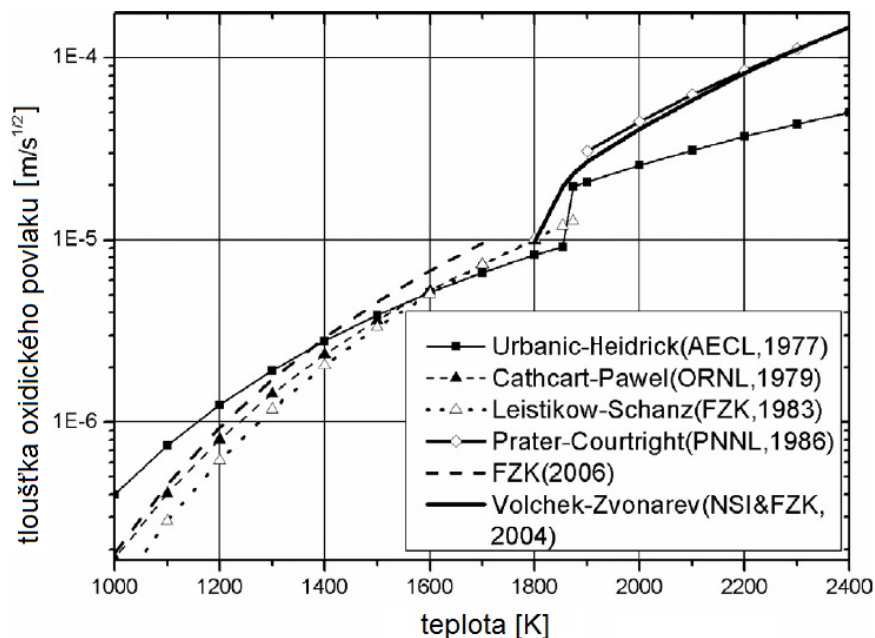
Dopad fázové přeměny ZrO_2 na kinetiku oxidace V roce 1977 došlo k identifikaci teploty přechodu ZrO_2 z tetragonální do kubické fáze (Urbanic a Heidrick), která se odehrává při 1 853 K a která zvyšuje rychlosti oxidace nad hodnoty uvedené v Baker-Justově korelaci.²⁹ Nicméně podle binárního fázového diagramu Zr-O byl tento odhad teploty příliš vysoký a za vhodnější teplotu přechodu, kterou potvrdily i experimentální výsledky, se určilo 1 800 K. [36, 20] Porovnání atomárního hmotnostního přírůstku a růstu oxidického povlaku různých korelací jsou zobrazena na Obrázcích 1.26 a 1.27. I z nich je patrná zmíněná diskontinuita v Arrheniových grafech rychlostních koeficientů pro hmotnostní přírůstek a růst oxidického povlaku. Nicméně široký teplotní rozsah koexistence obou oxidických fází (kubické i tetragonální) vylučuje aplikaci skokové funkce tak, jak ji Urbanic s Heidrickem navrhovali. Pro získání stabilního přechodu z vysokoteplotní do nízkoteplotní korelace je zapotřebí uhladit umělý skok při teplotě 1 800 K mezi Cathcart-Pawelovou/Leistikowou korelací a Prater-Courtrightovou korelací, napří-

²⁹Mikrostruktury oxidu pro teploty 1 823 a 1 873 K jasně ukazují kubickou fázi ZrO_2 ve vnitřní části dvouvrstvého oxidického povlaku, která vede, z důvodu rozšíření oblasti podstechiometrie a vyšší difuzivity kyslíku této fáze, k urychlení kinetiky oxidace.

klad prostřednictvím využití jejich váženého průměru pro teplotní oblast 1 800 až $\sim 2\,600\text{ K}$.³⁰ Tento postup by mohl být vylepšen v případě zpřístupnění spolehlivějších dat kinetiky oxidace a fázového diagramu. [33]



Obrázek 1.26: Teplotní závislost hmotnostního přírůstku oxidu vyjádřená různými korelacemi. [20]



Obrázek 1.27: Teplotní závislost tloušťky oxidického povlaku vyjádřená různými korelacemi. [20]

³⁰Difúzní profil se v mechanistických výpočtových kódech počítá z hodnoty difuzivity a koncentrace v oblasti fázových rozhraní.

1.4 Bezpečnostní analýza jako prostředek prevence těžkých havárií

Řada obecných bezpečnostních kritérií a opatření proti úniku radioaktivních látek se, formou *a priori* určené sady pravidel, definovala již na začátku rozvoje jaderné energetiky. Veřejné vnímání bezpečnosti jaderných zařízení, které v mnoha případech závisí na pravděpodobnosti výskytu těžkých havárií, bude mít stále větší dopad na jejich budoucnost (prodloužení životnosti stávajících a realizace nových projektů). Ponaučením se z proběhlých havárií, které se aplikuje v praxi (lepší výcvik operátorů, vývoj realističtějších strategií zvládnání havárií, rozvoj vyspělejších návrhů reaktorů), jim lze předcházet. Bezpečnost JE se musí kontinuálně udržovat a v definovaných intervalech periodicky kontrolovat. Tyto kontroly zahrnují bezpečnostní analýzy - analýzu chování JE za normálních, abnormálních i těžkohavarijních podmínek. Adekvátní hodnocení bezpečnosti JE vyžaduje, aby nástroje, které se k bezpečnostní analýze používají, byly kvalitní. Jaderná zařízení nelze v rámci bezpečnostní analýzy testovat na všechny pravděpodobné situace. Havarijní podmínky se simulují ve specializovaných experimentálních zařízeních. Havarijní analýza reálných JE probíhá s využitím teoretických prostředků (výpočtových kódů), které vycházejí zejména z modelových experimentů, pomocí kterých lze fyzikální jevy reálně pozorovat a analyzovat. [73] Fenomenologie těžkých havárií je rozsáhlá. Analytický a experimentální výzkum, který probíhá na evropském i celosvětovém poli, je odborně i finančně velmi náročný, a proto je organizován na bázi mezinárodní spolupráce se sdílením odborných, experimentálních a finančních zdrojů zúčastněných organizací. Mezinárodní výzkum těžkých havárií sleduje dva základní cíle:

1. získání dalších poznatků o procesech a těžkohavarijních jevech,
2. zdokonalení fyzikálních modelů výpočtových kódů pro analýzy těžkých havárií. [41, 48, 4]

1.4.1 Bezpečnostní analýza s aplikací deterministického přístupu

Koncepce deterministického přístupu vychází z předpokladu, že průběh každé události lze jednoznačně předvídat na základě matematického modelu ověřeného vhodnými experimenty a že lze formulovat limity, které nebudou překročeny a podmínky,

za nichž lze bezpečně JE provozovat. Pojem havarijní analýza je označením deterministického bezpečnostního rozboru předpokládaných provozních (přechodových) událostí, DBA a BDBA, které se zaměřuje na hodnocení přiměřenosti a účinnosti opatření aplikovaných v rámci koncepce ochrany do hloubky. Zahrnuje volbu iniciačních událostí a kritérií přijatelnosti, výběr výpočtových kódů a modelových předpokladů, přípravu vstupních dat a prezentaci dat výsledných. Havarijní analýza je jedním ze základních nástrojů prokazování bezpečnosti JE, ke kterému využívá různé, stále se vyvíjející, metody (od jednoduchých aplikací se zjednodušenými modely až po pokročilé třírozměrné simulace). [37, 47, 48]

Na počátku vývoje termodynamických havarijních analýz na bázi počítačových simulací (60. léta 20. století) byly znalosti fyzikálních jevů probíhajících při havárii omezené a kapacita tehdejší výpočtové techniky limitovaná. Tyto nedostatky bylo nutné metodicky kompenzovat konzervativními předpoklady, které, za účelem získání nejhoršího možného průběhu zkoumané veličiny, záměrně nadhodnocují modely korelací a parametrů JE, a jejichž výsledky nedávají žádnou informaci o skutečném chování JE. Důsledkem *konzervativního přístupu* je provoz JE se značnými bezpečnostními rezervami, které však není možné prokázat. Pod záštitou US NRC byl proto iniciován dlouhodobý mezinárodní program s cílem přehodnotit konzervativní požadavky regulačních orgánů na bezpečnostní analýzy. V rámci tohoto programu byla provedena řada separátních a integrálních testů na experimentálních zařízeních po celém světě (viz část Výpočtové kódy). Jedním z nejdůležitějších přínosů tohoto úsilí byl rozvoj *best estimate* výpočtových kódů opírajících se o získané experimentální poznatky. Navzdory dosaženému pokroku ve vývoji počítačových modelů i výpočetní techniky jsou v nich obsažené termohydraulické modely a matematické metody řešení pouze přibližné, a jejich výsledky tedy nejsou exaktní, ale neurčité.³¹ Neurčitosti výstupních klíčových parametrů se stanovují analýzami neurčitosti, které se zakládají na specifických statistických metodách (*kombinovaný přístup*). [37, 47, 48]

Pravděpodobnostní přístup je založen na pravděpodobnostní bezpečnostní analýze (*probabilistic safety analysis*, PSA), která sleduje posloupnost událostí a poruch včetně selhání technických bezpečnostních systémů, odhaluje pravděpodobnost poruchy v každém kroku a kombinuje jednotlivé pravděpodobnosti poruch do celkové pravděpodobnosti, se kterou může celá posloupnost nastat. Kromě odha-

³¹Značná část modelů se zakládá na empiricky odvozených rovnicích. Numerické řešení soustavy parciálních diferenciálních rovnic je pouze přibližné. Experimentální a provozní data jsou zatěžkána chybami jejich měření.

du pravděpodobnosti výskytu havárie (1. úroveň) umožňuje PSA rovněž výpočet složení a množství radioaktivních látek, které by v případě vážné poruchy mohly uniknout z ochranné obálky reaktoru (zdrojový člen - 2. úroveň), včetně účinků na životní prostředí a okolní populaci (3. úroveň). Pravděpodobnostní metoda analyzuje chování reaktoru a jeho bezpečnostních systémů jako celek, se zdůrazněním vzájemných vazeb a závislostí. [47]

1.4.1.1 Kritéria přijatelnosti

Výsledky havarijních analýz se porovnávají s maximálně přípustnými hodnotami průběhu nebo parametrů (kritérii přijatelnosti) a musejí být bezpečně nižší než ony. Tím jsou splněny legislativní požadavky dozorných orgánů, které se vztahují na integritu paliva a palivového pokrytí (první a druhá bezpečnostní bariéra), integrita RCS (třetí bezpečnostní bariéra) a na přípustnou propustnost hermetického prostoru (čtvrtá bezpečnostní bariéra). V případě celistvosti nebo omezeného poškození těchto bariér nedochází k nekontrolovatelnému úniku radioaktivních látek.³² Celistvost bezpečnostních bariér ovlivňuje: ztráta mechanických vlastností v důsledku nadměrného ohřátí, přetlak primárního okruhu nebo kontejnmentu, strukturální poškození v důsledku mechanického nárazu nebo proudění, tepelná únava, šíření lomu. Při těžkých nehodách zůstává jedinou bezpečnostní bariérou obvykle kontejnment. „Bezpečnostní hlediska“ havárie určují funkčnost bezpečnostních bariér a tím i dodržení třech základních bezpečnostních kritérií: kontroly reaktivity, odvodu tepla z paliva, izolace radioaktivních materiálů uvnitř kontejnmentu. V průběhu LB LOCA musí být pro ECCS v LWR splněna následující kritéria přijatelnosti:

1. maximální teplota palivového pokrytí z materiálu Zry-4 - 1 473 K (nedojde k tavení ani křehnutí palivového pokrytí v důsledku chemické reakce s vodní párou),
2. maximální rychlost oxidace palivového pokrytí - oxidace by neměla lokálně přesáhnout 17 - 18 % počáteční tloušťky pokrytí před oxidací,
3. maximální množství vodíku uvolněného při chemické reakci zircaloyového pokrytí s vodou a/nebo párou - integrální množství vodíku by nemělo pře-

³²V průběhu některých typů havárií (například LOCA) existuje pravděpodobnost poškození několika bariér (zpravidla nejvýše druhé bezpečnostní bariéry, tj. poškození palivových proutků v omezeném rozsahu) a zároveň se vyžaduje zachování celistvosti čtvrté bezpečnostní bariéry.

sáhnout 1 % hypotetického množství, které by vzniklo za předpokladu, že by v AZ zreagovalo veškeré palivové pokrytí,

4. uchlazitelná geometrie AZ - vypočítané změny geometrie AZ (nafouknutí palivového pokrytí, deformace palivových svazků) nesmí ohrozit uchlazitelnost AZ v průběhu havárie ani po ní,
5. dlouhodobé chlazení AZ - odvod zbytkového tepla po takovou dobu, která je dostatečná z hlediska radioaktivního rozpadu. [37, 38, 47, 48]

1.4.2 Výpočtové kódy využívané při provádění havarijních analýz

V rámci havarijní analýzy slouží komplexní výpočtové kódy (od specializovaných kódů reaktorové fyziky až k mechanistickým termohydraulickým kódům), prostřednictvím řešení soustavy matematických rovnic popisujících fyzikální model jaderného zařízení, k výpočtu parametrů JE. Důvěra ve výsledky jejich simulací, a v důsledku toho i v bezpečnost a bezpečný provoz JE, silně závisí na jejich schopnostech modelovat fyzikální jevy a na validaci těchto schopností v rámci experimentálních programů a/nebo provozních dat reálných zařízení. Věrohodný výpočtový program validovaný na dílčích a integrálních experimentech je vhodný nástroj, který je možné použít nejen k analýze stávajícího stavu ECCS, ale především k prověřování a hodnocení nových projektů, které dále snižují riziko možných havárií. Havarijní analýza je úzce svázaná s bezpečností, a proto se analýza, která je nekonzistentní, neúplná či nekvalitní, považuje pro danou JE za bezpečnostní riziko. [37, 48]

Potřebné informace o fyzikálních a chemických procesech probíhajících při havárii lze získat dvojím způsobem:

1. **Experimentálně** (je-li k dispozici reaktor, jeho fyzikální model či fyzikální model jeho části) lze simulovat některé havarijní situace a změřit odezvy systému na tyto poruchy. Nevýhodou této metody bývá vysoká cena modelu, velké provozní náklady experimentů, nedostatečné zobrazení vnitřních vazeb mezi jednotlivými veličinami, žádné vize vylepšení vlastností reaktoru. Experiment přesto zůstává, alespoň v omezené míře, nezbytnou součástí vývoje jaderné bezpečnosti.
2. **Fyzikálně-matematickou analýzou** procesů probíhajících v reaktoru. Důsledky havárií vedoucí ke zničení reaktoru lze řešit vhodným matematickým

modelem, což je ekonomicky efektivnější. Každý model je však pouhou abstrakcí, více či méně zdařilou aproximací složité skutečnosti, založenou na správně volbě zjednodušujících předpokladů. [47]

1.4.2.1 Klasifikace výpočtových kódů

Z hlediska reálného využití se stávající těžkohavarijní kódy dělí do tří skupin: rychle běžící integrální kódy, podrobné (mechanistické) kódy a speciální (jednoúčelové) kódy. [41]

1. Rychle běžící integrální kódy

Integrální kódy simulují celkovou odezvu JE (odezvu chladicího systému reaktoru, kontejnmentu a zejména zdrojový člen). K těžkohavarijní analýze využívají „integrované“ modely. K simulaci konkrétních jevů aplikují kombinaci fenomenologických a parametrických modelů. Pro provádění dostatečného množství simulací různých scénářů, které doprovází zkoumání nejistot, je zapotřebí, aby byli relativně rychle běžící. Tyto kódy nejsou primárně určeny pro *best estimate* simulace, ale za to umožňují uživateli, použitím uživatelsky definovaných parametrů, propojit důležité procesy nebo jevy. Dobře vyvážená kombinace podrobných a zjednodušených modelů jim dovoluje simulaci příslušných těžkohavarijních jevů. Označení „rychle běžící“ by se mělo blížit reálnému času a analýzy typických havarijních scénářů by neměly trvat déle než 12 hodin. [41, 5]

Integrální kódy se obvykle využívají na podporu 2. úrovně PSA analýz, pro odhad rizik těžkohavarijních scénářů a pro vývoj a validaci programů pro prevenci a zmírnění havárií. Jejich modely jsou založeny především na parametrickém charakteru (uživatelsky definované parametry modelu umožňují zkoumat na výsledcích výpočtu důsledky neurčitostí) s částečným zachováním některých mechanistických rysů. Pro získání *best estimate* výsledků jsou nutné hluboké znalosti příslušných fyzikálních jevů, stejně jako zkušenosti uživatelů s prováděním těžkohavarijních analýz. Zjednodušování modelů snižuje nároky na výpočetní čas. Některé příklady rychle běžících integrálních kódů jsou MAAP (vyvíjený americkou společností *Fauske & Associates Inc.*), MELCOR (vyvíjený americkou národní laboratoří SNL, *Sandia National Laboratories* a sponzorovaný US NRC) a ASTEC (společně vyvíjený francouzským IRSN a německým GRS, *Global research for safety*). [41, 5]

2. Podrobné kódy

Pro nejpresnější simulaci chování JE v případě těžké havárie používají podrobné kódy *best estimate* fenomenologické modely. K řešení integrálních diferenciálních rovnic využívají numerická řešení, zatímco integrální kódy používají korelace. Používají se pro provádění porovnávání (*benchmarking*) s integrálními kódy nebo k odvozování zjednodušených modelů, které se včleňují do integrálních kódů. Cílem podrobných kódů je detailní modelování všech příslušných jevů pomocí mechanistických modelů. Uživatelsky definované parametry jsou k dispozici pouze u jevů, které nejsou, z důvodu nedostatku experimentálních dat, dobře pochopeny. S podrobnými kódy lze provést *best estimate* analýzu, ale její neurčitosti musí být kvantifikovány. [41, 5] Vzhledem k vysokým nárokům na výpočetní čas simulují obvykle pouze část JE - buď RCS nebo kontejnment. Přijatelná doba výpočtu závisí na rozsahu aplikace a na úrovni prostorové či časové diskretizace, ale obvykle nepřesahuje 10-ti násobek reálného času. Hlavními mezinárodně používanými podrobnými kódy současné doby jsou:

- pro chování RCS a degradaci AZ: německý ATHLET-CD (GRS), francouzský ICARE/CATHARE (IRSN), američtí SCDAP/RELAP5 (INL, Idaho National Laboratory) a RELAP/SCDAPSIM (ISS, Innovative Systems Software);
- pro kontejnment: německý COCOSYS (GRS) a americký CONTAIN (vyvíjený SNL a sponzorovaný US NRC). [41, 5]

Kódy ASTEC a MELCOR lze rovněž v případě, že je jejich výpočet založen na rozsáhlé nodalizaci a detailních možnostech modelu, považovat za podrobné kódy. [41]

3. Speciální (jednoučelové) kódy

Speciální kódy se zabývají jednotlivými jevy. V závislosti na jejich aplikaci mohou být jednoduché a rychlé běžící nebo složité s dlouhou dobou výpočtu. Speciální kódy se používají pro simulaci následujících problémů: parní exploze a rozptýlení taveniny (francouzský MC3-D vyvíjený v IRSN); chování bazénu taveniny (americký ADINA-F); ohřev konstrukcí RCS (čínský COMMIX); mechanika konstrukcí (CAST3M vyvíjený francouzskou CEA, Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives, nebo americký ABAQUS); sekundární kritičnost; zadržování taveniny v oblasti dna; dis-

tribuce vodíku (lokální účinky); vznícení vodíku (riziko zrychlení plamene) a výbuch; šíření taveniny. Do této skupiny výpočtových kódů se řadí i CFD (*computational fluid dynamics*) kódy řešící Navier-Stokesovy termohydraulické rovnice v prostorové geometrii: německý GASFLOW (KIT, Karlsruhe Institute of Technology), francouzský TONUS (IRSN), americký komerční CFX, a další. [41, 5]

1.4.2.2 Modelování vybraných těžkohavarijních jevů a jejich neurčitosti

Termohydraulika Termohydraulickou odezvu JE popisuje systém diferenciálních rovnic zachování. Numerické řešení vyžaduje diskrétní zobrazení modelovaného systému. Nodalizace zobrazuje strukturu zařízení nebo systému a definuje rozdělení jeho objemů na menší části, které se obvykle nazývají nody, buňky nebo kontrolní objemy. Většina termohydraulických systémových kódů využívá stupňovitě mřížovou nodalizaci. Výpočtový kontrolní objem je nejmenší částí struktury, v jejíž středu se definují skalární veličiny (tlak a teplota). Hodnota veličiny v kontrolním objemu představuje průměrnou hodnotu v celém jeho objemu. Vektorové veličiny (rychlost, hmotnostní průtoky) se definují na vstupní a výstupní hraně kontrolního objemu. Při vytváření a volbě typu nodalizace záleží na velikosti kontrolního objemu, způsobu propojování malých a velkých kontrolních objemů, jejich větvení a spojení do jednoho celku. Velikost kontrolních objemů a hustota nodalizačního schéma je volena podle míry přesnosti reprezentace naměřených dat výpočtovým modelem. [41, 73]

Integrální kódy obsahují kvazirovnovážné modely, ve kterých se rovnice zachování hybnosti tekutiny buď zanedbávají, nebo zjednodušují předpokladem dobře promíchaného nebo stratifikovaného toku (plně turbulentní či laminární proudění). K popisu oblastí s podmínkami dvoufázového proudění slouží korelace jako například korelace *drift flux* (posunutého proudění). V důsledku vysokých teplot materiálů nelze v případě těžkých havárií spoléhat na zachování platnosti teplotní rovnováhy. V případě relativně pomalého odpařování chladiva a odkrývání AZ obvykle dobře fungují nerovnovážné i kvazirovnovážné přístupy. Nerovnovážné modely jsou schopné popisovat širší škálu přechodových událostí, ale v případě pomalejších přechodových událostí je popis kvazirovnovážnými modely přesnější. [41]

Přechodová událost typu znovuzaplavení AZ způsobuje tepelnou a mechanickou nerovnováhu, která se musí odrazit i v jejím modelování. Integrální (kvazirovnovážné termohydraulické modely), ale do určité míry ani podrobné kódy (nerovnovážné modely), nejsou schopny dostatečně přesně modelovat všechny charak-

teristiky znovuzaplavení poškozené AZ. Modelování tohoto procesu pomocí běžně dostupných výpočtových kódů se od konce roku 2000 zkoumá v rámci Mezinárodních standardních problémů (*International Standard Problems, ISP*) pořádaných ve spolupráci Organizace pro hospodářskou spolupráci a rozvoj (*Organisation for Economic Co-operation and Development, OECD*) a Agentury pro jadernou energii (*Nuclear Energy Agency, NEA*), což je případ i experimentu QUENCH-06, který byl řešen jako ISP-45. [41]

Oxidace materiálů AZ Kinetiku růstu oxidické vrstvy a rychlost produkce vodíku popisují experimentálně odvozené korelace. V oblasti vyšších teplot odpovídající těžkým haváriím ($> 1\,500\text{ K}$) však nemusí přesně odpovídat skutečnosti. Většina kódů obsahuje buď korelace s uživatelsky volenými možnostmi nebo detailnější modely používající rovnice pro difúzi kyslíku do různých fází zirkonia ($\alpha\text{-Zr}$, $\beta\text{-Zr}$). Začlenění numerických řešení těchto parciálních diferenciálních rovnic do nodalizace současných výpočetních kódů není moc vhodné, a tak panuje snaha vytvořit metodu, která by zachovala popis procesu pomocí základní teorie difúze, ale která by byla vyjádřena formou spojených obyčejných diferenciálních rovnic v čase v každém axiálním kontrolním objemu. [13, 33] Větší přesnost difúzních modelů se projevila v rámci experimentů dílčích jevů, ale jejich výhoda v rámci velkých integrálních experimentů či reaktorových výpočtů není tak zřejmá (včetně větších nároků na výpočetní čas). Korelace se úspěšně používají i v případě mechanistických kódů. [41] Srovnáním difúzních modelů a korelací se prokázalo, že použití parabolického zákona kinetiky je přijatelné v případě relativně nízkých rychlostí zahřívání (nebo ochlazování) AZ, ke kterému dochází pouze během omezených intervalů havarijních sekvencí. [34, 17, 71]

Selhání palivového pokrytí Modelování selhání oxidického povlaku, který určuje začátek odtoku materiálů AZ, je velmi důležité a obvykle se zakládá na jednoduchých, experimentálně odvozených, kritériích teploty a tloušťky povlaku. Výsledky některých experimentů prokázaly, že k selhání pokrytí dochází při teplotách v rozmezí $2\,000 - 2\,500\text{ K}$ a oxidické tloušťce v rozmezí $200 - 400\ \mu\text{m}$. [41]

Neurčitosti modelování těžkohavarijních jevů I přes pokroky v modelování těžkohavarijních jevů stále existují neurčitosti, které souvisí především s nedostatkem experimentálních dat. Různé jevy se dělí podle stupně jejich poznání:

1. Jevy vysoké úrovně poznání

Modelování těchto jevů bylo experimentálně ověřeno a je dostatečně přesné. Do této skupiny patří jevy časné fáze poškození AZ: odpařování chladiva, sekundární kritičnost v případě neporušené geometrie, znovuzaplavení AZ před začátkem podstatné produkce vodíku, PCI, nafouknutí pokrytí, tavení paliva a dalších materiálů AZ, oxidace zirkonia a oceli, uvolnění těkavých štěpných produktů, elastické deformace stěny dna TNR. [41]

2. Jevy střední úrovně poznání

Jako celek jsou tyto jevy pochopeny, ale v případě neprozkoumaných rozsahů parametrů nebo extrapolace na úroveň reaktoru stále existují neurčitosti. Hlavní procesy se popisují vhodnými modely, ale validace těchto modelů může být z důvodu omezené dostupnosti dat omezena. Spadají sem některé jevy časné fáze těžké havárie jako selhání oxidického povlaku nebo chování oxidu v případě vysokého tepelného namáhání. Chování UO_2 za oxidačních podmínek (pára nebo vzduch) není dostatečně popsáno. Uvolňování méně těkavých produktů štěpení je zatíženo vyššími nejistotami. Do této skupiny rovněž patří některé jevy pozdní fáze havárie: přenos tepla v rámci/z lože trosek, přenos tepla z bazénu taveniny na stěny dna. [41]

3. Jevy nízké úrovně poznání

Přesto, že od konce 70. let 20. století došlo k velkému pokroku v chápání a schopnosti analyzovat těžké havárie, stále existují technické problémy, které je nutno vyřešit. Tyto problémy mohou výrazně ovlivnit provádění budoucích havarijních analýz, zejména pokud jde o opatření směřující k úspěšnému zvládnutí těžkých havárií. Tato skupina jevů je popisována parametrickými modely, které nejsou dostatečně zvalidovány. Proces znovuzaplavení AZ je z termohydraulického hlediska dostatečně pochopen, nicméně stále existují otevřené otázky týkající se produkce vodíku (rozpad ochranného oxidického povlaku), k jejichž zodpovězení je další výzkum nezbytný. Při větším poškození AZ je z pohledu termohydrauliky k dispozici menší množství spolehlivých dat, což ovlivňuje i simulaci produkce vodíku. [41]

1.4.2.3 Validace výpočtových kódů

Během ověřování výpočtových kódů se sledují všechny významné dílčí jevy, způsob, jakým se kombinují, zjednodušující předpoklady a možná absence některých důležitých jevů. Proces ověřování se dělí do dvou etap: verifikace a validace, ale nelze mezi nimi vést přesné rozhraní. **Verifikace** obvykle spočívá v pečlivé kontrole toho, zda použitá verze výpočtového kódu skutečně obsahuje to, co se od ní očekává a zda je pro řešení zkoumaného problému vhodná. Po začlenění fyzikálních modelů do kódu s adekvátním numerickým návrhem následuje: kontrola souladu mezi technickými podmínkami kódu a samotným kódováním, kontrola správnosti řešení diferenciálních rovnic, které kód provádí, ověření zachování hmoty, energie a hybnosti a kontrola stability numerických výsledků na různé typech výpočetní techniky. **Validace** se zaměřuje na ověření fyzikálních modelů, matematických postupů, vhodnosti výchozích předpokladů. Validace probíhá formou srovnávání výsledků kódu s výsledky experimentálních programů. [41, 47, 5]

Systematická validace většiny mezinárodně uznávaných výpočtových kódů, zejména systémových termohydraulických kódů probíhá v rámci řady mezinárodních programů, které jsou organizovány IAEA, Výborem pro bezpečnost jaderných zařízení (*Committee on the Safety of Nuclear Installations*, CSNI) OECD/NEA, během kterých dochází k výměně zkušeností mezi členskými státy v oblasti využívání výpočtových kódů a testování materiálů a zahrnují rovněž řešení ISP. Primárním cílem těchto aktivit je zvýšení důvěry ve validitu a přesnost analytických nástrojů, které hodnotí bezpečnost jaderných zařízení, odhad jejich neurčitostí a prokázání odborné způsobilosti zúčastněných institucí. Některé kódy mají do ověřovacího procesu začleněna přezkoumání (*peer review*) jimi využívaných modelů, které jsou jejich prostřednictvím detailně zhodnoceny. [37, 41, 5, 73] Sadu určitých dat může kód předpovídat s vysokým stupněm přesnosti a současně může být pro jiná data velmi nepřesný. Tento rozpor řeší, pro každý výpočtový kód unikátní, „validační matice“, jejímž prostřednictvím se k validaci kódu používají různé typy experimentálních zařízení a různé podmínky ve stejném experimentálním zařízení, a která zajišťuje správné zvalidování kódu:

1. Každý zkoumaný jev by měl být řešen v rámci experimentálních zařízení různých měřítek.
2. Každý jednotlivý model kódu by měl být validován na experimentech dílčích jevů (*separate-effects tests*, SET), pokud možno různých měřítek.

3. Tyto modely by měly být validovány na experimentech provázaných jevů (*coupled-effect tests*, CET), které by měly zohlednit jejich složité interakce i změny měřítka.
4. Celková schopnost kódu by se měla prokazovat pomocí mnoha výpočtů (*blind*), které předcházejí zveřejnění výsledků experimentů různých druhů. [37, 41]

ISP Experimenty tohoto druhu se pořádají v rámci CSNI OECD/NEA a od 70. let 20. století proběhlo již 50. Jejich obecným cílem je prezentovat současný stav vývoje matematického modelování, prezentovat schopnost výpočtových kódů věrohodně predikovat průběh přechodové události, porovnat různé výpočtové modely, přispět k hlubšímu porozumění zkoumaných jevů. Průběh ISP je dostatečně dokumentován, probíhají na kvalitních experimentálních stenech a jsou dostatečně hodnotným zdrojem informací, neboť umožňují rozsáhlá porovnávání kódu proti kódu či kódu proti naměřeným datům. Zahrnují setkání (*exercises*), během kterých se předpovědi daného fyzikálního jevu, získané různými výpočetními kódy různých organizací, porovnávají mezi sebou a rovněž s výsledky pečlivě kontrolované experimentální studie. Jejich prostřednictvím tak lze zvýšit důvěru ve validaci a přesnost výpočtových kódů, které hodnotí bezpečnost JE. Často probíhají ve dvou fázích: na začátku probíhá *blind* fáze, při níž mají uživatelé kódů k dispozici pouze podmínky experimentu; v druhé, otevřené (*open*), fázi jsou účastníkům před spuštěním výpočtů poskytnuty i výsledky experimentu. ISP se mohou použít pro validaci (jejich řešení se stalo důležitou součástí validace mnoha kódů), ale rovněž umožňují uživatelům kódu zlepšit své schopnosti, získat zkušenosti a prokázat svoji způsobilost k provádění *best estimate* výpočtů. Ze závěrečných zpráv některých ISP je patrný „vliv uživatele“. V průběhu ISP používá několik skupin účastníků tytéž kódy, ale pouze s jinými uživatelsky definovanými možnostmi nastavení vstupních souborů pro konkrétní kód. Za účelem zabezpečení jakosti výzkumu by měli být noví uživatelé kódu dostatečně proškoleni, včetně přezkumu jejich výsledků zkušenými odborníky, kteří nejsou do konkrétního projektu přímo zainteresováni. Uživatelé by rovněž měli být kritičtí k výsledkům, konzistenci a spolehlivosti svých výpočtů. [41, 47, 5]

Měřítka a velikosti experimentů Pro vývoj i validaci modelů je nutné používat experimenty různých měřítek. V těchto experimentech se aplikují prototypy palivových tyčí o délce obvykle v rozmezí od 0,25 m do plné délky palivové ty-

če. Ve většině z nich se však používá pouze malé množství palivových tyčí, což z nich z termohydraulického hlediska dělá experimenty malého měřítka a produkuje zkreslení jevů jako například přirozené cirkulace či radiálních tepelných ztrát. Pouze v několika případech (například LOFT-FP-2, který byl zmenšeným PWR) se jedná o experimenty střední velikosti. Dostupná měření z TMI-2 jako havárie plného měřítka nám o průběhu těžké havárie poskytují jen málo dat a pro jeho porozumění bylo zapotřebí provést rozsáhlou analýzu vyžadující použití výpočtových kódů. Modelování následků těžkých havárií se z velké části zakládá na experimentech a modelech, jejichž přesnost může být omezena jejich měřítkem, ze kterého se informace o fenomenologii havárie odvozuje. Experimenty velkého měřítka s prototypickými taveninami jsou velmi drahé a obtížně proveditelné, a proto je posuzování dopadu měřítek na výsledky experimentů stále důležitějším tématem. [41, 5]

Validační matice Validační matice, které byly sestaveny pro integrální kódy, jsou založené na principu existence různých typů experimentů (viz Tabulka 2.2). Interakce a zpětné vazby mezi jednotlivými jevy hrají v těžkohavarijních sekvencích důležitou roli. Cílem validačních matic je spojit každý důležitý jev probíhající během těžké havárie s minimálně jedním experimentem, nebo lépe sadou experimentů, o různém měřítku využívajícím simulující a/nebo prototypické materiály. Základem těchto matic jsou buď experimenty ISP experimenty nebo validační matice sestavené, v rámci OECD/CSNI, pro degradaci AZ nebo termohydrauliku kontejnmentu. Materiálové vlastnosti ovlivňují průběh těžkých havárií, a proto je ve validačních maticích zapotřebí zohledňovat jejich účinky: je možné vybírat experimenty se simulujícími materiály, ale zároveň je důležité volit i experimenty s prototypickými materiály (zejména pro výzkum chování koria. [41, 5]

Úroveň validace Hlavním cílem integrálních výpočtových kódů je poskytnout celkový popis hlavních oblastí týkajících se bezpečnosti (degradace AZ, únik štěpných produktů, *ex-vessel* jevy, odezva kontejnmentu), který by podpořil odhady rozsahu zdrojového členu a těžkohavarijních následků. Z podstaty integrovaného provedení a rychle provedených výpočtů jsou tyto kódy vhodné pro provádění citlivostních studií a analýz neurčitosti. Většina těchto kódů postupně obsahuje stále více mechanistických modelů. Podrobné kódy se nadále využívají k upřesňování odhadnutých následků těžkých havárií, které se vypočítají integrálními kódy. [5] Hodnocení hlavních integrálních kódů a výměna informací mezi různými uživate-

li probíhá každoročně v rámci setkání konkrétní uživatelské komunity, například MCAP (*MELCOR Code Assessment Program*) pro hodnocení kódu MELCOR, vyvíjeného SNL a mezinárodními partnery, vedené US NRC a další. [5]

2. Experimenty typu QUENCH a výpočtový kód MELCOR

Experimentální *out-of-pile* program QUENCH, prováděný v KIT, má za cíl zkoumat výsledky zaplavení odkryté AZ (zejména její poškození a zdrojový člen vodíku), fyzikálně-chemické chování přehřátých palivových elementů v průběhu různých podmínek zaplavení a vytvořit databázi pro vývoj a validaci modelů zaplavení a s ním souvisejících modelů těžkohavarijních výpočtových kódů (integrální svazkové experimenty jsou doplněny rozsáhlým programem SET, který se využívá i pro validaci výpočtových kódů). [16] Z důvodu nízké úrovně poznání jevů odehrávajících se v průběhu znovuzaplavení AZ se další parametry ve většině těžkohavarijních výpočtových kódů neuvažují nebo se modelují pouze zjednodušeným způsobem. V rámci experimentálního programu QUENCH probíhá mezinárodní spolupráce s institucemi Evropské unie i CSARP US NRC. [16] Díky svazkovým QUENCH experimentům došlo ke zlepšení fenomenologického poznání chování palivových elementů v průběhu časně fáze těžkohavarijních sekvencí a rozšíření databáze pro validaci těžkohavarijních výpočtových kódů. [18]

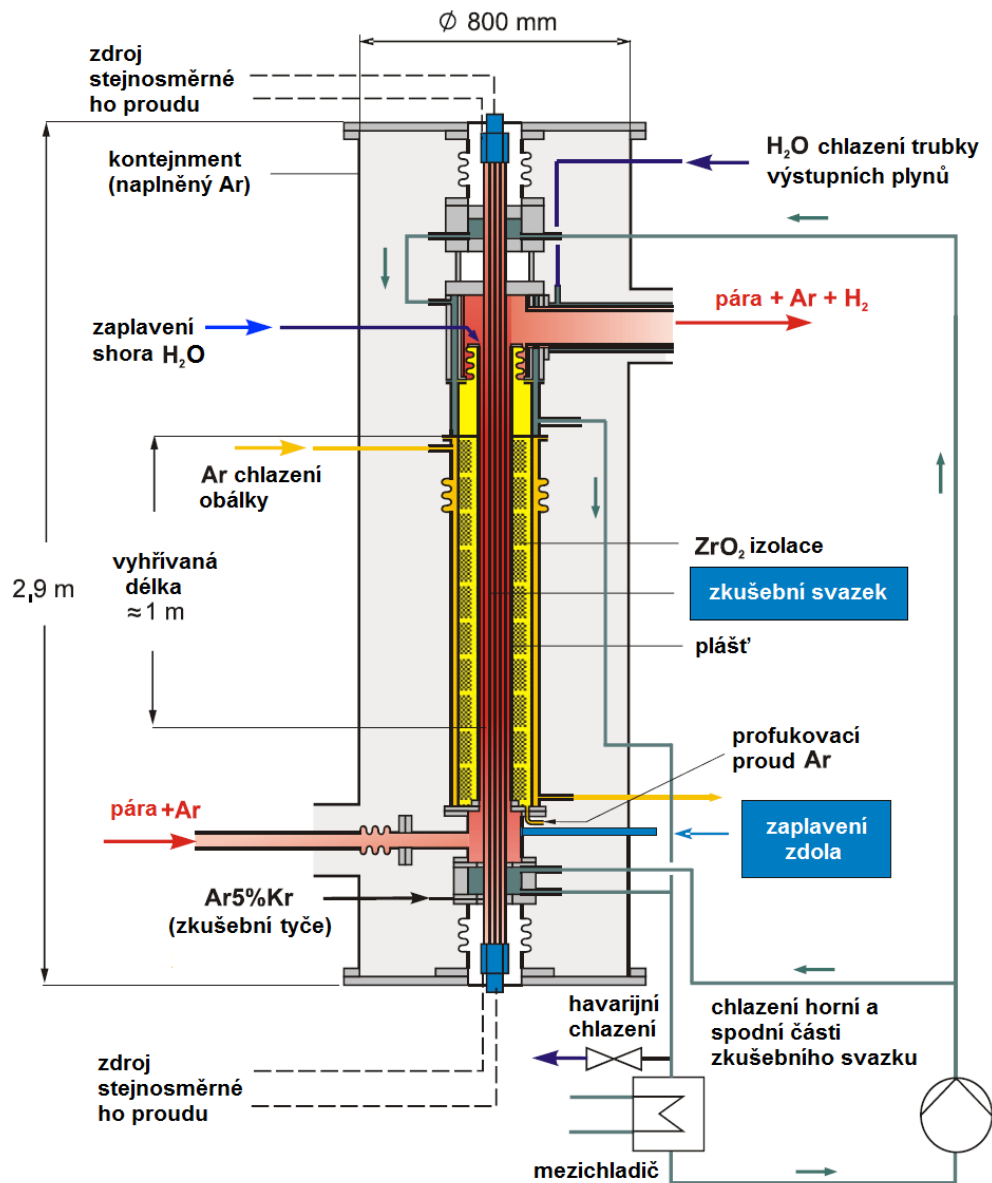
2.1 Popis experimentálního zařízení QUENCH

Svazkové experimenty typu QUENCH probíhají v testovacím zařízení velkého měřítka. Jeho hlavní složkou je testovací úsek se zkušebním svazkem (schéma experimentálního zařízení viz Obrázek 2.1 a Příloha 4.6). Z parogenerátoru a přehříváku proudí přehřátá pára, která vstupuje spolu s argonem, jako nosným plynem, do spodní části zkušebního svazku. Argon, nespoteřbovaná pára a vodík, uvolněný z reakce zirkonia s párou, vystupují z horní části zkušebního svazku a proudí ve vodou chlazené trubce výstupních plynů a směrem do kondenzátoru, kde se pára odděluje od nekondenzovatelných plynů, argonu a vodíku. Tlak v testovacím úseku je $\sim 0,2$ MPa. Testovací úsek má ve spodní části oddělený vstup pro vstříkování vody během zaplavení. [61, 16]

Zkušební svazek typu PWR, který vystupuje v obou níže rozebíraných experimentech, se standardně skládá z 21 vyhříváných a nevyhříváných simulátorů palivových tyčí o délce přibližně 2,5 m (viz Příloha 4.6). ¹ Vyhříváná délka palivových

¹ Geometrie zkušebního svazku a velká část jeho součástí (palivové pokrytí, distanční mřížky) jsou prototypy PWR.

tyčí je 1 024 mm. Elektrické vyhřívání zajišťují odporové dráty z wolframu o průměru 4 nebo 6 mm, umístěné ve středu tyčí. Wolframové dráty jsou prostřednictvím molybdenových a měděných elektrod spojeny s kabely vedoucími ke zdrojům stejnosměrného proudu. Celkový tepelný výkon (70 kW) je rozdělen do dvou prstenců vyhříváných tyčí.² Centrální tyč je nevyhřívána a slouží pro instrumentaci nebo jako tyč absorberu neutronů. [65, 70]



Obrázek 2.1: Schema experimentálního zařízení QUENCH. [27]

Simulátory palivových tyčí jsou zajištěny ve své poloze pěti distančními mřížkami (čtyři jsou vyrobeny ze Zry-4 a jedna spodní je z Inconelu). Wolframové

²První prstavec tvoří 8 vnitřních tyčí a druhý 12 vnějších tyčí. Obvyklé rozdělení elektrického výkonu je 35 kW do vnitřního prstence palivových tyčí a 35 kW do vnějšího prstence. [15]

dráty vyhřívaných tyčí jsou obklopeny anulárními peletami ze ZrO_2 , které simulují palivové pelety.³ Vyhřívané tyče jsou naplněny heliem a směsí argonu a kryptonu (dříve pouze argonem) o tlaku $\sim 0,22$ MPa. Díky tomu je možné pomocí hmotnostního spektrometru odhalit selhání zkušební tyče. Pro zlepšení termohydrauliky zkušební svazku jsou v jeho rozích umístěny čtyři zircaloyové tyče (o průměru 6 mm). Pro určení tloušťky oxidického povlaku v průběhu jednotlivých fází (až do fáze zaplavení) je lze během experimentu z palivového svazku vytáhnout.⁴ [61, 16]

Chladicí komora dolní části palivových tyčí je zespoda i shora ohraničena těsnicí deskou z nerezové oceli. V horní části palivových tyčí je chladicí komora zespoda ohraničena těsnicí deskou z Al_2O_3 , která zároveň slouží i jako tepelný štít, a její horní část tvoří izolační deska z plastu. [27] Zkušební svazek je obklopen zircaloyovým pláštěm o tloušťce 2,38 mm a dále izolací o tloušťce 37 mm, sahající k hornímu konci vyhřívané oblasti, která je vytvořena z vláken ZrO_2 a kterou proudí argon. Za izolací následuje dvouplášťová chladicí obálka z nerezové oceli, sahající k hornímu konci testovacího úseku. Mezikruží chladicí obálky, o šířce 6,7 mm, je v rozmezí od horního konce testovacího úseku až do horního konce vyhřívané oblasti chlazeno protiproudem vody a v rozmezí od horního konce vyhřívané oblasti do dolního konce palivového svazku chlazeno protiproudem argonu.⁵ Zkušební svazek je vybaven množstvím zapouzdřených termočlánků připevněných k palivovému pokrytí (36 termočlánků) v až čtyřech odlišných pozicích na 17 různých výškových úrovních mezi -250 a 1350 mm. Termočlánky připevněné na povrchu pláště (22 termočlánků) a dvojité chladicí obálky (25 termočlánků) jsou umístěny ve výškových úrovních -250 a 1250 mm (část z nich je speciálně navržena pro vysoké teploty). Testovací úsek je dále vybaven různými manometry, měřiči průtoku a hladiny. Produkce vodíku, páry a uvolňování dalších plynných produktů se analyzuje dvěma odlišnými hmotnostními spektrometry umístěnými na dvou různých pozicích zkušebního obvodu: jeden za testovacím úsekem (vzorkovací pozice - trubka výstupných plynů, ve vzdálenosti přibližně 2 m od výstupu ze svazku) a další po směru proudění za kondenzátorem. [65, 70]

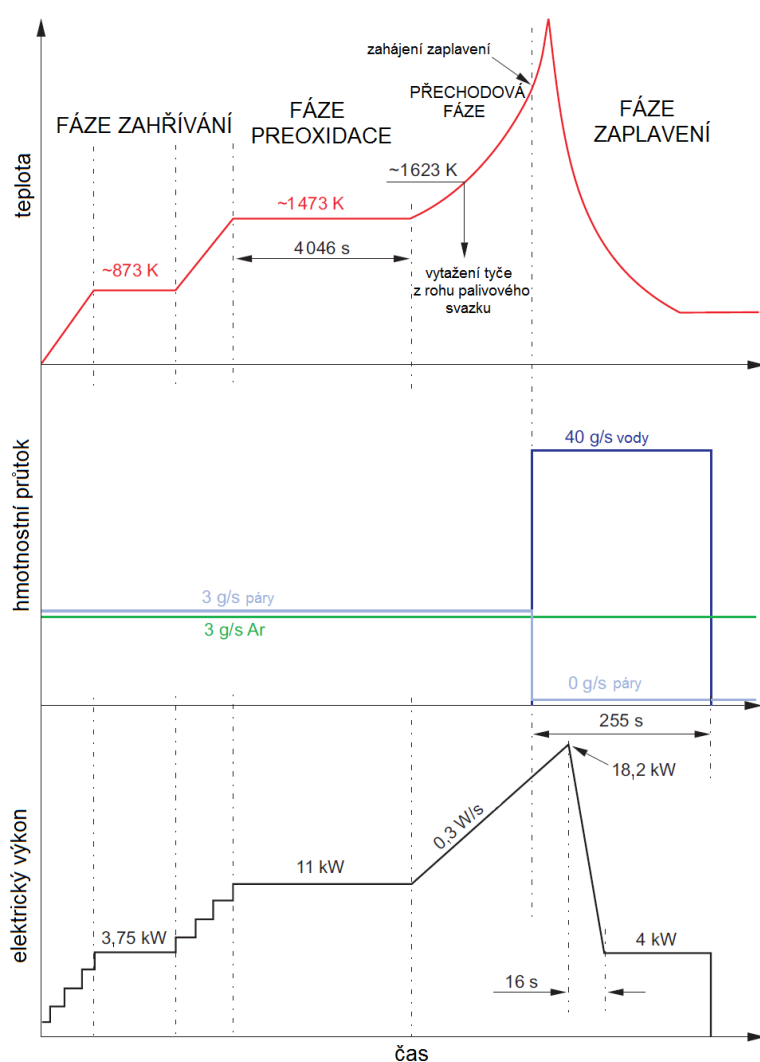
³ ZrO_2 má podobné termofyzikální a chemické vlastnosti jako UO_2 .

⁴Obvykle se vytahuje pouze jediná z nich a zbylé tři slouží pro instrumentaci.

⁵Tato oblast je chlazena vodou a není obklopena izolací, aby se v ní zabránilo dosažení příliš vysokých teplot palivového svazku.

2.2 Obecný průběh experimentu typu QUENCH

V první části experimentu lze po fázi zahřívání zařadit fázi preoxidace, při které testovacím úsekem proudí směs argonu a přehřáté páry (každá složka o hmotnostním průtoku 3 g/s) o konstantní teplotě obvykle v rozmezí 1 623 - 1 723 K, která je řízena elektrickým výkonem palivového svazku. Zahrnutím této fáze (v závislosti na délce jejího trvání) se další průběh experimentu spíše než scénáři reaktorové havárie blíží havarijnímu scénáři bazény skladování použitého paliva. V následující přechodové fázi při konstantním průtoku plynné směsi roste rychlost ohřevu palivového svazku z počáteční hodnoty 0,1 K/s na $\sim 0,4$ K/s. [65, 16]



Obrázek 2.2: Obecný průběh experimentu typu QUENCH (QUENCH-06). [30]

Další nárůst teploty palivového svazku závisí na rozvoji exotermické reakce zirkonia s vodní párou, která má za následek teplotní výkyv obvykle se projevující ve výškové úrovni palivového svazku 850 - 950 mm při dosažení teploty ~ 1773 K. Toto vychýlení teploty vede k maximální teplotě palivového svazku a zvýšené produkci vodíku. Až do fáze zaplavení proudí testovacím úsekem směs argonu a vodní páry. Před zaplavením se zastaví průtok přehřáté páry. Průtok argonu je pouze přesměrován do horní části testovacího úseku, kde pokračuje jako nosný plyn pro systémy analýzy vodíku i během fáze zaplavení. Jakmile teploty palivového svazku dosáhnou stanovené úrovně, dojde k zahájení fáze zaplavení vstříkáním vody o hmotnostním průtoku 15 - 50 g/s. ⁶ Přibližně 20 s po začátku zaplavení se elektrický výkon palivového svazku sníží z maximální hodnoty ~ 20 kW na 4 kW a simuluje zbytkový výkon. Hmotnostní průtok chladiva je udržován konstantní až do doby, kdy teplota palivového svazku dosáhne $\sim 400 - 500$ K. [65, 16]

Experiment	Chladivo a hmotnostní průtok při vstříkávání [g/s]	Teplota před začátkem zaplavení [K]* ⁷	Maximální oxidického povlaku před přechodovou fází/zaplavením [μm]*	tloušťka povlaku po ukončení experimentu*	Průměrná tloušťka oxidického povlaku po ukončení experimentu*	Množství uvolněného vodíku před/během zaplavení [g]	Poznámky
QUENCH-01 26/02/1998	voda 52	1 830	312/data nejsou k dispozici		500	36/3	Projekt COBE: částečná fragmentace preoxidovaného palivového pokrytí
QUENCH-02 07/07/1998	voda 47	2 400	data nejsou k dispozici/data nejsou k dispozici		kompletně zoxidované	20/140	Projekt COBE: bez dodatečné preoxidace, zaplavení za vysokých teplot
QUENCH-03 20/01/1999	voda 40	2 350	data nejsou k dispozici/data nejsou k dispozici		kompletně zoxidované	18/120	zpožděné zaplavení po 240s od začátku růstu teploty
QUENCH-04 30/06/1999	pára 50	2 160	82/data nejsou k dispozici		280	10/2	chování lehce preoxidovaného palivového pokrytí při chlazení formou vstříkování syté páry
QUENCH-05 29/03/2000	pára 48	2 020	160/data nejsou k dispozici		420	25/2	chování preoxidovaného palivového pokrytí při chlazení formou vstříkování syté páry
QUENCH-06 13/12/2000	voda 42	2 060	207/300		630	32/4	ISP-45, predikce zdrojového členu vodíku různými výpočtovými kódy
QUENCH-07 25/07/2001	pára 15	2 100	230/data nejsou k dispozici		kompletně zoxidované	66/120	Projekt COLOSS: dopad selhání tyče z B ₂ C na produkci vodíku, oxidu uhelnatého, oxidu uhličitého a metanu
QUENCH-08 24/07/2003	pára 15	2 090	274/data nejsou k dispozici		kompletně zoxidované	46/38	Referenční experiment k QUENCH-07 bez použití tyče z B ₂ C
QUENCH-09 03/07/2002	pára 49	2 100	data nejsou k dispozici/data nejsou k dispozici		kompletně zoxidované	60/400	Projekt COLOSS: dopad selhání tyče z B ₂ C na produkci vodíku, oxidu uhelnatého, oxidu uhličitého a metanu za podmínek nedostatku páry
QUENCH-10 21/07/2004	voda 50	2 200	514/613		kompletně zoxidované	48/5	Projekt LACOMERA-QUENCH-01: havárie kontejneru na skladování použitého paliva s přístupem vzduchu
QUENCH-11 08/12/2005	voda 18	2 040	data nejsou k dispozici/170		kompletně zoxidované	9/132	Projekt LACOMERA-QUENCH-02: experiment s vypařováním s následným zaplavením
QUENCH-12 27/09/2006	voda 48	2 100	160/300		kompletně zoxidované	34/24	Projekt ISTC-1648.2: fyzikálně-chemické chování palivového pokrytí VVER z E110 během zaplavení
QUENCH-13 07/11/2007	voda 52	1 820	data nejsou k dispozici/400		750	42/1	SARNET, tyč s absorberem neutronů z AgInCd, aerosol
QUENCH-14 02/07/2008	voda 41	2 100	170/470		900	35/5	Řada ACM, palivové pokrytí z materiálu M5
QUENCH-15 27/05/2009	voda 48	2 100	145/380		630 (74 % kovu přeměno na vnější oxidický povlak)	41/7	Řada ACM, palivové pokrytí z materiálu Zirlo
QUENCH-16 27/07/2011	voda 53	1 870	135/135		1 075	144/128	Projekt LACOMECO, přístup vzduchu
QUENCH-17 31/01/2013	voda 10	1 800	kompletně zoxidované		kompletně zoxidované	110/1	SARNET-2, vznik trosk a uchlazenost

Tabulka 2.1: Matice QUENCH experimentů s hodnotami jejich hlavních parametrů. [62, 16]

⁶V několika experimentech se namísto vody použila sytá (studená) pára.

2.3 Experimenty QUENCH-01 a QUENCH-06

V další kapitole je popisována modifikace vstupního souboru výpočtového kódu MELCOR z experimentu QUENCH-01 na experiment QUENCH-06. Je proto vhodné oba experimenty detailněji představit.

Experimenty QUENCH-01 i QUENCH-06 byly zaměřeny na zkoumání zdrojového členu vodíku během zaplavení při různých okrajových podmínkách. Jednalo se o „ryzí“ experimenty se zaplavením, ve kterých nefigurovaly žádné absorbery neutronů ani jiné typy atmosféry (například vzduch) než vodní pára. Před přechodovou fází proběhla i fáze preoxidace při teplotách 1 400- 1 500 K za účelem simulovat větší míru oxidace v pozdější fázi těžkohavarijního scénáře. Teploty palivového svazku před začátkem zaplavení se pohybovaly mezi 1 800 a 2 150 K. Fáze zaplavení proběhla vstříkáním vody o hmotnostním průtoku 40 - 50 g/s do spodní části testovacího úseku, což odpovídalo rychlosti růstu vodní hladiny $\sim 1,5$ cm/s bez zahrnutí vypařování. Po začátku fáze zaplavení došlo k úspěšnému zchlazení palivového svazku, před kterým proběhlo pouze pár relativně malých a krátkých teplotních výchylek doprovázených produkcí 2 - 4 g vodíku. [70, 18]

2.3.1 Průběh experimentu QUENCH-01

Mezi dvěma fázemi ohřevu byla vložena fáze při teplotě $\sim 1\ 000$ K, ve které byla do testovacího úseku vstříkována malá množství helia pro zjištění časového zpoždění přesunu vodíku k hmotnostním spektrometrům. Preoxidační fáze probíhala po dobu 8 280 s při maximálních teplotách přibližně 1 400- 1 600 K. Jak se zjistilo po vytažení jedné z tyčí z rohu palivového svazku v čase $\sim 6\ 000$ s, byla tloušťka oxidického povlaku v oblasti nejvyšších teplot (ve výšce 900 mm) na konci preoxidační fáze $300\ \mu\text{m}$. Ohřev rychlostí 0,5 K/s v průběhu přechodové fáze způsobil dosažení maximální teploty před fází zaplavení ($\sim 1\ 870$ K, extrapolovaná hodnota ve výšce 950 mm). [15] Během fáze zaplavení došlo nejprve k zaplnění dolní směšovací komory vstříkáním vody o vysokém hmotnostním průtoku 80 g/s (celkem 2,4 l vody) po dobu ~ 25 s. [65] Poté byl v průběhu 15 s redukován elektrický výkon palivového svazku z ~ 20 kW na 4 kW a hmotnostní průtok vody byl rovněž snížen na 52 g/s po dobu dalších 89 s (celkem 4,6 l vody). Během zaplavení došlo k rovnoměrnému chlazení bez výraznějších teplotních výkyvů. [15]

Během preoxidace bylo uvolněno největší množství vodíku (celkové množství 30 g o hmotnostním průtoku 3 - 4 mg/s). V průběhu přechodové fáze a fáze zaplavení se uvolnilo dalších 8 g vodíku (o hmotnostním průtoku 80 mg/s). Profil

absorbovaného vodíku měl podobný charakter jako axiální rozdělení tloušťky oxidického povlaku (maximum mezi výškovou úrovní 900 a 1 000 mm). Maximální množství absorbovaného vodíku bylo ~ 5 atomových %, což se dle fázového diagramu Zr-H blíží hodnotě saturace vodíku v α -Zr. Z extrapolace dat vyplynulo, že v palivovém svazku se absorboval přibližně 1 g vodíku, což tvoří pouhé 3 % z celkového množství vodíku, uvolněného během experimentu. V průběhu experimentu nedošlo k žádnému tavení materiálů. Oxidický povlak vytvořený během preoxidace zabránil větším teplotním výchytkám. Intenzivní míra oxidace palivového svazku způsobila zejména v oblasti mezi výškovými úrovněmi 700 a 1 100 mm šedavou barvu oxidického povlaku a několik velkých prasklin (viz Obrázek 2.3). Centrální nevyhřívaná tyč se na několika místech proděravěla a pelety z ní vypadaly ven. V průběhu experimentu došlo ke zničení zircaloyové distanční mřížky na výškové úrovni 1 050 mm. Plášť zůstal netknutý. [27, 15]



Obrázek 2.3: Porušení pokrytí palivových tyčí ve výškové úrovni 900 mm. [27]

2.3.2 Průběh experimentu QUENCH-06

Experiment QUENCH-06 má čtyři fáze (viz Obrázek 2.2): fázi zahřívání (0 až $\sim 2\,000$ s), fázi preoxidace ($\sim 2\,000$ až $\sim 6\,000$ s), přechodovou fázi ($\sim 6\,000$ až $\sim 7\,200$ s) a fázi zaplavení (od $\sim 7\,200$ do $\sim 7\,500$ s). Ještě před fází zahřívání se palivový svazek postupným růstem elektrického výkonu připravil z teploty 297 K na teplotu 873 K, na které byl po dobu 2 hodin stabilizován při elektrickém výkonu ~ 4 kW.⁸ Během fáze zahřívání byla postupným růstem elektrického výkonu na hodnotu přibližně 10,5 kW dosažena odpovídající teplota preoxidace (1 473 K). Maximální tloušťka oxidického povlaku během fáze preoxidace byla stanovena na $\sim 200\ \mu\text{m}$. V průběhu přechodové fáze byl elektrický výkon zvyšován rychlostí 6 W/s a rovněž došlo k vytažení jedné z tyčí z rohu palivového svazku. Mezi výškovou úrovní 750 a 950 mm proběhl v této fázi mírný teplotní výkyv, který vedl k podstatnému zvýšení produkce vodíku. Maximální teploty (2 150 K) bylo dosaženo ve výškové oblasti 750 mm právě v čase zaplavení. K iniciaci fáze zaplavení došlo po splnění dvou podmínek: minimálně tři termočlánky umístěné na pokrytí palivových tyčí přesáhly teplotu 1 973 K a zároveň termočlánek umístěný v centrální nevyhřívané tyči dosáhl teploty $\sim 1\,873$ K. K této shodě došlo v čase 7 179 s, kdy byl zároveň zastaven přívod přehřáté páry a průtok argonu byl přesměrován do horní části testovacího úseku. Spodní část testovacího úseku byla v průběhu dalších 5 s zaplavena 4 l vody a čerpadlo do ní začalo souběžně dodávat vodu o hmotnostním průtoku 42 g/s. Po 26 s od začátku fáze zaplavení se během 16 s elektrický výkon zredukoval z 18,2 kW na 4 kW. Chlazení testovacího úseku bylo ukončeno po 250 s od jeho začátku. [11, 30]

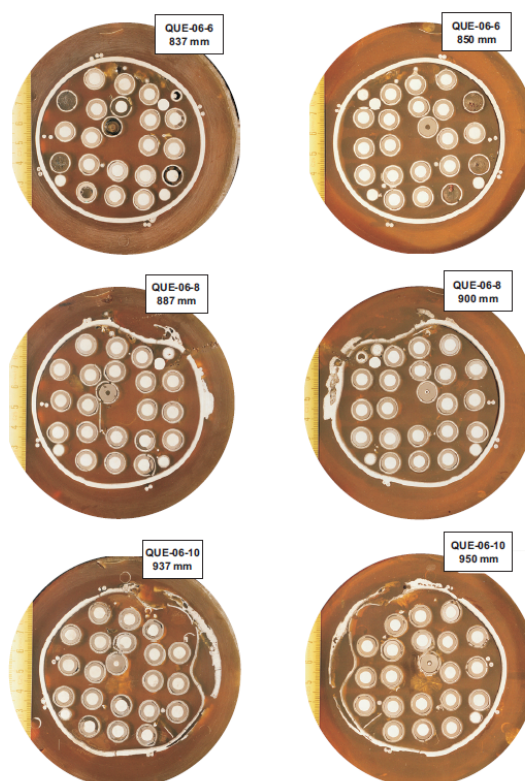
Před zaplavením palivového svazku se uvolnilo 33 g vodíku (maximální hmotnostní průtok byl 240 mg/s). V průběhu zaplavení k nim přibyly další ~ 4 g vodíku. Množství absorbovaného vodíku je srovnatelné s experimentem QUENCH-01. Do výškové úrovně ~ 850 mm se palivový svazek jevil jako celistvý, bez výrazného poškození (plášť byl mírně zoxidovaný). V oblasti mezi výškovými úrovněmi ~ 879 a $\sim 1\,010$ mm však došlo k lokálnímu tavení zircaloyového pláště, které bylo způsobeno praskáním a fragmentací palivového pokrytí i pelet ze ZrO_2 během zaplavení (viz Obrázky 2.4 a 2.5). Oxidace zbytkové kovové části pokrytí pokračovala i v jeho tavenině. Tavenina části pláště pronikla i do prostoru izolace mezi vlákna ZrO_2 . Dle tloušťky oxidického povlaku byla větší míra oxidace způsobena proniknutím páry do vnějších částí testovacího úseku (oblasti vně pláště). K selhání prvních

⁸Výpočet kódu MELCOR začíná až fází zahřívání palivového svazku.

palivových tyčí i pláště (nafouknutí a následné prasknutí) došlo na začátku fáze zaplavení. [25, 30]



Obrázek 2.4: Stav pláště na horním konci vyhřívané oblasti po ukončení testu. [30]



Obrázek 2.5: Průřezí palivového svazku na výškových úrovních 837-950 mm (sloupec vlevo - pohled zespodu, sloupec vpravo - pohled shora). [30]

2.4 Výpočtový kód MELCOR a jeho využití pro simulace experimentů

MELCOR (*Methods for Estimation of Leakages and Consequences of Releases*) je plně integrovaný výpočtový kód, který modeluje průběh těžkých havárií v LWR od iniciační události přes odhalení a poškození AZ, uvolnění a přesun štěpných produktů přes RCS a kontejnment a jejich únik do životního prostředí. [22] Jeho vývoj probíhá od roku 1982 v SNL za podpory US NRC. Je nástupcem sady programů STC (*Source term code*) vyvíjenou US NRC v 70. letech 20. století. V roce 1986 byl poprvé vydán v USA a na mezinárodním poli se objevil v roce 1989. Od té doby vzniklo několik verzí tohoto programu (aktuálně nejnovější verze je 2.1, ale výpočty této práce byly provedeny ve verzi 1.8.6). Jeho vývoj ovlivňuje účast mnoha mezinárodních partnerských institucí v rámci Kooperativního programu výzkumu těžkých havárií (*Cooperative Severe Accident Research Program, CSARP*) či MCAP pod záštitou US NRC. MELCOR se v současné době využívá přibližně ve 100 institucích ~25 zemí světa. Primárně byl určen pro BWR, ale záhy se oblast jeho působnosti rozšířila i na PWR a v současné době je aplikován i na jiné druhy reaktorů (například VVER) a jiné než reaktorové scénáře (bazény skladování použitého paliva, prostory manipulace s aktivními materiály). [22, 5] Přehled částí experimentů z validační matice výpočtového kódu MELCOR je uveden v Tabulce 2.2.

Cílem integrálních kódů, včetně kódu MELCOR, je vytvoření celkové těžkohavarijní analýzy s dostatečně přesnými odhady časových průběhů událostí a následků pro JE nebo pro životní prostředí. Primární je, aby poskytovaly co nejpřesnější predikce zdrojového členu a umožnily provádění PSA 2. úrovně k předpovědím rizik těžkohavarijních scénářů. Pro aplikaci integrálních kódů na reálné havarijní sekvence je zapotřebí, aby modely zachycovaly účinky zásadních fyzikálních jevů.⁹ Musí být schopny simulovat všechny havarijní systémy, které se navrhují (sprchy, chladič ventilátory), i kroky operátorů, které ovlivňují průběh těžké havárie. [5]

Termohydraulické modely kódu MELCOR jsou společné pro celý kód a využívají se jak pro RCS, tak pro kontejnment. Způsob formulace diskretizovaných rovnic hydrodynamiky kontroluje zachování energie a hmoty do vysokého stupně přesnosti. Metoda numerického řešení je založena na semi-implicitním řešení rovnic a časový krok se odvíjí od Courantovy podmínky pro stabilitu výpočtu. Uzavírací

⁹Integrální kódy popisují téměř všechny jevy těžkých havárií, kromě obecných parních explozí a mechaniky konstrukcí kontejnmentu.

Fyzikální děj	Název programu	Organizace (stát)
Integrální experimenty	havárie TMI-2	-
	LOFT/LP-FP-2	INL (USA)
	Phébus FP (včetně B9/ISP-28 a FPT1/ISP-46)	IRSN (Francie)
Termohydraulika RCS	BETHSY (6.9C/ISP-38)	CEA (Francie)
Poškození AZ	CORA (13/ISP-31)	KIT (Německo)
	QUENCH (06/ISP-45, 11)	KIT
Uvolnění štěpných produktů	ORNL (VI)	ORNL (USA)
	VERCORS	CEA
Přesun aerosolů v RCS a v kontejnmentu	FALCON	AEAT (UK)
	VERCORS	CEA
	LACE	INL
Mechanické selhání TNR	LHF-OLHF	SNL (USA)
Interakce roztaveného kória s betonem	OECD-MCCI	ANL
	ACE	ANL
Aerosoly a plynné formy jódu v kontejnmentu	ACE/RTF	AECL (Kanada)
Termohydraulika kontejnmentu	NUPEC (M-8-1, M-8-2)	NUPEC (Japonsko)
	VANAM-M3 (ISP-37)	Battelle (Německo)
Spalování vodíku v kontejnmentu	HDR (E11,T31.5,V44)	Battelle

Tabulka 2.2: Část validační matice výpočtového kódu MELCOR. [50, 51]

vztahy spolu s dalšími pomocnými modely, které jsou obecně nelineární, se používají pro výpočet zdrojů, spotřebičů a dalších změn hmoty/energie. Modelování *in-vessel* fáze těžkohavarijních scénářů s sebou nese jednu zvláštnost: na rozdíl od DBA se geometrie v čase neustále mění, například v důsledku postupného tavení, přesunu či vypařování materiálů. Z hlediska numerického řešení fyzikálních rovnic to představuje komplexní problém, který způsobuje zmenšení časového kroku a v nejhorších případech i selhání konvergence řešení. Problémy tohoto druhu obvykle samy kódy zaregistrují a ukončí výpočet. Provedením určitých změn může poté uživatel tyto problémy vyřešit a provést opakovaný výpočet. [5]

Proces znovuzaplavení AZ v MELCORU řeší semi-empirický model šíření chla-

dící fronty, který je dostatečně přesný pro relativně nepoškozenou AZ před počátkem zaplavení. V případě zaplavení poškozené AZ dochází v průběhu oxidace k velkým výkyvům, které jsou způsobeny buď samotným zaplavením vodou či chlazením v páře a které MELCOR obecně nedokáže přesně predikovat, a proto oxidaci za takových podmínek většinou podhodnocuje. [70] Selhání pokrytí v důsledku jeho nafouknutí a prasknutí MELCOR nemodeluje. K posouzení selhání palivového pokrytí se používají dvě kritéria:

1. teplota palivového pokrytí překročí uživatelsky definovanou kritériální teplotu nebo její standardní hodnotu,
2. oxidace či *candling* způsobí ztrátu integrity geometrie palivového pokrytí. [45]

Modelování oxidace palivového pokrytí a dalších součástí AZ ze Zry-4 je založeno na Urbanic-Heidrickových korelacích s tím, že se přijímá diskontinuita v Arrheniově grafu difúzních koeficientů pro hmotnostní přírůstek a růst povlaku ZrO_2 na počátku přechodu z tetragonální na kubickou fázi ZrO_2 (1 853 K). Použitím Urbanic-Heidrickovy korelace při teplotách nižších než 1 853 K však nadhodnocuje rychlost produkce vodíku. Pro oxidaci oceli se využívá Whiteova korelace. Pro modelování oxidace Zry-4 přijímá MELCOR Urbanic-Heidrickova korelace se používá jako standardní model oxidace při všech teplotách. [45, 70, 20]

2.4.1 Struktura kódu MELCOR a průběh výpočtu

Výpočty kódu MELCOR probíhají ve dvou fázích: MELGEN a MELCOR. MELGEN je vstupní procesor, do kterého se zapisuje většina vstupních dat. Zajišťuje kontrolu vstupních dat: syntaktickou (špatný symbol vložený při přípravě vstupního souboru), matematickou a logickou (přirozená čísla, reálná, komplexní, zápis proměnných), shodu (nesprávné výškové úrovně, záporné tlaky, nesprávné propojení komponent). Pokud jsou vstupní data přijata, zapíše předběžné počáteční podmínky do restartovacího souboru. MELCOR pak vyžaduje pouze krátký seznam vstupních dat, zejména časové kroky a parametry provedení výpočtů přechodových událostí pro prováděcí knihovnu EXEC (*executive*). Ve vstupním souboru pro MELCOR lze měnit pouze několik vstupních dat. Spuštění MELCORU vytvoří několik výstupních souborů: diagnostický soubor (.DIA), zobrazující chyby vstupního souboru a výstrahy a uživatel tak na jeho základě ve vstupním souboru může odstranit chyby; výstupní textový soubor (.OUT), binární restartovací soubor

(.RST), soubor grafů (.PTF) a soubor zpráv (.MES) oznamující hlavní události průběhu havárie. [60, 29]

2.4.1.1 Hlavní knihovny využívané při výpočtu experimentu QUENCH-06

Výpočtový kód MELCOR je rozsáhlý program s velkým množstvím programovacích pokynů a *subroutines*, a proto je rozdělen do modulů odpovídajícím částem reaktoru nebo množině jevů, které jsou prostřednictvím daného modulu, který synchronizuje časové kroky, řídí přenos dat a kontroluje zachování hmoty a energie, propojeny. Kromě řídicího modulu tedy MELCOR obsahuje velký počet různých modelových knihoven, jako například knihovnu kontrolních objemů hydrodynamiky (*control volume hydrodynamics*, CVH), spojek (*flow paths*, FL), popisu AZ (*core*, COR), tepelných struktur (*heat structures*, HS), a další. Počet knihoven, který je během výpočtu využit, závisí na řešeném problému. Základní vstupní parametry jsou dány daty v knihovnách CVH, FL a HS, která dohromady vytváří hlavní systém reaktoru s výjimkou AZ, jejíž data rozměrů a struktury se specifikují v knihovně COR. Různé vstupní záznamy jsou určeny identifikátorem knihoven kódu MELCOR (jako například CV pro CVH) následovaným číslem komponenty a identifikátorem typu záznamu. [8, 29, 5]

V případě experimentů typu QUENCH je nodalizace AZ (viz Příloha 4.6) tvořena dvourozměrnou osově souměrnou geometrií, obsahující 4 radiální prstence a 30 axiálních úrovní (91 buněk knihovny COR).¹⁰ Nodalizace experimentálního zařízení QUENCH dále obsahuje: 43 kontrolních objemů knihovny CVH, 33 spojky knihovny FL a 48 tepelných struktur knihovny HS (z toho 33 z nich spadá do kategorie hraničních tepelných struktur (*boundary heat structures*, BHS)).

Kontrolní objemy hydrodynamiky MELCOR je nodální kód a rovnice zachování hmoty a energie jsou tak řešeny pro každý kontrolní objem, který je pomocí CVH definován (všeobecný kontrolní objem pro TNR, primární i sekundární systém, kontejnment). Je to rovněž kód soustředěných parametrů, který používá jedno-rozměrné modelování kontrolních objemů hydrodynamiky. Termodynamické vlastnosti jsou soustředěny do jednoho bodu každého kontrolního objemu, ve kterém se považují za konstantní. Prostorová geometrie je ve vstupním souboru popsána v souřadnicích objem/výška (viz například Obrázek 3.1 v následující kapitole Modifikace vstupního souboru). V každém objemu může zároveň existovat část

¹⁰Jak je patrné i z Přílohy 4.6, bývá nodalizace AZ obvykle detailnější než nodalizace hydrauliky.

pool (kapalina) a část *atmosphere*, která se může skládat z páry a několika nekondenzovatelných plynů. Dvoufázové modely umožňují existenci parních bublin v kapalině a vodních kapiček, mlhy (*fog*), v atmosféře. Pokud je zvolena možnost nerovnovážné termodynamiky, mohou panovat v kapalině i atmosféře různé teploty a fázové podmínky. [44, 60, 29]

Popis chování aktivní zóny Tato knihovna vyhodnocuje chování paliva a dalších struktur AZ a dolní směšovací komory, které dotváří prostor a mohou se v průběhu havárie tavit a přesunovat. V tomto případě tak v MELCORu vytváří „virtuální objem“, který, v případě, že zmizí, uvolní místo pro tekutinu, nebo pokud se přesunuje, může tím zmenšit průtočnou plochu jiného objemu. V knihovně COR se kromě paliva, pokrytí a pláště rozlišují rovněž dva typy konstrukcí: nosné struktury (*supporting structures*, SS) a nenosné struktury (*non-supporting structures*, NS). NS jsou schopny nést pouze samy sebe a kritéria jejich selhání jsou jejich kritická tloušťka a standardní, nebo zadaná, teplota tavení. SS nenesou jenom samy sebe, ale i další struktury v kontrolním objemu nad nimi. [44, 29]

Spojky Tato knihovna spolu s CVH vyhodnocuje toky hmoty a energie mezi kontrolními objemy. Definuje spojky (plochu, délku, a další), tlakové ztráty (koncentrované a rozložené), popisuje spojky (rozhraní mezi objemy). MELCOR je rovněž schopen zachytit okamžik otevření spojky způsobené strukturálním selháním. [44, 60, 29]

Tepelné struktury Tepelné struktury představují fyzikální a tepelné ohraničení hydraulického systému. Tato knihovna modeluje jejich tepelnou odezvu, přenos hmoty a tepla mezi nimi a *pools* a *atmospheres* obsaženými v kontrolních objemech. Pracuje s vedením tepla, kondenzací, prouděním a sáláním. V průběhu těžkohavarijního scénáře mohou být v důsledku termomechanického zatížení odstraněny nebo selhat. [44, 29]

Další knihovny Knihovna EDF (*external data files*) řídí čtení a zápis velkých externích souborů s daty a umožňuje s nimi komunikovat data k časovému průběhu scénáře. Knihovna CF (*control functions*) hodnotí uživatelsky definované kontrolní funkce a používá je pro definici nebo řízení různých částí výpočtu, jako například definice nových proměnných, které mohou být zobrazeny v grafech, otevírání a zavírání ventilů spojek, spouštění havarijních systémů a další. Knihovna TF (*tabular*

functions) vyhodnocuje uživatelem vybrané tabulární funkce k definování nebo řízení různých částí výpočtu jako například přechodové události, zdroje hmoty a energie, integrální zbytkové teplo a další. Data fyzikálních vlastností materiálů jsou uložena v databázi kódu MELCOR, ale data pro nové materiály mohou být rovněž dodatečně definována v rámci knihovny MP (*material properties*). Číselné označení 1 až 3 je vyhrazeno vodě jako kapalině (1), mlze (2) a páře (3). Čísla ≥ 4 se používají pro nekondenzovatelné plyny. Jejich přiřazení ke konkrétním číslům se zadává ve speciálním vstupu pro nekondenzovatelné plyny NCG (*noncondensable gas*). [44, 60, 29]

3. Modifikace vstupního souboru pro experiment QUENCH-06

Při modifikaci vstupního souboru pro experiment QUENCH-06 se vychází ze vstupního souboru pro experiment QUENCH-01. Proto je na úvod vhodné připomenout některé rozdíly, které vyplývají z popisu obou experimentů uvedeném v předcházející kapitole. Delší fáze preoxidace QUENCH-01 měla za následek větší tloušťku oxidického povlaku a následně nižší teploty při začátku zaplavení než v případě QUENCH-06. Palivový svazek byl v případě QUENCH-01 zaplavován vyšším hmotnostním průtokem vody než při QUENCH-06. Tyto rozdíly ukazují na odlišné počáteční a okrajové podmínky, které byly v obou experimentech nastaveny (celkový souhrn okrajových podmínek je uveden v Tabulce 3.1).

Okrajová podmínka	Data poskytnutá FZK
Teplota	21 termočlánků na vnitřní stěně vnějšího pláště chladicí obálky
Průtok (hmotnostní průtok a teplota)	pára
	argon
	chladicí voda
Vývin tepla	vstupní elektrický výkon palivového svazku

Tabulka 3.1: Okrajové podmínky pro experiment QUENCH-06. [46]

V následující části je uveden popis konkrétních změn provedených při modifikaci vstupního souboru pro experiment QUENCH-06.

3.1 Kontrolní objemy hydrodynamiky (CVH)

Ve vstupech této knihovny bylo provedeno několik změn většího či menšího významu. Při studiu jednotlivých vstupních záznamů došlo u vstupu CV(201 až 207)B2 k identifikaci nepřesnosti v hodnotě exponentu ve vyjádření objemu pro výškovou hladinu 1,45235 m pro kontrolní objemy CV201 až CV207 (viz Obrázky 3.1 a 3.2).

```

**** Off-gas Tube CVs
*
CV20100 '1st Off-gas' 2 1 1 * non-eq., horiz. fl., sources
CV20101 0 0 * pool for allowed, active
CV20102 0.0 0.0 * no initial velocities
CV20103 1.300909E-02 * Flow area from D=0.1287 m
CV201A0 3 * Separate pool and atmosphere input
CV201A1 ZPOL 1.32365 * no pool
CV201A2 PVOL 2.0E+5 * initial pressure 2 bar
CV201A3 MLFR.10 1.0E+00 * Molar Fraction of AR
CV201A4 PH2O 0.0E+00 * Partial Pressure of Steam
CV201A5 TATM 700.0 * in K
CV201B2 1.45235 5.763028E+00 * in m and m3 - top
CV201B1 1.32365 0.000000E+00 * in m and m3 - bottom

```

Obrázek 3.1: Původní vstup CV201B2 z QUENCH-01.

```

**** Off-gas Tube CVs
*
CV20100 '1st Off-gas' 2 1 1 * non-eq., horiz. fl., sources
CV20101 0 0 * pool for allowed, active
CV20102 0.0 0.0 * no initial velocities
CV20103 1.300909E-02 * Flow area from D=0.1287 m
CV201A0 3 * Separate pool and atmosphere input
CV201A1 ZPOL 1.32365 * no pool, 1.388-0.5*0.1287
CV201A2 PVOL 2.0E+5 * initial pressure 2 bar
CV201A3 MLFR.10 1.0E+00 * Molar Fraction of AR
CV201A4 PH2O 0.0E+00 * Partial Pressure of Steam
CV201A5 TATM 700.0 * in K
CV201B2 1.45235 5.763028E-03 * in m and m3 - top, 1.388+0.5*0.1287; (1.300909E-02)*0.443
CV201B1 1.32365 0.000000E+00 * in m and m3 - bottom, 1.388-0.5*0.1287

```

Obrázek 3.2: Změněný vstup CV201B2 pro QUENCH-06.

Z informací uvedených ve specifikační zprávě k experimentu QUENCH-06 rovněž vyplynulo, že meziprostor mezi trubkou výstupních plynů a jejím vodním chlazením je vyplněn stagnantním vzduchem. [46] V původním vstupu je však uveden stagnantní vodík, který je v tomto případě ve vstupu NCG označen pod číslem 4. Pro kontrolní objemy CV601 až CV607, tak byl vstup CV(601 až 607)A3 změněn a navíc byl přidán CV(601 až 607)A6 tak, aby bylo možné modelovat vzduch jako směs 71 % dusíku a 21 % kyslíku (viz Obrázky 3.3 a 3.4).

Na základě dat měření z FZK byly změněny počáteční teploty (například CV020A5 TATM) pro kontrolní objemy CV020, CV030, CV125, CV126, CV132, CV129, CV130 a CV131. Toto upřesnění hodnot zmenšilo výchyly průběhu teplot po spuštění výpočtu. V rámci QUENCH-01 probíhala první fáze zahřívání ve srovnání s ostatními fázemi experimentu, až do zaplavení s jiným poměrovým složením paroplynné směsi (vodní pára + argon). Pro experiment QUENCH-06 tak bylo nutné provést přepoččet parciálního tlaku vodní páry na vstupu kontrolního objemu, který představuje zdroj páry a argonu, CV010A3 PH2O zohledňující konstantní poměrové složení směsi argonu a vodní páry v celém průběhu experimentu až do zaplavení vyjádřený prostřednictvím TF103. Oproti experimentu QUENCH-01 došlo rovněž

```

**** Stagnant gas gap CVs
*
CV60100 '1st Stagnant' 2 1 1 * non-eq., horiz. fl., sources
CV60101 0 0 * pool for allowed, active
CV60102 0.0 0.0 * no initial velocities
CV60103 2.779296E-03 * Flow area
CV601A0 3 * Separate pool and atmosphere input
CV601A1 ZPOL 1.313 * no pool
CV601A2 PVOL 1.0E+5 * initial pressure 1 bar
CV601A3 MLFR.4 1.0E+00 * Molar Fraction of Hydrogen
CV601A4 PH2O 0.0E+00 * Partial Pressure of Steam
CV601A5 TATM 500.0 * in K
CV601B2 1.463 1.231228E-03 * in m and m3 - top
CV601B1 1.313 0.000000E+00 * in m and m3 - bottom

```

Obrázek 3.3: Původní vstup CV601A3 z QUENCH-01.

```

**** Stagnant gas gap CVs
*
CV60100 '1st Stagnant' 2 1 1 * non-eq., horiz. fl., sources
CV60101 0 0 * pool for allowed, active
CV60102 0.0 0.0 * no initial velocities
CV60103 2.779296E-03 * Flow area, (0.15^2-0.1377^2)*PI/4
CV601A0 3 * Separate pool and atmosphere input
CV601A1 ZPOL 1.313 * no pool, 1.388-0.5*0.15
CV601A2 PVOL 1.0E+5 * initial pressure 1 bar
CV601A3 MLFR.5 0.21 * Molar Fraction of Oxygen
CV601A6 MLFR.8 0.79 * Molar Fraction of Nitrogen
CV601A5 TATM 500.0 * in K
CV601A4 PH2O 0.0E+00 * Partial Pressure of Steam
CV601B2 1.463 1.231228E-03 * in m and m3 - top, 1.388+0.5*0.15; (2.779296E-03)*0.443
CV601B1 1.313 0.000000E+00 * in m and m3 - bottom, 1.388-0.5*0.15

```

Obrázek 3.4: Změněný vstup CV601A3 pro QUENCH-06.

ke změně teploty této paroplenné směsi, která byla ve vstupu CV010A4 TATM zohledněna prostřednictvím TF104 a ve vstupu CV710A4 TATM prostřednictvím TF124.¹

3.2 Spojky (FL)

Jak již bylo zmíněno v případě CV010, docházelo v průběhu QUENCH-01 ke změně hmotnostního průtoku paroplenné směsi, které v případě QUENCH-06 ne probíhaly, a proto došlo prostřednictvím TF105 k modifikaci rychlosti proudění paroplenné směsi na vstupu spojky FL020T1 (viz Obrázky 3.5 a 3.6). Hodnota rychlosti paroplenné směsi vychází z hustoty směsi získané z předchozího výpočtu parciálního tlaku vodní páry, z průtočné plochy spojky a ze stanoveného hmotnostního průtoku směsi. Hmotnostní průtok paroplenné směsi před zaplavením by měl v případě QUENCH-06 odpovídat součtu hmotnostního průtoku argonu (3 g/s) a hmotnostního průtoku vodní páry (3 g/s), tedy 6 g/s. Výpočtem se nicméně proká-

¹Kontrolní objem CV710 představuje zdroj argonu při zaplavení po jeho přesměrování z dolní do horní části testovacího úseku.

zalo, že takto vypočítaná rychlost směsi má za následek dvojnásobný hmotnostní průtok vodní páry, a proto byl následně při výpočtu používán poloviční hmotnostní průtok paroplynné směsi o hodnotě 3 g/s.

```

TF10500 'FL020 Velocity' 8 1.0 0.0
*
*      Time      Flow Velocity in m/s
*
TF10512      0.0      1.1151E+0
TF10513     99.99     1.1151E+0
TF10514    100.0     4.73878E+0
TF10515   907.99     4.73878E+0
TF10516   908.0     3.5246E+0
TF10517  9653.99     3.5246E+0
TF10518  9654.0      0.0
TF10519 50000.0      0.0

```

Obrázek 3.5: Původní definice TF105 z QUENCH-01.

```

TF10500 'FL020 Velocity' 4 1.0 0.0
*
*      Time      Flow Velocity in m/s
*
TF10512      0.0      3.0712E+0
TF10513   7178.9     3.0712E+0
TF10514   7179.0     0.0000E+0
TF10515  50000.0     0.0000E+0

```

Obrázek 3.6: Změněná definice TF105 pro QUENCH-06.

Již v úvodu této kapitoly byla zmíněna nižší hodnota hmotnostního průtoku vody při zaplavení v případě experimentu QUENCH-06. Tento parametr se modeluje změnou rychlosti média ve spojce FL030 na vstupu FL030T1 prostřednictvím TF114.

3.3 Tepelné struktury (HS)

Teplotní okrajové podmínky vycházející z hodnot naměřených na vnějším povrchu vnitřního pláště chladicí obálky se do vstupního souboru experimentu QUENCH-06 vkládá pro HS typu radiální BHS (HS10201 až HS13001). V tomto případě se změní vstupy pro zadání okrajových podmínek pro vnější stranu těchto BHS, HS(10201 až 13001)600, prostřednictvím CF10201 až CF13001, které dále pracují s daty získanými EDF005 a EDF006.

3.4 Externí soubory dat (EDF)

Hodnoty naměřené během experimentu vytváří jak teplotní okrajové podmínky, tak okrajové podmínky pro vývin tepla a je zapotřebí je mít v průběhu výpočtu k dispozici a komunikovat s nimi. V rámci modifikace vstupního souboru pro experiment

QUENCH-06 bylo zapotřebí vytvořit nové externí soubory dat odpovídající svým obsahem naměřeným hodnotám teplot a elektrického výkonu a napětí (Tjacketa.dat, Tjacketb.dat, quenchnp.dat, quenchnu.dat) a správně definovat vstupy pro knihovnu EDF (EDF005, EDF006, EDF020, EDF021), podle kterých je MELCOR pozná a správným způsobem použije (viz Obrázek 3.7).

```

**** Power and Voltage input
*
EDF02000 'Heater Power' 2 READ
EDF02001 'quenchnp.dat'
EDF02002 '(E11.3,2E13.3)'
*
EDF02100 'Heater Voltage' 2 READ
EDF02101 'quenchnu.dat'
EDF02102 '(E11.3,2E13.3)'
*
**** Cooling Jacket inner wall Temperature
*
* EDF
*
EDF00500 'Tjacket1' 10 READ
EDF00501 'Tjacketa.dat'
EDF00502 '(E10.4,10E11.4)'
*
*
EDF00600 'Tjacket2' 11 READ
EDF00601 'Tjacketb.dat'
EDF00602 '(E10.4,11E11.4)'

```

Obrázek 3.7: Příklad zadání EDF020,021,005,006, které se mezi experimenty QUENCH-01 a QUENCH-06 po formální stránce neliší, ale různí se obsahem datových souborů: quenchnp.dat, quenchnu.dat, Tjacketa.dat a Tjacketb.dat.

3.5 Kontrolní funkce (CF)

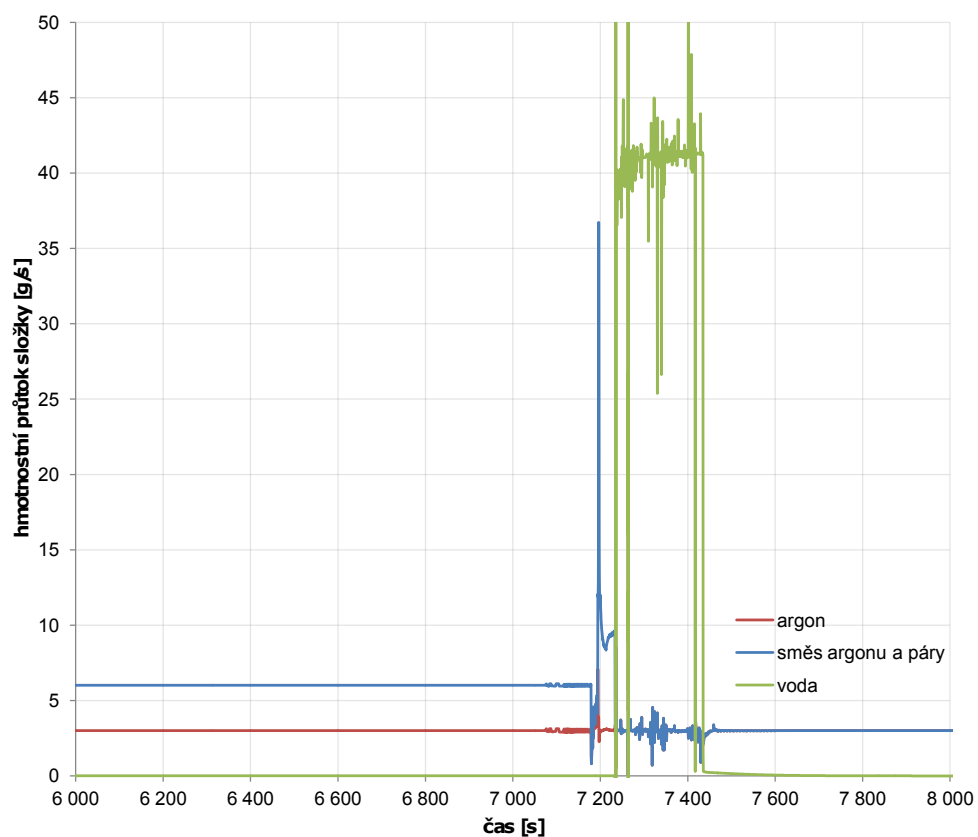
Vstupní elektrický výkon palivového svazku se mění se změnou přechodového odporu ve spoji wolframového drátu s molybdenovou a měděnou elektrodou. Hodnota přechodového odporu nebyla předmětem měření, a proto vytváří neurčitost modelování tohoto typu experimentu. FZK doporučuje hodnotu přechodového odporu ($4,3 \Omega$ /tyč) založenou na analýze experimentu typu QUENCH pomocí výpočtového kódu SCDAP/RELAP. [46] Tento parametr se do vstupního souboru zadává na vstupu CF020. Během výpočtů prováděných v praktické části této práce pomocí výpočtového kódu MELCOR ve verzi 1.8.6 bylo vyzkoušeno několik hodnot přechodového odporu a v grafech následující kapitoly Výpočet a zpracování výsledných dat je ve výpočtu A využita hodnota $5,3 \Omega$ /tyč a pro výpočet B $6,9 \Omega$ /tyč.

4. Výpočet a zpracování výsledných dat pro experiment QUENCH-06

Modifikovaným (dle změn uvedených v předcházející kapitole) vstupním souborem byly provedeny výpočty experimentu QUENCH-06. Následuje porovnání vybraných výsledků s naměřenými daty.

4.1 Průtoky médií v průběhu experimentu

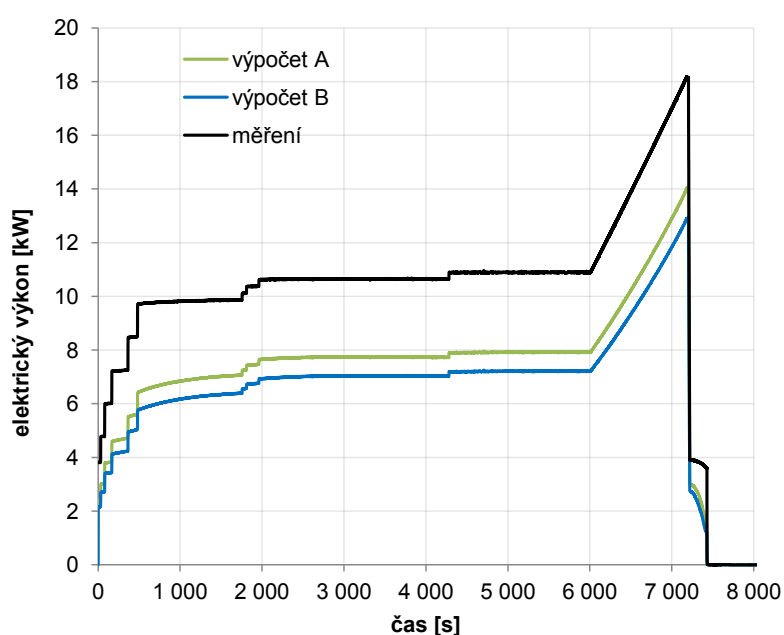
Dle popisu průběhu experimentu QUENCH-06 uvedeném v druhé kapitole lze provést kontrolu správnosti zadaných okrajových podmínek průtoku médií, které MELCOR při výpočtu využívá. Obrázek 4.1 znázorňuje průběh hmotnostních průtoků všech tří médií, se kterými MELCOR počítá a který odpovídá experimentálním podmínkám bez ohledu na oscilace způsobené skokovou změnou průtoku.



Obrázek 4.1: Vypočítaný průtok různých médií testovacím úsekem.

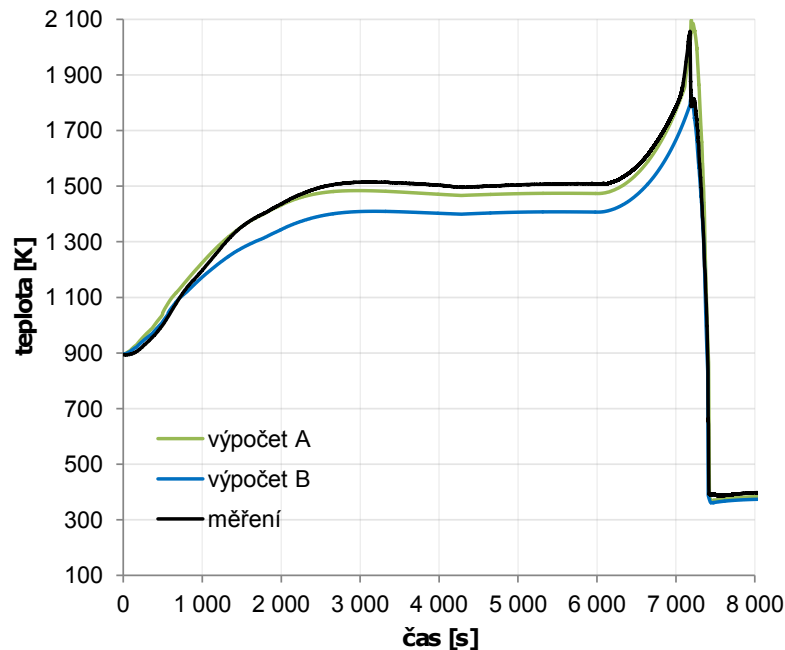
4.2 Elektrický výkon palivového svazku

Průběh naměřeného elektrického výkonu tvoří ve směru osy růstu elektrického výkonu téměř ekvidistantní křivku průběhům vypočítaným (s rostoucí teplotou se ale rozestupy všech tří průběhů zmenšují). V důsledku ztrát (například v kluzných kontaktech) musí být naměřený průběh elektrického výkonu, který ztráty nezahrnuje, složen z vyšších hodnot než ten vypočítaný, ve kterém je hodnota přechodového odporu již započítána. Nižší hodnoty elektrického výkonu výpočtu B vyplývají z vyšší hodnoty zvoleného přechodového odporu než v případě výpočtu A.



Obrázek 4.2: Celkový elektrický výkon palivového svazku.

4.3 Maximální teplota palivového svazku

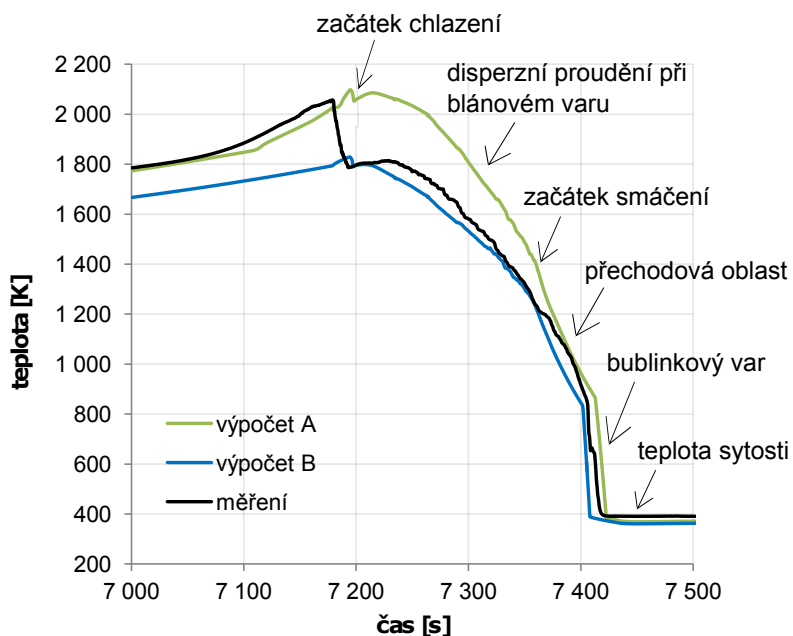


Obrázek 4.3: Maximální teplota palivového svazku.

Nejvyšší dosažené teploty palivového svazku během experimentu výrazně ovlivňují průběh oxidace a tudíž i produkci vodíku. Maximální teplota palivového svazku byla naměřena ihned po začátku fáze zaplavení ve středu centrální nevyhřívané tyče ve výškové úrovni 950 mm. Pro srovnání s touto naměřenou hodnotou byly vybrány teploty palivového pokrytí v buňce COR 223 (COR-TCL.223), tedy v 2. radiálním prstenci (oblast vyhřívaných tyčí) a 23. axiální úrovni, které odpovídají maximu vypočítané teploty palivového svazku. Porovnání maximální teploty na povrchu nevyhřívané tyče s maximální teplotou na povrchu vyhřívané tyče svědčí o vysoké intenzitě přenosu tepla sáláním v této oblasti během experimentu nebo o podceňování naměřených dat kódem MELCOR. Lepší shoda průběhu naměřených teplot panuje s výpočtem A (ten se volbou hodnoty přechodového odporu zaměřil právě na dosažení teplot v blízkosti teplotního průběhu experimentu). Zároveň je patrné, že v případě výpočtu A je dosaženo vyšších maximálních teplot než naměřených, což může být způsobeno větší intenzitou exotermické reakce zirkonia s vodní párou a později se může projevit v axiálním profilu oxidického povlaku. V případě výpočtu B lze očekávat nižší hodnoty tloušťky oxidického povlaku než experimentálně zjištěné, neboť při něm nebylo dosaženo naměřených teplot. Během

zaplavení je skokový pokles teplot na hodnotu teploty sytosti (~ 400 K) ve všech třech případech souběžný. Vykreslené výsledky obou výpočtů tak mají v průběhu celého experimentu stejný trend jako naměřené hodnoty a ani v jednom případě nedosahují hodnot teplotního kritéria selhání palivových tyčí, které je ve vstupním souboru kódu MELCOR zadáno pro experiment QUENCH-06 hodnotou citlivostního koeficientu 1132 na vstupu SC11321 2 500 K (respektive SC11322 2 800 K bez ohledu na míru oxidace palivového pokrytí).

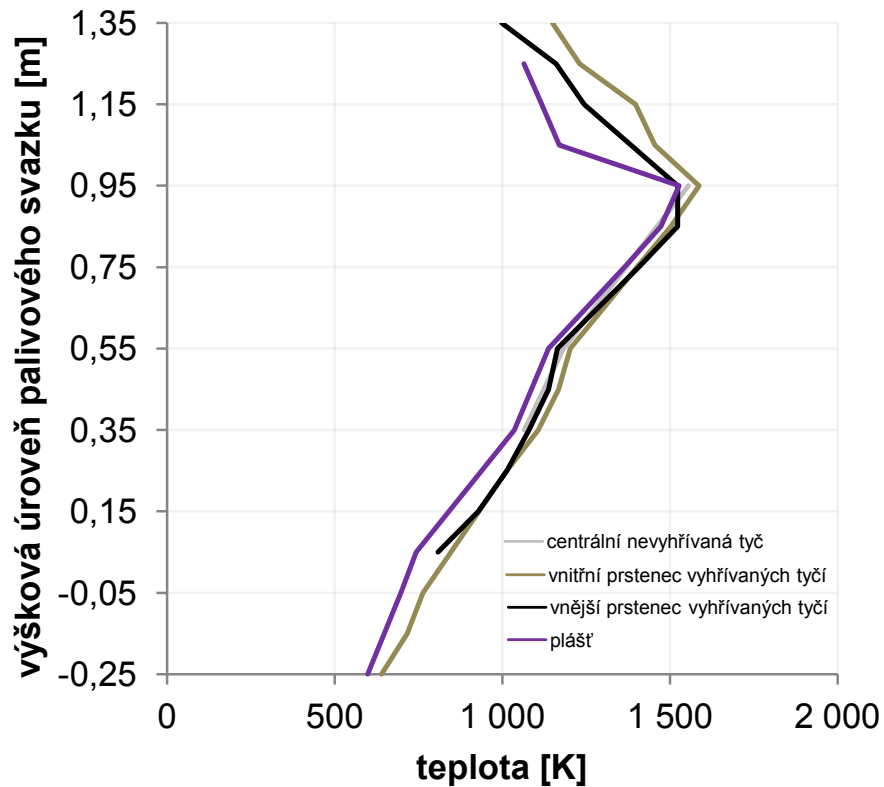
4.4 Průběh chlazení palivového svazku



Obrázek 4.4: Průběh chlazení palivového svazku během zaplavení.

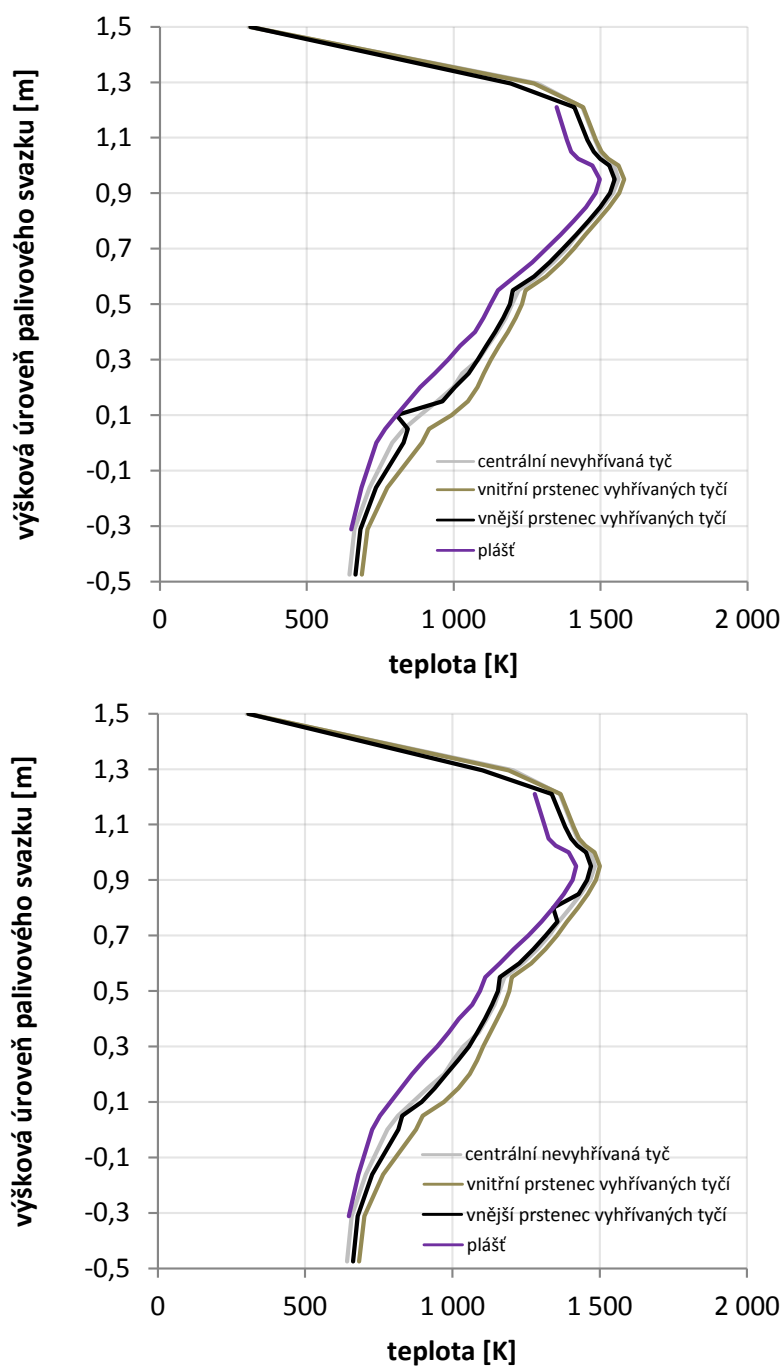
Na detailu průběhu chlazení palivových tyčí (naměřené i vypočítané hodnoty odpovídají průběhům použitým při porovnání nejvyšších teplot palivového svazku) během fáze zaplavení lze sledovat různé mechanismy chlazení odpovídající Obrázku 1.2. V případě výpočtu A dochází na počátku fáze zaplavení k teplotnímu výkyvu způsobenému zejména exotermickou reakcí zirkonia s vodní párou, která ihned po začátku chlazení nejprve jeho účinky redukuje, ale posléze její intenzita opadá a naměřené i vypočítané průběhy chlazení konvergují.

4.5 Axiální rozdělení teplot a tloušťky oxidické vrstvy



Obrázek 4.5: Naměřený průběh teploty po délce palivového svazku v čase 6 620 s.

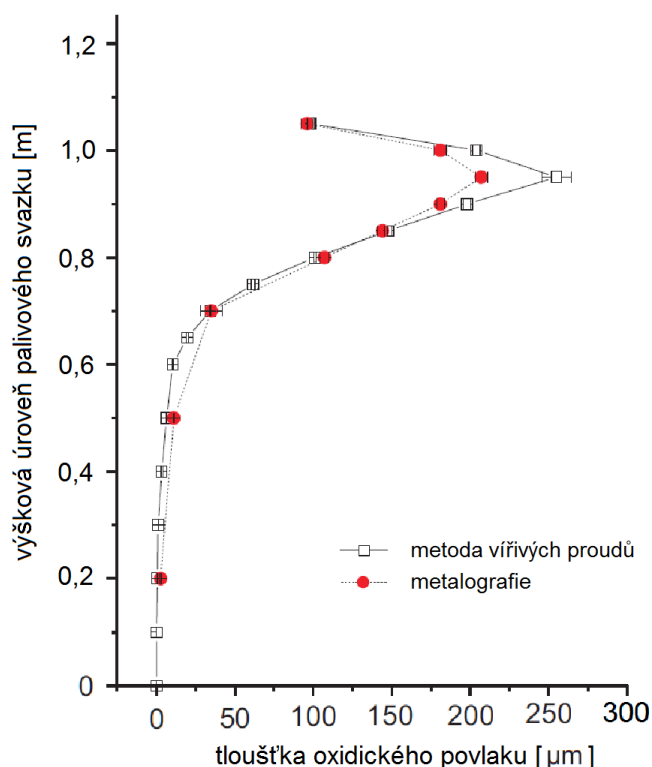
V čase $\sim 6\,630$ s došlo k vytažení jedné z tyčí z rohu palivového svazku. Axiální průběh naměřených teplot v tomto časovém období je zobrazen na Obrázku 4.5. Nejvyšších teplot palivového svazku v tomto časovém kroku je dle měření dosaženo v oblasti 950 mm. Rozdělení teplot podél délky komponent palivového svazku určené oběma výpočty v čase $\sim 6\,630$ s je zachyceno na Obrázku 4.6. Svým charakterem průběhu se oba výpočty v horní části palivového svazku podobají naměřeným hodnotám. Teploty v dolní části palivového svazku oba výpočty nadhodnocují.



Obrázek 4.6: Vypočítané rozdělení teplot po délce palivového svazku dle výpočtu A (nahore) a výpočtu B (dole) v čase 6 620 s.

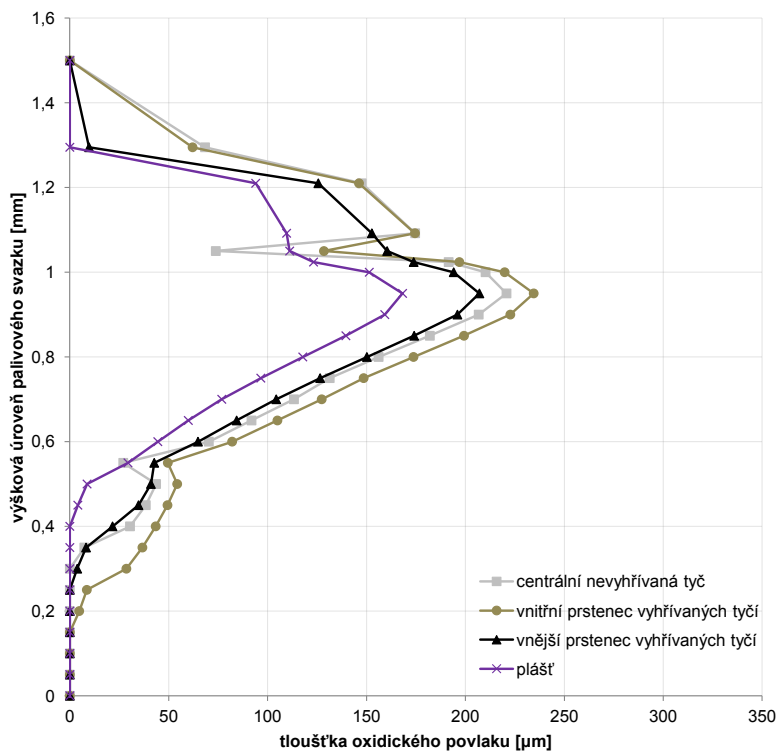
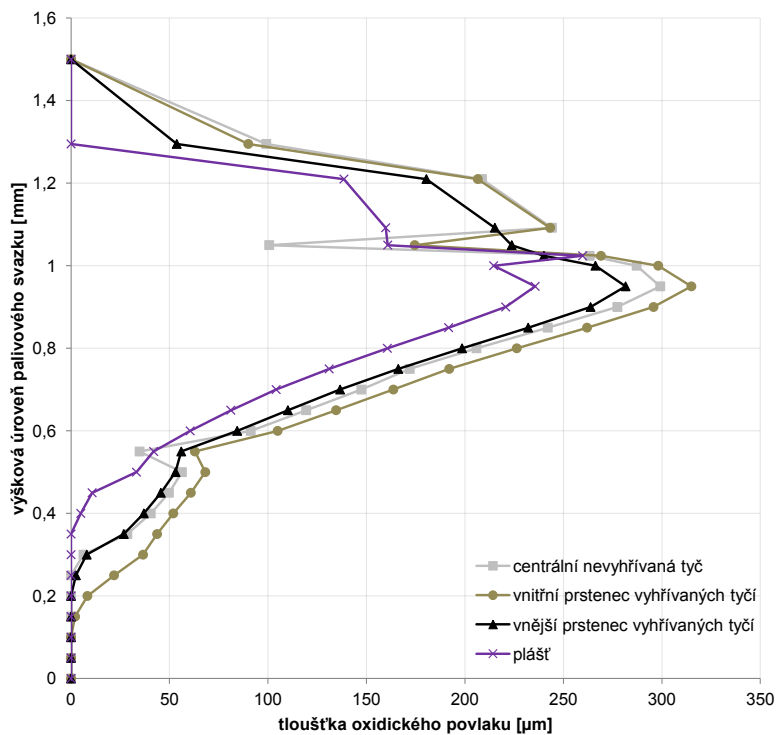
Naměřený profil tloušťky oxidického povlaku na povrchu vytažené tyče je uveden na Obrázku 4.7.

Porovnáním s vypočítanými profily na Obrázku 4.8 je zřejmé, že výpočet A v tomto čase nadhodnocuje tloušťku oxidické vrstvy a k naměřeným hodnotám



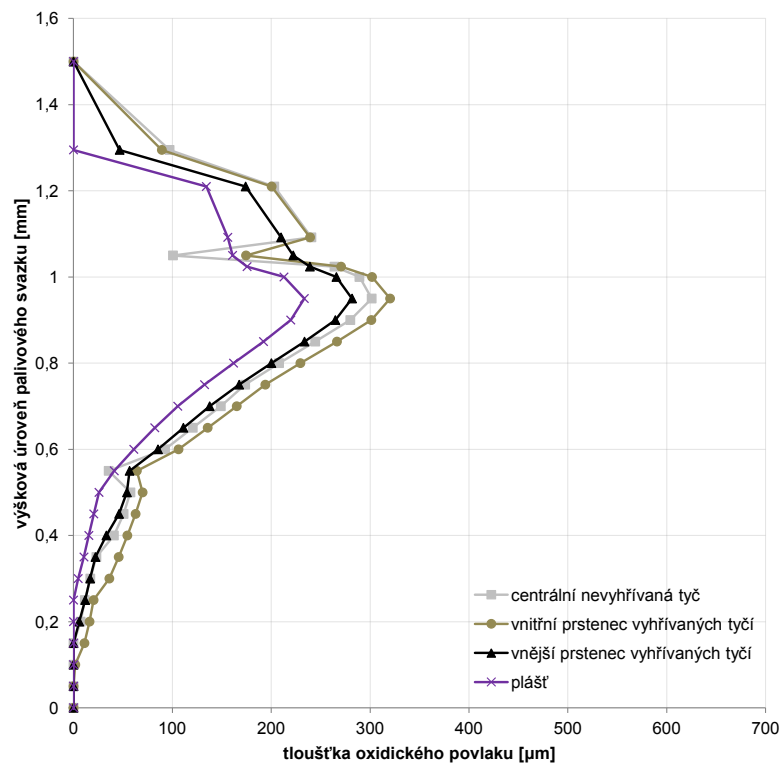
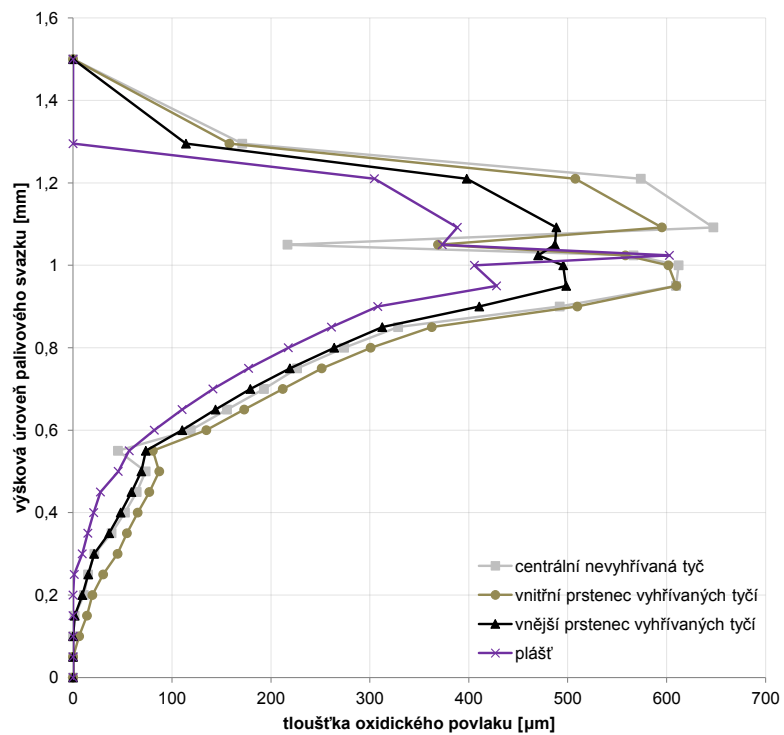
Obrázek 4.7: Naměřené hodnoty tloušťky oxidického povlaku po délce tyče vytažené z rohu palivového svazku v čase $\sim 6\,630$ s.

se blíží spíše výpočet B. Oba výpočty však vykazují oxidický povlak nad výškovou úrovní 200 mm, zatímco měřením byla tloušťka oxidického povlaku zjištěna až nad výškovou úrovní 600 mm. Tento jev může být způsoben použitou korelací oxidace (Urbanic-Heidrickova), která při relativně nízkých teplotách této oblasti ($\leq 1\,100$ K) nadhodnocuje účinky oxidace. V obou výpočtech dochází nad výškovou úrovní 1 000 mm (horní konec vyhřívané oblasti), k náhlému snížení tloušťky oxidické vrstvy centrální nevyhřívané tyče a vnitřního prstence vyhřívaných tyčí, ale záhy její hodnota opět skokově stoupá a dosahuje menší tloušťky, než byla původní úroveň. Tento jev, jak je patrné z Obrázku 4.6, není způsoben skokovým poklesem teploty, ale pravděpodobněji souvisí s modelováním oxidace (Urbanic-Heidrickovy korelace). Výrazný pokles ve výškové oblasti 1 000 mm se neprojevuje u profilu oxidické vrstvy pláště ani u vnějšího prstence vyhřívaných tyčí v žádném z výpočtů. Žádné skokové propady se nevyskytují ani v případě naměřeného profilu oxidické tloušťky.



Obrázek 4.8: Hodnoty tloušťky oxidického povlaku po délce palivového svazku v čase 6 620 s dle výpočtu A (nahore) a výpočtu B (dole).

Na Obrázku 4.9 je zobrazen vypočítaný profil konečné tloušťky oxidického povlaku po skončení experimentu. V případě výpočtu A jsou zřejmá dvě rovnocenná

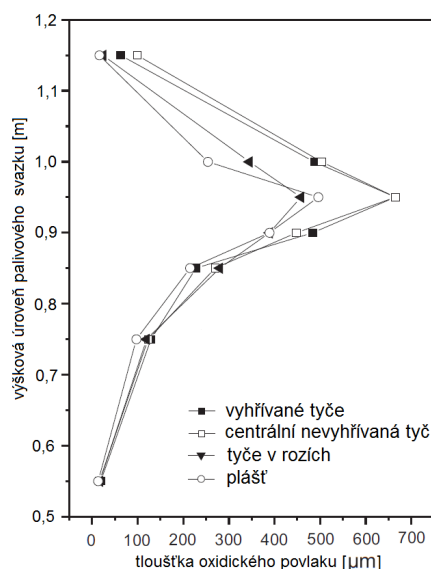


Obrázek 4.9: Hodnoty konečné tloušťky oxidického povlaku po délce palivového svazku dle výpočtu A (nahore) a výpočtu B (dole).

maxima profilu oxidické tloušťky, mezi kterými leží skokový propad. Od vypočítané úrovně tloušťky oxidické vrstvy v čase ~ 6630 s došlo v tomto případě ke

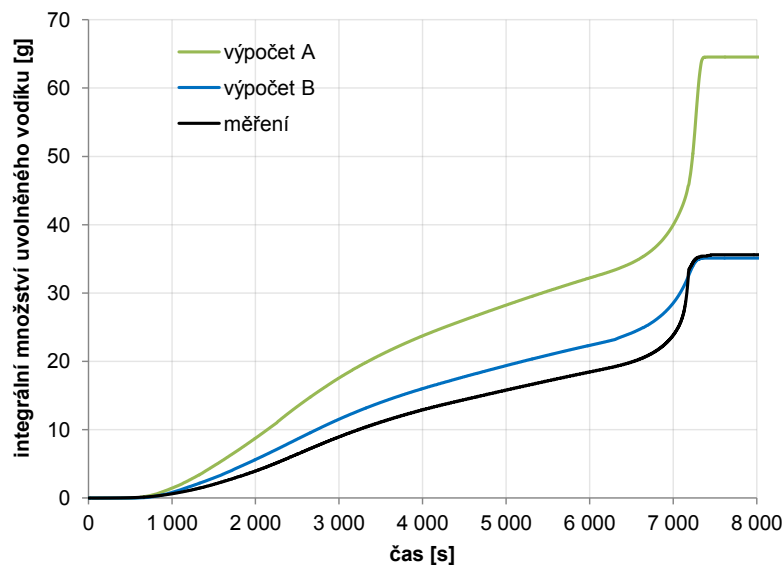
zrychlení oxidace ve výškové oblasti nad 1 000 mm, kde v případě výpočtu A došlo ve výškové úrovni 1 092 mm k překročení kritéria kritické minimální tloušťky nezoxidované Zry-4 v palivovém pokrytí ($100\ \mu\text{m}$): hodnota tloušťky oxidického povlaku přesáhla $625\ \mu\text{m}$, přičemž počáteční tloušťka stěny zircaloyového pokrytí byla $725\ \mu\text{m}$ (viz Příloha 4.6), a tak v tomto případě došlo k selhání centrální nevyhřívané tyče. Srovnáním profilu oxidické tloušťky výpočtu B v čase $\sim 6\ 630\ \text{s}$ s jeho finální podobou nedošlo v jeho průběhu k významným změnám.

Naměřený profil konečné tloušťky oxidického povlaku různých konstrukcí AZ je uveden na Obrázku 4.10. V jeho případě se všechna maxima oxidických tloušťek nacházejí ve výškové oblasti 950 mm a stejně je tomu i u výpočtu B. Vypočítané profily oxidických tloušťek v případě výpočtu A nicméně pro centrální nevyhřívanou tyč a plášť kulminují nad výškovou úrovní 1 000 mm. Pro vyhřívané tyče výpočtu A lze soudit, že maxima jejich oxidické tloušťky se nacházejí ve výškové úrovni 950 mm. Naměřeným konečným profilům oxidických tloušťek se více přibližuje výpočet A. Oba výpočty ale stále nadhodnocují tloušťku oxidického povlaku nad výškovou úrovní 200 mm. V obou výpočtech dochází v případě tloušťky oxidického povlaku centrální nevyhřívané tyče a vnitřního prstence vyhříváných tyčí nad výškovou úrovní 1 000 mm ke skokovému snížení tloušťky oxidické vrstvy a záhy opět k prudkému nárůstu, a to zejména v případě výpočtu A pro centrální nevyhřívanou tyč. Pro profil oxidické vrstvy pláště a vnějšího prstence vyhříváných tyčí výpočtu B nedochází ve výškové oblasti 1 000 mm k žádným prudkým výchýlkám.



Obrázek 4.10: Naměřené hodnoty konečné tloušťky oxidického povlaku po délce palivového svazku.

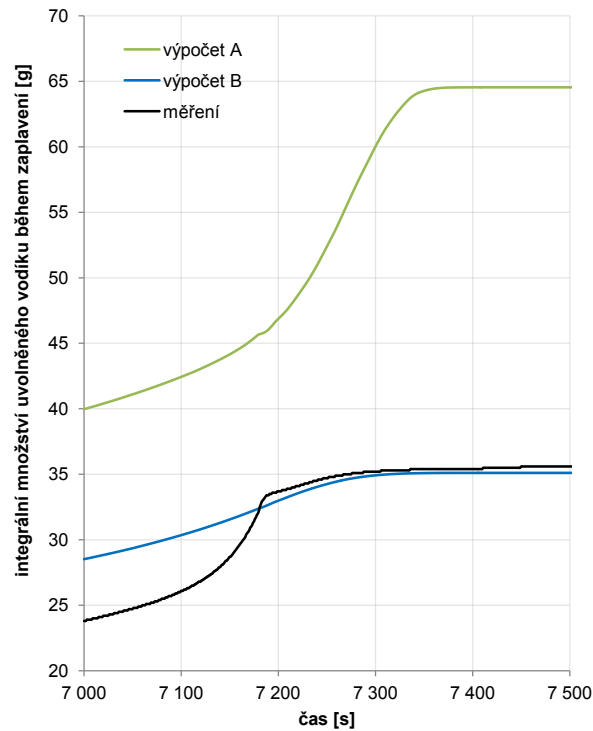
4.6 Produkce vodíku během experimentu



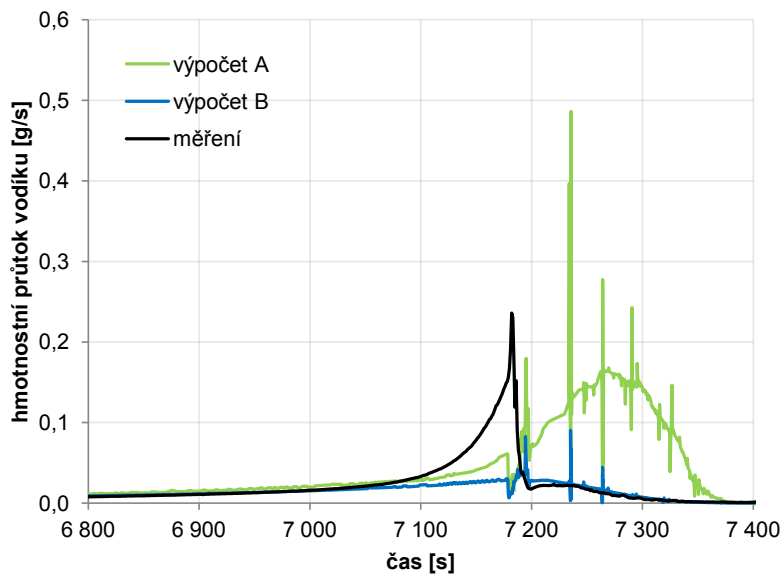
Obrázek 4.11: Celkové množství uvolněného vodíku.

Na obrázku 4.11 je zachycen průběh integrálního množství uvolněného vodíku během experimentu QUENCH-06. Naměřenému průběhu celkového vyprodukovaného vodíku se nejvíce přibližuje výpočet B, který byl volbou hodnoty přechodového odporu zaměřen právě na dosažení experimentálně zjištěné hodnoty produkce vodíku. Oba výpočty však do začátku fáze zaplavení nadhodnocují produkci vodíku. V případě výpočtu B nedochází během zaplavení k tak výraznému nárůstu produkce vodíku jako v případě experimentu (teplotní výkyv způsobený exotermickou reakcí zirkonia s vodní párou), a tak v průběhu zaplavení dochází k vyrovnání obou průběhů na přibližně stejné úrovni. K ještě výraznějšímu teplotnímu výkyvu na konci přechodové fáze dochází během výpočtu A. Ten má spolu s možnými numerickými oscilacemi při výpočtu za následek téměř skokový nárůst produkce vodíku.

Detailnější pohled na množství uvolněného vodíku během zaplavení nabízí Obrázek 4.12. Rychlost produkce vodíku vyjádřenou jeho hmotnostním průtokem zobrazuje Obrázek 4.13. V případě naměřeného hmotnostního průtoku vodíku je patrné výrazné maximum na začátku zaplavení. Průběhy obou výpočtů po zaplavení se spíše než dosažení konkrétního maxima podobají množství oscilací, které probíhá s určitým časovým zpožděním od zaplavení. V případě výpočtu A je mezi jednotlivými oscilacemi patrný i nárůst rychlosti produkce vodíku způsobený rozvojem oxidace na konci přechodové fáze.



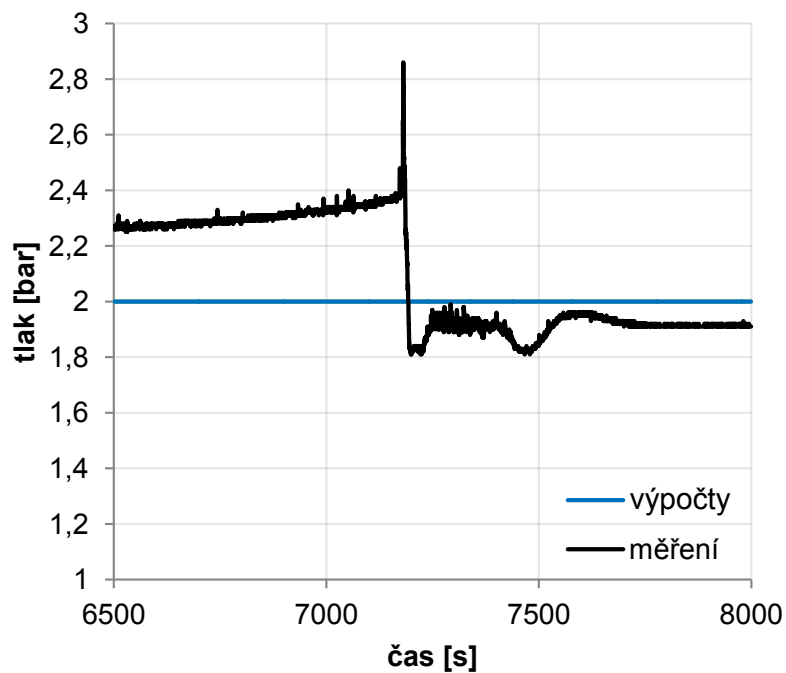
Obrázek 4.12: Množství vodíku uvolněné během zaplavení.



Obrázek 4.13: Rychlost uvolňování vodíku.

Ihned po zaplavení došlo v rámci experimentu k prasknutí pláště ve výškové oblasti 900 až 1 000 mm. Jeho selhání je dobře patrné z průběhu tlaku v mezeře mezi pláštěm a vnitřním pláštěm chladicí obálky na obrázku 4.14. Po rychlém

nárůstu tlaku dochází ihned po zaplavení ke strmému poklesu indikujícím selhání konstrukce pláště. Při vykreslení průběhu tlaků v mezeře mezi pláštěm a vnitřním pláštěm chladicí obálky obou výpočtů se během zaplavení neprojevují žádné změny, což indikuje zachování integrity pláště i po zaplavení.



Obrázek 4.14: Průběh tlaku na vnější straně pláště palivového svazku během zaplavení.

Závěr

Hlavním cílem této práce bylo ověření schopnosti výpočtového kódu MELCOR simulovat průběh časné fáze těžké havárie na experimentu QUENCH-06 s důrazem na zdrojový člen vodíku. Z analýzy dat uvedené v kapitole Výpočet a zpracování výsledných dat pro experiment QUENCH-06 vyplývá, že kód MELCOR je schopen modelovat různé děje s různou úrovní přesnosti, ale obecně lze říci, že v zásadě postihuje trend patrný z naměřeného průběhu experimentu. Jedním z důležitých faktorů, který do velké míry ovlivňuje přesnost výpočtů, je neurčitost samotného experimentu, která je v tomto případě vyjádřena hodnotou přechodového odporu (viz srovnání výsledků výpočtu A a výpočtu B, které se mezi sebou liší pouze v tomto parametru).

Přesnost predikce, například množství uvolněného vodíku v průběhu těžké havárie, provedené výpočtovým kódem je závislé na stavu geometrie AZ i na použité korelaci vysokoteplotní oxidace, která dle konkrétního typu může mít v určitých teplotních oblastech sklon podhodnocovat či nadhodnocovat její průběh. Do budoucnosti lze očekávat zpřesnění rozborů oxidace výpočtovými kódy v důsledku začlenění detailnějších modelů fungujících na bázi sledování difúze kyslíku na hranicích různých vrstev materiálu. Rozvoj schopnosti modelovat tyto i jiné komplexní jevy těžkých havárií lze očekávat spolu s pokračováním mezinárodních experimentálních programů zaměřených na zvyšování poznání těžkohavarijních dějů, na validaci modelů výpočtových kódů a snižování neurčitostí jejich výsledků.

Seznam použité literatury

Monografie

- [1] Hugh Baker. *ASM Handbook, volume 3, Alloy Phase Diagrams*. Ed. Hugh Baker. ASM International, Materials Park, Ohio, 1992. ISBN: 978-0-87170-381-1.
- [2] N. Claussen, M. Ruhle a A.H. Heuer. *Advances in Ceramics Vol. 12: Science and Technology of Zirconia II*. Ed. N. Claussen, M. Ruhle a A.H. Heuer. American Ceramic Society, 1984. ISBN: 0916094642.
- [3] J. Koutský a J. Kočík. *Radiation damage of structural materials*. Ed. J. Koutský a J. Kočík. Academia, Praha, 1994. ISBN: 80-200-0462-9.
- [4] Gianni Petrangeli. *Nuclear safety*. Ed. Gianni Petrangeli. 1. Butterworth-Heinemann, 2006. ISBN: 978-0-7506-6723-4.
- [5] Bal Raj Sehgal, ed. *Nuclear Safety in Light Water Reactors: Severe Accident Phenomenology*. 1. Academic Press, 2012. ISBN: 978-0-12-388446-6.

Články

- [6] B. Cox. „The zirconium-zirconia interface“. In: *Journal of the Australian Institute of Metals* 14.3 (1969), s. 123–131. ISSN: 0004-9352.
- [7] August W. Cronenberg. „Hydrogen Generation Behavior in the LOFT FP-2 and Other Experiments: Comparative Assessment for Mitigated Severe Accident Conditions“. In: *Nuclear Technology* 97.1 (1992), s. 97–112. ISSN: 0029-5450.
- [8] L. Fernandez-Moguel a J. Birchley. „Analysis of the accident in the Fukushima Daiichi nuclear power station Unit 3 with MELCOR 2.1“. In: *Annals of Nuclear Energy* 83 (2015), s. 193–215. ISSN: 0306-4549. DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.anucene.2015.04.021>.
- [9] W. Hering a Christoph Homann. „Degraded core reflood: Present understanding and impact on LWRs“. In: *Nuclear Engineering and Design* 237.24

- (2007), s. 2315–2321. ISSN: 0029-5493. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2007.04.017.
- [10] Z. Hózer, C. Györi et al. „Ballooning experiments with VVER cladding“. In: *Nuclear Technology* 152.3 (2005), s. 273–285. ISSN: 0029-5450.
- [11] T. Ikeda, K. Katsuragi et al. „Analysis of International Standard Problem No. 45, QUENCH06 Test at FZK by Detailed Severe Accidents Analysis Code, IMPACT/SAMPSON“. In: *Journal of Nuclear Science and Technology* 40.4 (2003), s. 246–255. DOI: <http://dx.doi.org/10.1080/18811248.2003.9715355>.
- [12] S. Leistikow a G. Schanz. „Oxidation Kinetics and Related Phenomena of Zircaloy-4 Fuel Cladding Exposed to High Temperature Steam and Hydrogen-Steam Mixtures under PWR Accident Conditions“. In: *Nuclear Engineering and Design* 103.1 (1987), s. 65–84. ISSN: 0029-5493. DOI: [http://dx.doi.org/10.1016/0029-5493\(87\)90286-X](http://dx.doi.org/10.1016/0029-5493(87)90286-X).
- [13] Donald R. Olander. „Materials chemistry and transport modeling for severe accident analyses in light-water reactors I: External cladding oxidation“. In: *Nuclear Engineering and Design* 148.2-3 (1994), s. 253–271. ISSN: 0029-5493. DOI: [http://dx.doi.org/10.1016/0029-5493\(94\)90113-9](http://dx.doi.org/10.1016/0029-5493(94)90113-9).
- [14] Peter Rudling a Gunnar Wikmark. „A unified model of Zircaloy BWR corrosion and hydriding mechanisms“. In: *Journal of Nuclear Materials* 265.1-2 (1999), s. 44–59. ISSN: 0022-3115.
- [15] L. Sepold, P. Hofmann et al. „Reflooding experiments with LWR-type fuel rod simulators in the QUENCH facility“. In: *Nuclear Engineering and Design* 204.1-3 (2001), s. 205–220. ISSN: 0029-5493. DOI: [http://dx.doi.org/10.1016/S0029-5493\(00\)00308-3](http://dx.doi.org/10.1016/S0029-5493(00)00308-3).
- [16] L. Sepold, W. Hering et al. „Severe fuel damage experiments performed in the QUENCH facility with 21-rod bundles of LWR-type“. In: *Nuclear Engineering and Design* 237.22 (2007), s. 2157–2164. ISSN: 0029-5493. DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.nucengdes.2007.03.020>.
- [17] M. Steinbrück, J. Birchley et al. „High-temperature oxidation and quench behaviour of Zircaloy-4 and E110 cladding alloys“. In: *Progress in Nuclear*

Energy 52.1 (2010), s. 19–36. ISSN: 0149-1970. DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.pnucene.2009.07.012>.

- [18] M. Steinbrück, M. Grosse et al. „Synopsis and outcome of the QUENCH experimental program“. In: *Nuclear Engineering and Design* 240.7 (2010), s. 1714–1727. ISSN: 0029-5493. DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.nucengdes.2010.03.021>.
- [19] V.F. Urbanic a T.R. Heidrick. „High-temperature Oxidation of Zircaloy-2 and Zircaloy-4 in Steam“. In: *Journal of Nuclear Materials* 75.2 (1978), s. 251–261. ISSN: 0022-3115. DOI: [http://dx.doi.org/10.1016/0022-3115\(78\)90006-5](http://dx.doi.org/10.1016/0022-3115(78)90006-5).
- [20] Shi Xingwei, Cao Xinrong et al. „Oxidation behavior analysis of cladding during severe accidents with combined codes for Qinshan Phase II Nuclear Power Plant“. In: *Annals of Nuclear Energy* 58 (2013), s. 246–254. ISSN: 0306-4549. DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.anucene.2013.03.031>.
- [21] A.P. Zhilyaev a J.A. Szpunar. „Influence of stress developed due to oxide layer formation on the oxidation kinetics of Zr-2,5%Nb alloy“. In: *Journal of Nuclear Materials* 264.3 (1999), s. 327–332. ISSN: 0022-3115.

Technické zprávy

- [22] U. Brockmeier et al. *In-Vessel Core Degradation in LWR Severe Accidents: A State of the Art Report, Update January 1991–June 1995*. Tech. zpr. AEA/CSR 1025/W, AEA Technology, Culham, 1995.
- [23] E.W. Coryell. *Summary of Important Results and SCDAP/RELAP5 Analyses for OECD LOFT. Experiment LP-FP2*. Tech. zpr. NUREG/CR-6160, NEA-CSNI-R(94)3. NEA-CSNI, 1994.
- [24] F.J. Erbacher, H.J. Neitzel et al. *Cladding deformation and emergency core cooling of a PWR reactor in a LOCA. Summary Description of the REBEKA Program*. Tech. zpr. Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, 1990. URL: <http://bibliothek.fzk.de/zb/kfk-berichte/KFK4781.pdf>.

- [25] W. Hering, Ch. Homann et al. *Comparison Report on the Blind Phase of the OECD International Standard Problem No. 45 Exercise (QUENCH-06)*. Tech. zpr. FZKA 6677. Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, 2002. URL: <http://bibliothek.fzk.de/zb/berichte/FZKA6677.pdf>.
- [26] P. Hofmann, A. Miassoedov et al. *Quench Behavior of Zircaloy Fuel Rod Cladding Tubes. Small-Scale Experiments and Modeling of the Quench Phenomena*. Tech. zpr. FZKA 6208, INV-COBE(98)-D018. Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe, 1999. URL: <http://bibliothek.fzk.de/zb/berichte/FZKA6208.pdf>.
- [27] P. Hofmann, W. Hering et al. *QUENCH-01 Experimental and Computational Results*. Tech. zpr. FZKA 6100. Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, 1998. URL: <http://bibliothek.fzk.de/zb/berichte/FZKA6100.pdf>.
- [28] A. Nikulina, S. Shishov et al. *Manufacturing of Zr-Nb alloys*. Tech. zpr. IZNA, 2006. URL: http://www.antinternational.com/fileadmin/Products%5C_and%5C_handbooks/IZNA/First%5C_chapter%5C_IZNA6%5C_manuf.pdf.
- [29] Lars Nilsson. *Development of an Input Model to MELCOR 1.8.5 for Oskarshamn 3 BWR*. Tech. zpr. SKI Report 2007:05. Swedish Nuclear Power Inspectorate (SKI), 2006. URL: http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/%5C_Public/38/088/38088532.pdf.
- [30] L. Sepold, W. Hering et al. *Experimental and computational results of the QUENCH-06 test (OECD ISP-45)*. Tech. zpr. FZKA 6664. Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, 2004. URL: <http://bibliothek.fzk.de/zb/berichte/FZKA6664.pdf>.
- [31] I. Shepherd et al. *Investigation of Core Degradation*. Tech. zpr. FISA-99 Symposium, Luxembourg, EUR 19532 EN. COBE project, 1999.
- [32] I. Shepherd, T. Haste et al. *Oxidation Phenomena in Severe Accidents (OPSA). Final Report*. Tech. zpr. EUR 19528 EN. European Commission, Directorate General, Joint Research Centre, 2000.
- [33] Gerhard Schanz. *Recommendations and Supporting Information on the Choice of Zirconium Oxidation Models in Severe Accident Codes*. Tech. zpr. FZKA 6827, SAM-COLOSS-P043. Forschungszentrum Karlsruhe GmbH,

Karlsruhe, 2003. URL: <http://bibliothek.fzk.de/zb/berichte/FZKA6827.pdf>.

- [34] Gerhard Schanz. *Semi-Mechanistic Approach for the Kinetic Evaluation of Experiments on the Oxidation of Zirconium Alloys*. Tech. zpr. FZKA 7329. Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe, 2007. URL: <http://bibliothek.fzk.de/zb/berichte/FZKA7329.pdf>.
- [35] L. Steinbock a J. Stuckert. *Determination of the Crack Pattern of Quenched Zircaloy Tubes*. Tech. zpr. FZKA 6013. Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, 1997. URL: <http://bibliothek.fzk.de/zb/berichte/FZKA6013.pdf>.
- [36] M.S. Veshchunov, A.V. Berdyshev et al. *Physico-Chemical Behavior of Zircaloy Fuel Rod Cladding Tubes During LWR Severe Accident Reflood. Part II: Modelling of quench phenomena*. Tech. zpr. FZKA 5846. Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, 1997. URL: <http://bibliothek.fzk.de/zb/berichte/FZKA5846.pdf>.

Jiné

- [37] *Accident analysis for nuclear power plants*. Vienna: International Atomic Energy Agency. Safety Reports Series No. 23. 2002.
- [38] *Accident Analysis for Nuclear Power Plants with Pressurized Water Reactors*. Vienna: International Atomic Energy Agency. Safety Reports Series No. 30. 2003.
- [39] T.R. Allen, R.J.M. Konings et al. „Corrosion of Zirconium Alloys“. In: ed. Rudy J.M. Konings. Sv. 5. Amsterdam: Elsevier, 2012. Kap. 5.03, s. 49–68. ISBN: 978-0-08-056027-4.
- [40] Clara Anghel. „Modified oxygen and hydrogen transport in Zr-based oxides“. Dis. Royal Institute of Technology, KTH, Department of Materials Science a Engineering, Division of Corrosion Science, 2006. ISBN: 91-7178-429-2.
- [41] *Approaches and Tools for Severe Accident Analysis for Nuclear Power Plants*. Vienna: International Atomic Energy Agency. Safety Reports Series No. 56. 2008.

- [42] Philippe Bossis. „Corrosion of Zr alloys“. Institut national des sciences et techniques nucléaires. 2008.
- [43] Jean-Christophe Brachet. „High temperature oxidation and LOCA behaviour of Zr alloys: microstructural evolutions, consequences on the mechanical properties“. Institut national des sciences et techniques nucléaires. 2015.
- [44] R.O. Gauntt, J.E. Cash et al. „MELCOR Computer Code Manuals. Vol. 1: Primer and Users' Guide“. Version 1.8.6. 2005.
- [45] R.O. Gauntt, J.E. Cash et al. „MELCOR Computer Code Manuals. Vol. 2: Reference Manuals“. Version 1.8.6. 2005.
- [46] W. Hering, Ch. Homann et al. „Specification of the International Standard Problem ISP-45 (QUENCH-06)“. Internal Report 3355, OECD/NEA/CSNI/R(2001)1. 2001.
- [47] Bedřich Heřmanský. *Bezpečnost jaderných elektráren II. Základy jaderné bezpečnosti*. říjen 2009.
- [48] Bedřich Heřmanský. „Fenomenologický popis průběhu LOCA a havárie s tavením paliva“. JB-06-T Vypracováno jako podklad k autorově přednášce JB-01-T pro SÚJB. duben 2011.
- [49] Jakub Horváth. „Paliva pro jadernou energetiku“. přednáška v rámci předmětu Paliva pro jadernou energetiku. prosinec 2015.
- [50] Larry L. Humphries. *MELCOR Code Development Status*. 4th Meeting of the „European MELCOR User Group“, 16.-17. April, GRS, Cologne, Germany. 2012. URL: https://www.psi.ch/emug/Emug2012EN/EMUG2012_HUMPHRIES.pdf.
- [51] Larry L. Humphries, D.L.Y. Louis et al. „MELCOR Computer Code Manuals, Vol. 3: Assessment Problems, Version 2.1 August 2015“. Sandia National Laboratories. SAND2015-6693 R. 2008.
- [52] *In-Vessel Core Degradation in LWR Severe Accidents: Final Report*. European Commission, Directorate-General Science, Research and Development. 1996.

- [53] Jiří Janovec. „Koroze“. přednáška v rámci předmětu Paliva pro jadernou energetiku. prosinec 2015.
- [54] Denny A. Jones. „Principles and Prevention of Corrosion“. In: ed. Denny A. Jones. 2nd. Upper Saddle River, NJ: Prentice Hall, 1996. Kap. Atmospheric Corrosion ad Elevated Temperature Oxidation, s. 399–438. ISBN: 0-13-359993-0.
- [55] K. L. Komarek a M. Silver. „Thermodynamic properties of zirconium-oxygen, titanium-oxygen and hafnium-oxygen alloys“. In: *Thermodynamics of nuclear materials*. Proceedings of international conference. International Atomic Energy Agency. IAEA Vienna, 1962.
- [56] J. Kronenberg, P. Gandrille et al. „Hydrogen production during the reflood of a hot PWR core“. In: *Annual meeting on nuclear technology*. Ed. K.G. Bauer. Bonn, 2000, s. 207–211.
- [57] Clément Lemaignan. „Zirconium Alloys: Properties and Characteristics“. In: ed. Rudy J.M. Konings. Sv. 2. Amsterdam: Elsevier, 2012. Kap. 2.07, s. 217–230. ISBN: 978-0-08-056027-4.
- [58] Clément Lemaignan. „Zirconium in the Nuclear Industry: Thirteenth International Symposium, ASTM STP 1423“. In: ed. G.D. Moan a P. Rudling. ASTM International, West Conshohocken, PA, 2002. Kap. Physical Phenomena Concerning Corrosion Under Irradiation of Zr Alloys, s. 20–29. ISBN: 0-8031-2895-9.
- [59] Guido Mazzini. „Introduction to Severe Accident (SA) Phenomenology“. Centrum výzkumu Řež. 2012.
- [60] Guido Mazzini. „Short Introduction on MELCOR and ASTEC codes“. Centrum výzkumu Řež. 2012.
- [61] *QUENCH Facility: Large Scale Experiments on the Investigation of the Quench Behaviour of the Fuel Rod Simulators*. LACOMECON, Large Scale Experiments on Core Degradation, Melt Retention and Containment Behaviour. URL: <http://nuklear-server.nuklear.kit.edu/lacomeco/Facilities/Quench/quench.htm>.

- [62] *QUENCH Test Matrix*. URL: <http://quench.forschung.kit.edu/24.php>.
- [63] *Research and development with regard to severe accidents in pressurised water reactors: Summary and outlook*. http://www.irsn.fr/EN/Research/publications-documentation/Publications/DSR/SAGR/Documents/rapport_RetD_AG_VA.pdf. Rapport IRSN-2007/83, Rapport CEA-2007/351. 2007.
- [64] Jan Říha. „Studium fázových transformací Zr-slitin při vysokých teplotách metodami rtg difrakce“. Dis. Západočeská univerzita v Plzni, Fakulta strojní, Katedra materiálu a strojírenské metalurgie, 2012.
- [65] L. Sepold, A. Miassoedov et al. „Cooling Characteristics of PWR-type Fuel Element Simulators Test in the QUENCH Experiments“. The 10th International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH-10), Korea. 2003. URL: http://www.iam.kit.edu/wpt/downloads/Sepold%5C_NURETH%5C_10%5C_2003.pdf.
- [66] *Severe Accident*. <http://www.nrc.gov/reading-rm/basic-ref/glossary/severe-accident.html>. International Atomic Energy Agency. 2016.
- [67] *Severe accident management propprogram for nuclear power plants: safety guide*. International Atomic Energy Agency. IAEA safety standards series, no. NS-G-2.15. 2008.
- [68] *Severe Accident Phenomena - an overview*. IAEA Training in Level 2 PSA.
- [69] R. Smoluchowski. „Phase Transformations in Solids“. In: ed. R. Smoluchowski, J.E. Mayer et al. John Wiley, New York, 1951. Kap. Nucleation theory, s. 149–160.
- [70] M. Steinbrück, W. Hering et al. „Core reflooding - Synthesis of the QUENCH program and its impact on code modelling“. The first European Review Meeting on Severe Accident Research (ERMSAR-2005) Aix-en-Provence, France, 14-16 November 2005, SARNET: FI6O-CT-2004-509065. 2005. URL: https://www.iam.kit.edu/wpt/downloads/Steinbrueck%5C_SARNET%5C_2005.pdf.
- [71] M. Steinbrück, J. Birchley et al. „Status of studies on high-temperature oxidation and quench behaviour of Zircaloy-4 and E110 cladding alloys“.

CONTRACT SARNET FI60-CT-2004-509065, The 3rd European Review Meeting on Severe Accident Research, Bulgaria. 2008.

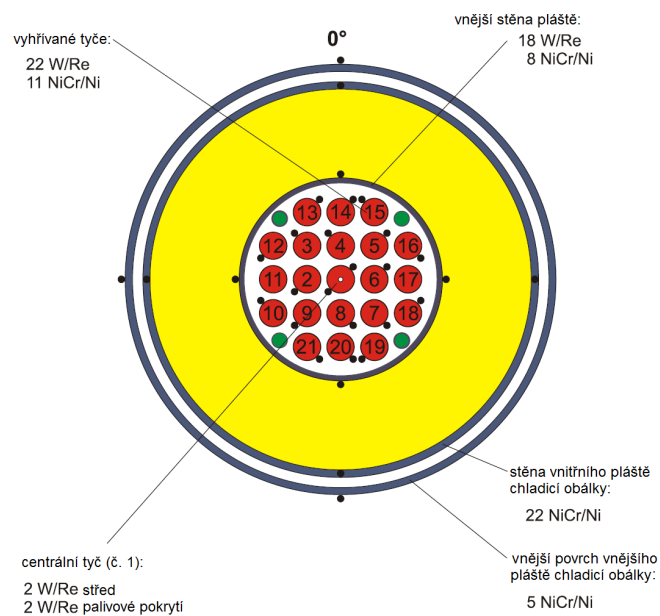
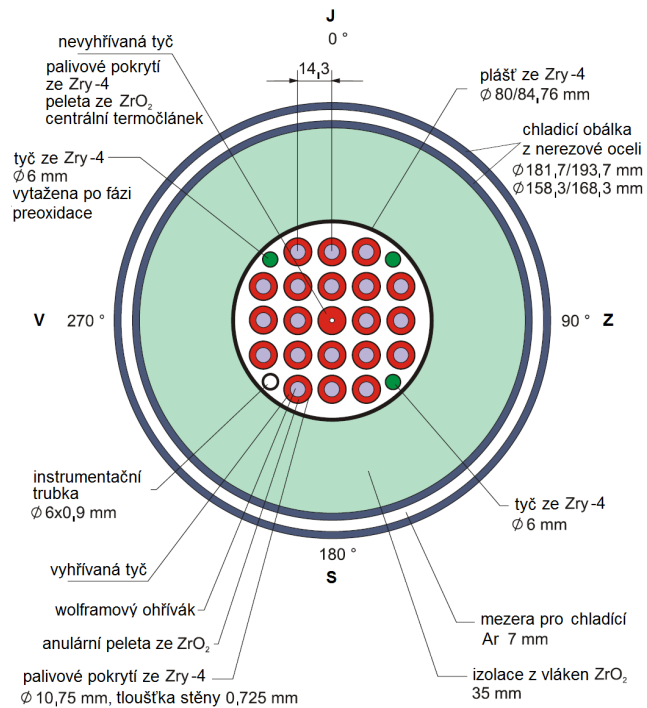
- [72] C. Toffolon-Masclat. „Metallurgy of Zr Alloys for Nuclear Applications - Phase Diagrams and Control of microstructures“. Institut national des sciences et techniques nucléaires. 2014.
- [73] Juhani Vihavainen. „VVER-440 Thermal Hydraulics as a Computer Code Validation Challenge“. Dis. Lappeenranta University of Technology, 2014. ISBN: 978-952-265-717-6. URL: <http://www.doria.fi/bitstream/handle/10024/102206/Vihavainen%201%2012%20%20a4.pdf?sequence=2>.
- [74] *Výběr a hodnocení projektových a nadprojektových událostí a rizik pro jaderné elektrárny*. http://www.sujb.cz/fileadmin/sujb/docs/dokumenty/publikace/G2-EF-final_udalosti_a_rizika_PUBLIKACE.pdf. bezpečnostní návod JB-1.7. prosinec 2010.
- [75] J. N. Wanklyn, ed. *Proceedings of the Symposium of the Corrosion of Zirconium Alloys*. ASTM-STP-368. ASTM. American Society for Testing a Materials, New York, 1963.
- [76] Allen J. Weiss, ed. *Fifteenth Water Reactor Safety Information Meeting*. Sv. 6. NUREG/CP-0091. U. S. Nuclear Regulatory Commission. National Bureau of Standars, Gaithersburg, Maryland: Brookhaven National Laboratory, 1987.

Seznam příloh

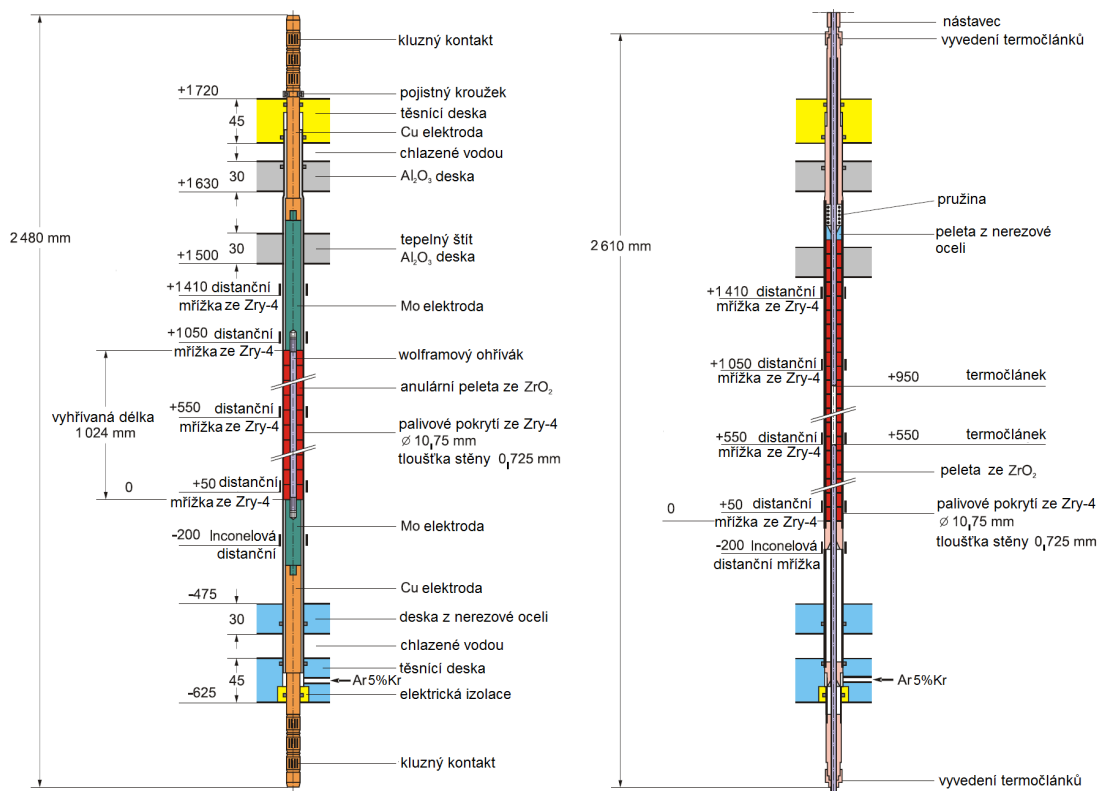
Příloha A	133
Příloha B	135

Příloha A

Experimentální zařízení QUENCH



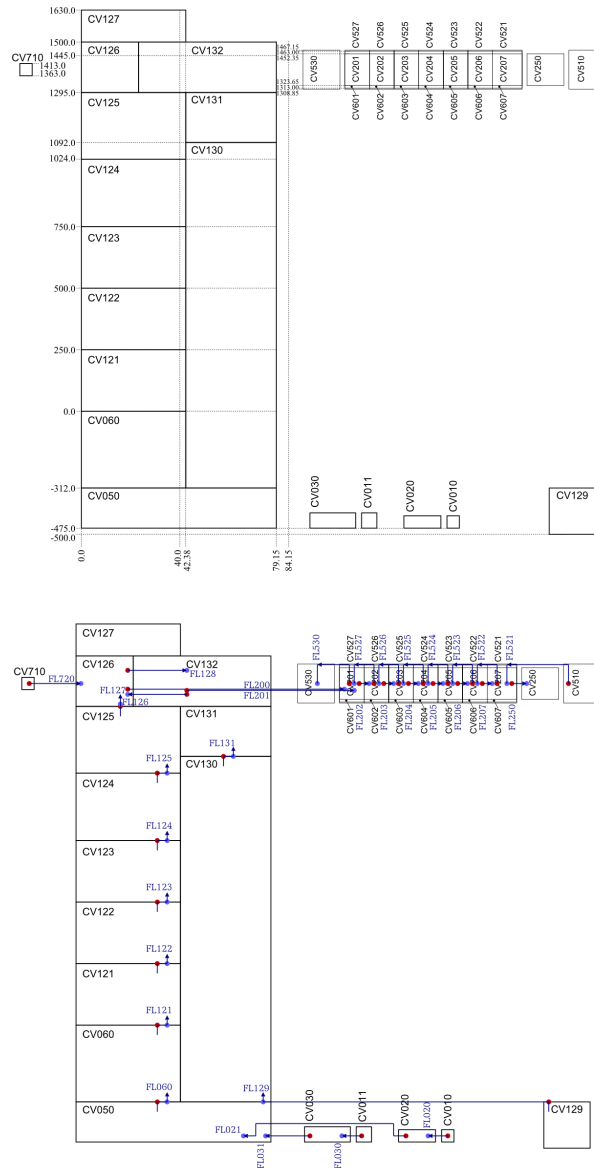
Obrázek A1: Průřez simulátorem palivového svazku (nahore) a umístění termočláneků a označení tyčí (dole). [27]



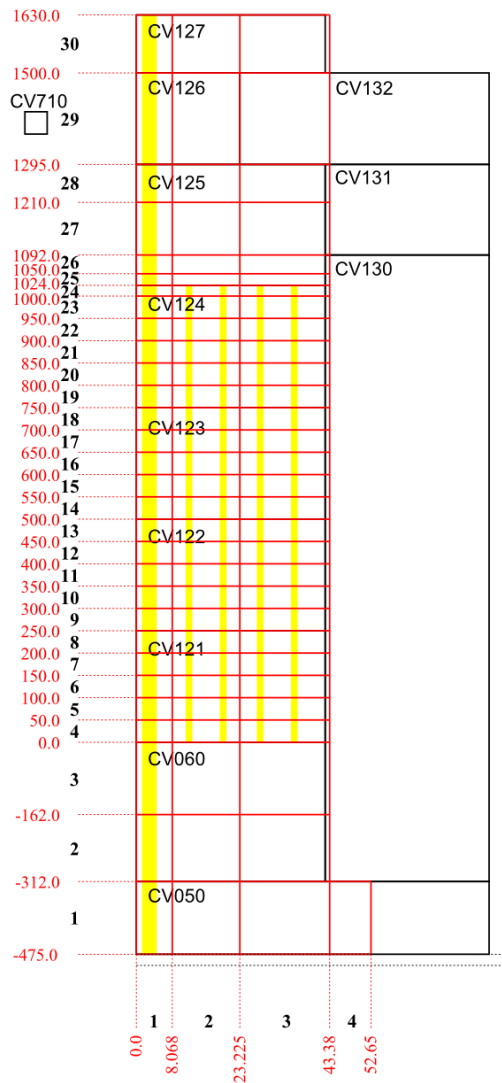
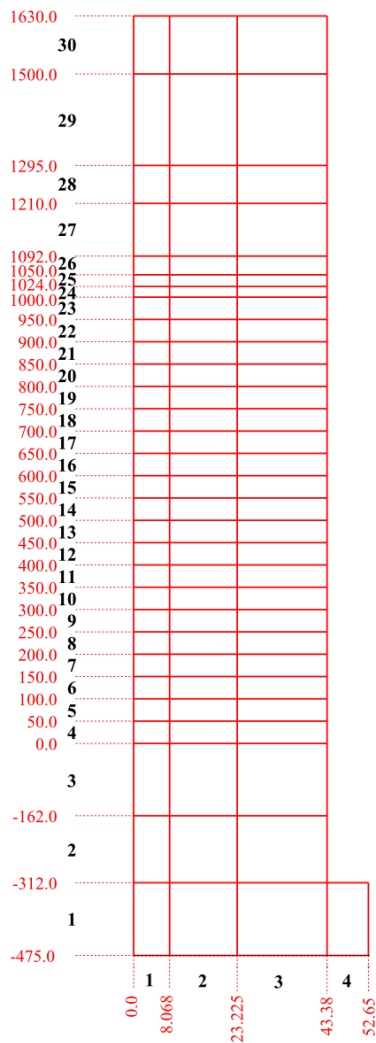
Obrázek A2: Simulátor vyhřívané tyče (vlevo) a simulátor nevyhřívané tyče (vpravo). [27]

Příloha B

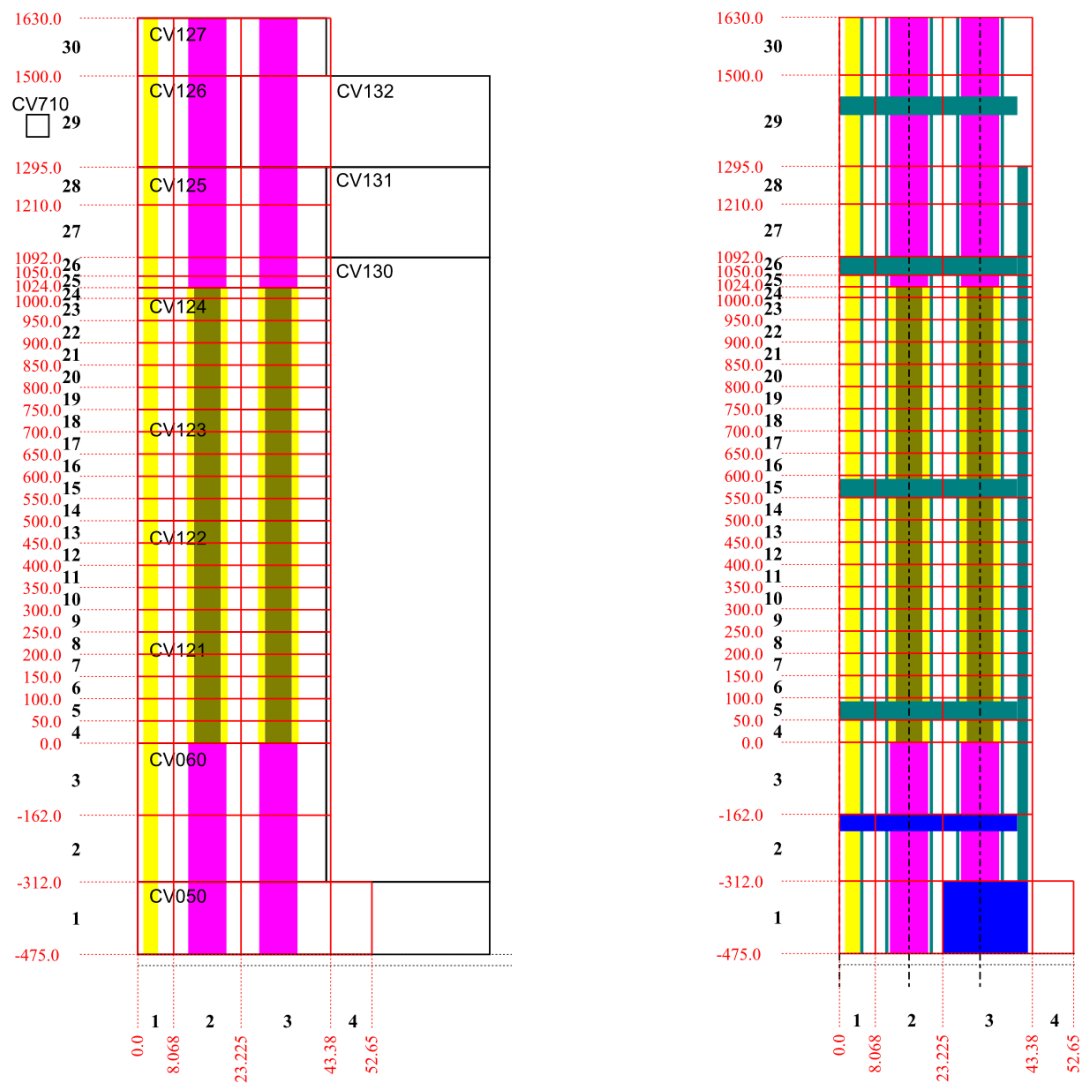
Nodalizace experimentálního zařízení QUENCH ve výpočtovém kódu MELCOR



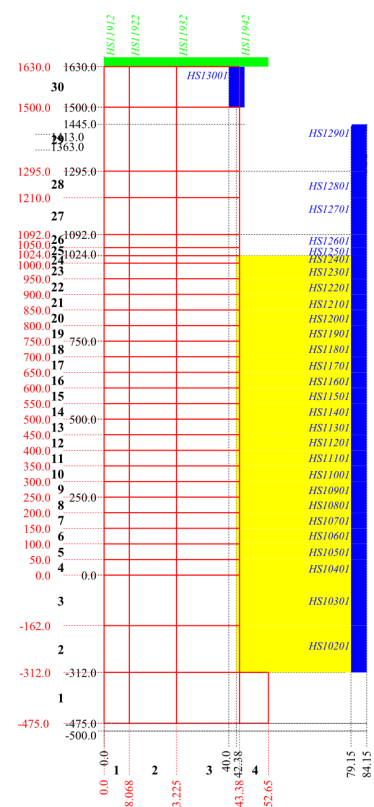
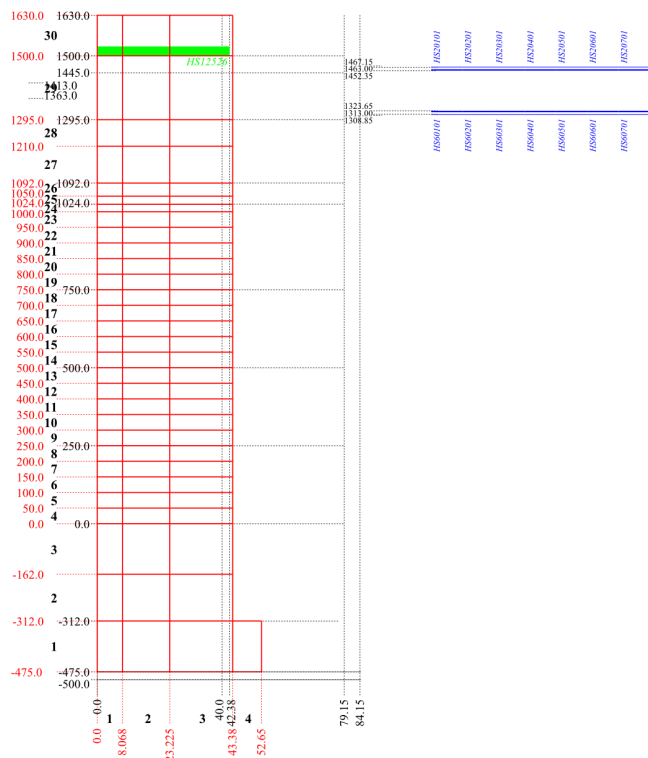
Obrázek B1: Kontrolní objemy knihovny CVH (nahore). Spojení kontrolních objemů CVH spojkami FL (dole).



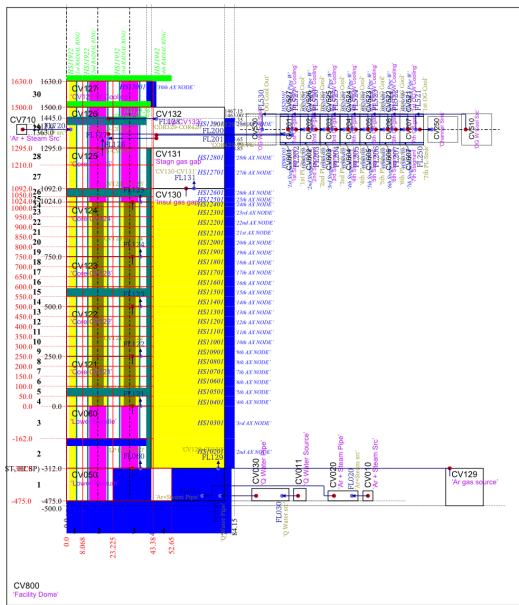
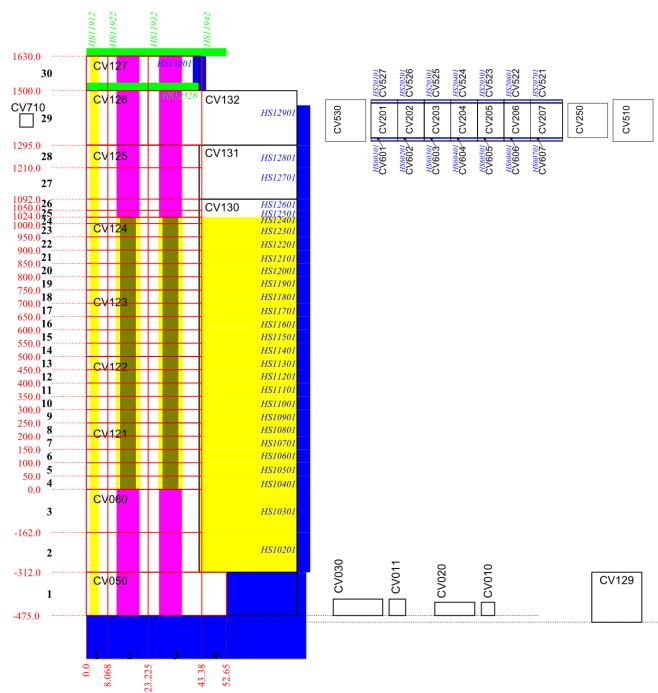
Obrázek B2: Buňky knihovny COR (vlevo) spolu s příslušnými kontrolními objemy CVH a umístěním paliva (vpravo).



Obrázek B3: Buňky knihovny COR spolu s příslušnými kontrolními objemy CVH, umístěním paliva a elektrického vyhřívání (vlevo). Buňky knihovny COR spolu s komponentami paliva, palivového pokrytí, pláště, nosných struktur a vyhřívání (vpravo).



Obrázek B4: Buňky knihovny COR spolu s tepelnými strukturami knihovny HS (vlevo). Buňky knihovny COR spolu s hraničními tepelnými strukturami knihovny HS (vpravo).



Obrázek B5: Buňky knihovny COR spolu s kontrolními objemy CVH, oběma druhy tepelných struktur knihovny HS, komponentami paliva, vyhřívání a dna TNR (nahore). Celková nodalizace (dole).