Odbor energetického inženýrství Fakulty strojního inženýrství VUT v Brně
Česká nukleární společnost a Mladá generace ČNS, o. s.
Český svaz vědeckotechnických společností

Jaderná energetika v pracích mladé generace - 2012

„Mikulášské setkání Mladé generace ČNS“

SBORNÍK REFERÁTŮ ZE SEMINÁŘE
5. až 7. prosince 2012, FSI VUT Brno

ISBN 978-80-02-02439-2

FSI VUT v Brně, Odbor energetického inženýrství
ČESKÁ NUKLEÁRNÍ SPOLEČNOST „12. Mikulášské setkání mladé generace ČNS“ 5. – 7. 12. 2012

PARTNEŘI SETKÁNÍ

Energovýzkum, spol. s r.o.

SKUPINA ČEZ

INVESTICE DO ROZVOJE VZDĚLÁVÁNÍ

SETKÁNÍ PROBÍHALO NA AKADEMICKÉ PŮDĚ
VYSOKÉHO UČENÍ TECHNICKÉHO V BRNĚ
FAKULTĚ STROJNÍHO INŽENÝRSTVÍ
ENERGETICKÉHO ÚSTAVU
ODBORU ENERGETICKÉHO INŽENÝRSTVÍ

A BYLO ORGANIZOVÁNO ZA PŘISPĚNÍ
České nukleární společnosti, o. s.
FSI VUT v Brně
a partnerů setkání

Přiložené CD obsahuje elektronickou verzi tohoto sborníku ve formátu .doc a .pdf, adresář s příspěvky jednotlivých autorů včetně jejich prezentační formy a další informace o semináři.

Organizátoři setkání děkují:

- Doc. Ing. Janu Fiedlerovi, Dr., vedoucímu Odboru energetického inženýrství za poskytnutí prostor pro pořádání semináře
- Prof. Ing. Oldřichu Matalovi, CSc., odbornému garantovi setkání
- Prof. Ing. Vladimíru Slugeňovi, DrSc., za přednášku – „Současná úloha univerzit v jaderném vzdělávání a výzkumu“
- Ing. Ladislavu Havlíčkovi, Ph.D., za přednášku – „Pokrytí dlouhodobých závazků provozovatele JE“
- Společnosti ČEZ, a.s. za umožnění exkurze ve Školicím středisku Brno – Lesná
- Pracovníkům Školicího střediska ČEZ za vřelé přijetí a kvalitní odborný výklad
- Firmě Energovýzkum, spol. s r.o, za pomoc s organizací setkání a za podporu při vytváření elektronické verze sborníku
- Společnosti ÚJV Řež, a.s a ČNS za významnou podporu setkání CYG a za slavnostní vyhlášení výsledků nejlepších diplomových prací v jaderných oborech za rok 2012
- Všem partnerům setkání za jejich finanční podporu
- Všem přednášejícím za jejich příspěvky
- Všem zúčastněným za pozornost

OBSAH

OBSAH 5

PROGRAM SETKÁNÍ 8

SEZNAM POSTEROVÝCH PREZENTACÍ 10

VYHODNOCENÉ DIPLOMOVÉ PRÁCE ZA ROK 2012 11

REFERÁTY OCENĚNÝCH DIPLOMANTŮ

VALIDACE VÝPOČTOVÉHO CFD MODELU TERMOHYDRAULICKÝCH PROCESŮ BAZÉNŮ SKLADOVÁNÍ VYHOŘELÉHO PALIVA NA JE TEMELÍN 12
Ondřej Burian

VYUŽITÍ IMPORTANCNÍ A CITLIVOSTNÍ ANALÝZY V MODELU PRAVDĚPODOBNÉHO HODNOCENÍ BEZPEČNOSTI, K PODPOŘE RIZIKOVĚ ORIENTOVANÉHO ROZHODOVÁNÍ PŘI DLOUHODOBÉM PROVOZU JADERNÝCH ELEKTRÁREN 19
Ondřej Dedera

PŘÍPRAVA BIOLICKY DEGRADABILNÍCH ESTERŮ TRITERPENICKÝCH KYSELIN 27
Petra Mičolová

MODELOVÁNÍ PROUDĚNÍ CHLADIVA V AKTIVNÍ ZÓNĚ REAKTORU POMOCÍ CFD 34
Antonín Povolný

POROVNANIE VYPOČTOV PALIVOVÝCH KAZIET S VYOHRIEVAJÚCIM GADOLÍNIOVÝ ABSORBÁTOROMV KÓDOCH SCALE A MCNP 40
Andrej Salaj

OVĚŘENÍ NOVÉHO ROZVÁDĚCÍHO KOLEKTORU UVNITŘ BARBOTÁŽNÍ NÁDRŽE NA BLOCÍCH ETE 48
František Tlamsa

STANOVENÍ EMISE NEUTRONOVÉHO ZDROJE 55
Petr Vácha

SOUČASNÝ STAV VÝZKUMU V OBLASTI JADERNÉ ENERGETIKY NA ÚSTAVU ELEKTROENERGETIKY FEKT VUT V BRNĚ 62
Štěpán Foral

INDUKČNÍ TAVENÍ VE STUDENÉM KELÍMKU 67
Pavel Votava

OXIDACE V TAVENINĚ SOLI PRO ZNEŠKODŇOVÁNÍ ORGANICKÝCH RADIOAKTIVNÍCH A NEBEZPEČNÝCH ODPADŮ 72
Petr Kovařík

RADIAČNÍ REDUKCE NEPTUNIA(VI) V ROZTOCÍCH KYSELINY DUSIČNÉ …….. 79
Martin Přeček

PERSPEKTÍVNE OCELE PRE NOVÚ GENERÁCIU JADROVÝCH REAKTOROV ……. 85
Iveta Bartošová

URČOVANIE RADIAČNÝCH PARAMETROV PRI LIKVIDÁCII JADROVÝCH REAKTOROV 91
Amine Bouhaddane

STRUČNÝ PREHĽAD PROBLEMATIKY DEMONTÁŽE VEĽKÝCH KOMPONENTOV V PROCESE VYRAĎOVANIA JADROVÝCH ELEKTRÁRNÍ Z PREVÁDZKY 97
Martin Hornáček

RECYKLÁCIA KOVOVÝCH RÁDIOAKTÍVNYCH MATERIÁLOV Z VYRAĎOVANÝCH JADROVÝCH ZARIADENÍ POMOCOU PRETAVBY – SÚČASNÝ STAV, PERSPEKTÍVY A MOŽNOSTI VYUŽITIA ……..…. 103
Andrej Slimák

STUDIUM KOROZNÍCH PROCESŮ PRO HLUBINNÉ ÚLOŽIŠTĚ V ČR ……..… 108
Tomáš Černoušek

DETEKCE A MĚŘENÍ IONIZUJÍCÍHO ZÁŘENÍ V CENTRU NAKLÁDÁNÍ S RADIOAKTIVNÍMI ODPADY …… 115
Josef Mudra

PROBLEMATIKA VYSOKOTEPLONÍ KOROZE ZIRKONIA …… 120
Jan Škarohlíd

VPLYV PRÍDAVKU FLUORIDU CHROMITÉHO DO MODELOVEJ TAVENINY $(LIF\text{-}NAF\text{-}KF)_{EUT.}$ NA KORÓZIU ZLIATINY INOLOY 800H/HT …… 123
Viliam Pavlík

MODERNIZACE PARNÍCH TURBÍN JE DUKOVANY ……..…… 127
Pavel Pánek

ÚDRŽBA ČERPADEL NA JE S VVER …….. 131
Stanislav Klimek

ROZEBÍRATELNÉ SPOJE V PRIMÁRNÍM OKRUHU JE S VVER …… 135
Pavel Svoboda

SEPARACE A STANOVENÍ TRANSPLUTONIOVÝH PRVKŮ ……..….. 141
Pavel Bartl

ANALÝZA VLIVU NEJISTOT URČENÍ KOEFICIENTU NÁSOBENÍ PRO PALIVA S VYHOŘÍVAJÍCÍM ABSORBÁTOREM ……...….. 146
Jan Frýbort

MODELOVÁNÍ TRANSPORTU NEUTRONŮ S VYUŽITÍM PDR SUDÝCH ŘÁDŮ ……..… 152
Milan Hanuš

ELEKTROCHEMICKÝ MONITORING KOROZE OCELI 1.4551 VE VODNÉM PROSTŘEDÍ ……. 157
Lukáš Nesvadba

POZITRÓNOVÁ ŠTÚDIA FE-CR OCELÍ 162
Veronika Sabelová

VÝPOČET NAPJATOSTI PŘÍRUBOVÉHO SPOJE A TĚSNĚNÍ VÍKA PRIMÁRNÍHO KOLEKTORU PARNÍHO GENERÁTORU JADERNÉ ELEKTRÁRNY VVER 440 ……..… 166
Ing. Hugo Šen

JADERNÉ ZÁRUKY (NUCLEAR SAFEGUARDS) ……. 170
Ondřej Šťastný

HÉLIOVÁ IMPLANTÁCIA ODS OCELÍ ……...… 175
Jana Veterníková

PROGRAM SETKÁNÍ

Středa 5. 12. 2012

12:00 Oficiální zahájení setkání

12:00 - 12:10 Úvodní slovo pořadatelů a garanta setkání Prof. Ing. Oldřicha Matala, CSc.

12:10 Prezentace hosta setkání

12:10 - 13:00 Súčasná úloha univerzít v jadrovom vzdelávaní a výskume
(Prof. Ing. Vladimír Slugeň, DrSc.)

13:00 - 13:10 Diskuze s hostem

13:10 - 13:30 Přestávka

13:30 Prezentace prací mladých odborníků

13:30 - 13:45 Současný stav jaderného výzkumu na FEKT, VUT v Brně
(Foral Štěpán)

13:45 - 14:00 Indukční tavení ve studeném kelímku
(Votava Pavel)

14:00 - 14:15 Oxidace v tavenině soli
(Kovařík Petr)

14:15 - 14:30 Radiační redukce neptunia(VI) v roztocích kyseliny dusičné
(Přeček Martin)

14:30 - 15:00 Přestávka

15:00 - 15:15 Perspektivne ocele pre novú generáciu jadrovych reaktorov
(Bartošová Iveta)

15:15 - 15:30 Určovanie radiačných parametrov pri likvidácii jadrových reaktorov
(Bouhaddane Amine)

15:30 - 15:45 Stručný prehľad problematiky demontáže veľkých komponentov v procese vyradovania jadrových elektrarní z prevádzky
(Hornáček Martin)

15:45 - 16:00 Úprava kovových rádioaktívnych materialov z vyraďovaných jadrových zariadení pomocou prestavby – súčasný stav, perpektívy a možnosti
(Slimák Andrej)

16:00 Ukončení prezentací prvního dne setkání

18:30 Kasematy hradu Špilberk – posléze možnost posezení v hospůdce

Čtvrtek 6. 12. 2012 dopolední část

09:00 Předání cen a prezentace oceněných diplomantů

09:00 - 09:10 Předání cen oceněným diplomantům
(Mgr. Miroslava Schichová, Mgr. Martin Matas, Ing. Václav Bláha, CSc.)

09:10 - 09:30 Příprava biologicky degradabilních esterů triterpenických kyselin
(Mičolová Petra)

09:30 - 09:50 Stanovení emise neutronového zdroje pomocí metody manganové lázně
(Vácha Petr)

09:50 - 10:10 CFD výpočtový model bazénu skladování použitého paliva na JE Temelín
(Burian Ondřej)

10:10 - 10:30 Importační míry v PSA
(Dedera Ondřej)

10:30 - 10:50 Ověření nového rozváděcího kolektoru uvnitř barbotážní nádrže na blocích ETE (Tlamsa František)

10:50 - 11:00 Přestávka

11:00 Prezentace hosta setkání

11:00 - 11:50 Pokrytí dlouhodobých závazků provozovatele JE (Ing. Ladislav Havlíček, Ph.D.)

11:50 - 12:00 Diskuze s hostem

12:00 - 13:30 Oběd - Restaurace KANAS

Čtvrtek 6. 12. 2012 odpolední část

14:00 Prezentace prací mladých odborníků

14:00 - 14:15 Studium korozních procesů pro hlubinné uložiště v ČR (Černoušek Tomáš)

14:15 - 14:30 Detekce a měření ionizujícího záření v Centru nakládání s radioaktivními odpady (Mudra Josef)

14:30 - 14:45 Problematika vysokoteplotní oxidace zirkonia (Škarohlíd Jan)

14:45 - 15:15 Přestávka (Poster sekce)

15:15 - 15:30 Vplyv prídavkov fluoridu chromitého do modelovej taveniny (LiF-NaF-KF) eut. Na koróziu zliatiny Incoloy 800H/HT (Pavlík Viliam)

15:30 - 15:45 Určení seizmického zatížení pomocí českých technických norem a Uniform Building Code (Rychecký Drahomír)

15:45 - 16:00 Modernizace parních turbín elektrárny Dukovany (Pánek Pavel)

16:00 - 16:30 Přestávka (Poster sekce)

16:30 - 16:45 Údržba čerpadel na JE Dukovany (Klimek Stanislav)

16:45 - 17:00 Rozebíratelné spoje v primárním okruhu JE s VVER (Svoboda Pavel)

17:00 Ukončení oficiální části setkání

19:00 Večerní sekce – Restaurace KANAS

Pátek 7. 12. 2012

09:00 Exkurze

08:15 - 08:20 Sraz účastníků exkurze u Hotelu PALACKÝ

09:00 - 12:00 Exkurze ve Školícím středisku ČEZ, Brno-Lesná

13:00 Možnost společného obědu účastníku exkurze (restaurace THALIE v centru města, každý si hradí sám)

SEZNAM POSTEROVÝCH PREZENTACÍ

[1] Separace a stanovení transplutoniových prvků
(Pavel Bartl)

[2] Analýza vlivu nejistot určení koeficientu násobení pro paliva s vyhořívajícím absorbátorem
(Jan Frýbort)

[3] Použití PDR sudých řádů pro aproximaci transportní rovnice neutronů
(Milan Hanuš)

[4] Elektrochemický monotoring koroze oceli 1.4551 ve vodném prostředí
(Lukáš Nesvadba)

[5] Modelování proudění chladiva v aktivní zóně reaktoru pomocí CFD
(Antonín Povolný)

[6] Příspěvek projektu ELI Beamlines ke studiu velmi rychlých reakcí v radiační chemii
(Martin Přeček)

[7] Pozitrónová studia Fe-Cr ocelí
(Veronika Sabelová)

[8] Výpočet napjatosti přírubového spoje a těsnění víka primárního kolektoru parního generátoru jaderné elektrárny VVER 440
(Hugo Šen)

[9] Jaderné záruky
(Ondřej Šťastný)

[10] Héliová implantácia ODS ocelí
(Jana Vaterníková)

DIPLOMOVÉ PRÁCE V JADERNÝCH OBORECH OCENĚNÉ V ROCE 2012

Na Mikulášském setkání CYG na VUT v Brně byly dne 6. prosince 2012 vyhlášeny nejlepší práce v jaderných oborech za rok 2012. Oceněny byly následující práce:

Kategorie A - Bakalářské práce

I. místo

Antonín Povolný
Modelování proudění chladivav aktivní zóně reaktoru pomocí CFD

II. místo

Petra Mičolová
Příprava biologicky degradabilních esterů triterpenických kyselin

III. místo

Petr Vácha
Stanovení emise neutronového zdroje

Kategorie B - Diplomové práce

I. místo

Ondřej Burian
Validace výpočtového CFD modelu termohydraulických procesů bazénů skladování vyhořelého paliva na JE Temelín

Ondřej Dedera
Využití importační a citlivostní analýzy v modelu pravděpodobného hodnocení bezpečnosti, k podpoře rizikově orientovaného rozhodování při dlouhodobém provozu jaderných elektráren

II. místo

František Tlamsa
Ověření nového rozváděcího kolektoru uvnitř barbotážní nádrže na blocích ETE

III. místo

Andrej Salaj
Porovnanie vypočtov palivových kaziet s vyohrievajúcim gadoliniový absorbátoromv kódoch SCALE a MCNP

REFERÁTY OCENĚNÝCH DIPLOMANTŮ

CFD VÝPOČTOVÝ MODEL BAZÉNU SKLADOVÁNÍ POUŽITÉHO PALIVA NA JE TEMELÍN A JEHO VALIDACE

Ondřej Burian, Pavel Zácha, Václav Železný
ČVUT Praha
Fakulta strojní, Ústav energetiky

Abstrakt

Tento příspěvek pojednává o CFD výpočtového modelu bazénu pro skladování použitého jaderného paliva na JE Temelín a jeho validaci na základě naměřených dat naměřených na reálném zařízení. Dále jsou uvedeny výsledky provedených výpočtů pro ustálený stav podávající představu o rozložení teploty v skladovacím bazénu.

1. Úvod

Bazén pro skladování použitého paliva (dále BSVP[1]) slouží k dočasnému uložení použitého jaderného paliva bezprostředně po jeho vyvezení z jaderného reaktoru. Mimo toho plní řadu dalších funkcí spojenou spojených se skladováním a manipulací s čerstvým a použitým palivem.
Funkce plněné BSVP na JE Temelín

- Dočasné skladování použitého paliva
- Dočasné skladování poškozeného použitého paliva v hermetických pouzdrech
- Dočasné skladování čerstvého paliva v režimech výměny paliva
- Dočasné skladování vyhořelého paliva při přeskládávání AZ
- Umístění systému spping off – line
- Umístění kontejneru s čerstvým palivem v režimech výměny paliva
- Umístění kontejneru pro použité palivo v režimech výměny paliva
- Umístění stanu inspekcí a oprav palivových souborů

Ve snaze zvýšit bezpečnosti provozu a životnosti výše totho zařízení bylo rozhodnuto provozovatelem JE Temelín zadat externí společnosti (TES s.r.o) vypracování analýz rozložení teploty v BSVP v normálních i abnormálních provozních stavech (např. selhání některé armatury chladicího systému TG).

Znalost rozložení teploty v těchto stavech umožňuje jednak posoudit tepelné zatížení paliva a tak posoudit riziko jeho poškození při případném selhání chlazení a předpovídat průběh případných havarijních stavů. Při normálním provozu nesmí teplota bazénové vody přesáhnout 50°C.

Neméně významná je pak znalost rozložení teploty v BSVP z důvodu posouzení tepleného zatížení oblicovky (viz kap. 0) cože významně ovlivňuje její životnost.

Protože analytický výpočet rozložení teploty v BSVP by byl vzhledem ke komplikovaným rychlostním poměrům proudění velmi složitý, bylo přistoupeno k numerickému řešení úlohy pomocí CFD výpočtového kódu ANSYS Fluent 13r a validaci vytvořeného výpočtového modelu pomocí dat naměřených na skutečném zařízení.

Právě o validaci zmíněného výpočtového modelu pojednává následující text.

2. Popis BSVP na JE Temelín

BSVP je součástí každého výrobního bloku na JE Temelín, nachází se v kontejnmentu v bezprostřední blízkosti šachty reaktoru (viz Obr. 2 a Obr. 3), se kterou je propojen hradítkem uzavíratelným výřezem ve stěně.

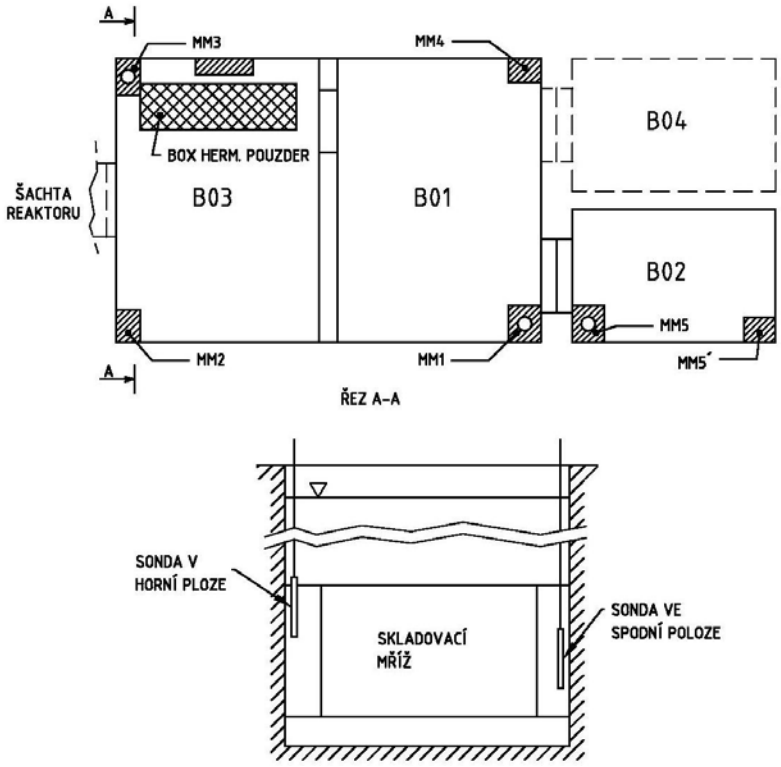
[1] V textu je použita zkratka BSVP, která vychází z původního termínu pro použité palivo - vyhořelé. Protože je tato zkrátka stále používána například v původní dokumentaci, byla převzata i v tomto textu.

Konstrukčně je BSVP členěn do čtyř zaplavitelných shora otevřených sekcí B01 – B04. Tyto sekce jsou z provozu reaktoru zaplaveny na úroveň L1 (8,13 m) a celý BSVP je shora překryt krycími deskami. Během odstávky je hladina v BSVP zvýšena na úroveň L2 (15,5 m), hradítko oddělující šachtu reaktoru je vyjmuto a krycí desky jsou sejmuty, aby bylo možno volně manipulovat s PS pomocí zavážecího stroje.

Sekce B01-B03 slouží k uložení PS s použitým nebo čerstvým palivem, v sekci B03 se také nachází box hermetických pouzder (SODS) pro uložení poškozených (nehermetických) PS. Celková kapacita BSVP je 705 skladovacích pozic. Z toho 680 skladovacích pozic se nachází ve třech kompaktních skladovacích mřížích (viz Obr. 1), kde jsou skladovací pozice tvořeny trubkami šestiúhelníkového průřezu z borové oceli, do kterých jsou zasunuty skladované PS. Tyto trubky jsou shora i zdola otevřeny, tak aby byl umožněn volný průtok chladící vody. Z těchto 680 pozic musí vždy zůstat 163 pozic neobsazených pro případ havarijního vyvezení AZ.

Obr. 1 - Kompaktní skladovací mříž (převzato z www.skoda-js.cz)

Obr. 2 - Pohled do reaktorového sálu JE Temelín, vlevo je vidět zakrytý BSVP a zavážecí stroj, vpravo se nachází šachta reaktoru. (převzato z www.skoda-js.cz)



Obr. 3 - Schématické znázornění dispozičního členění BSVP na JE Temelín s vyznačením měřících míst validačního měření

Zbylých 25 skladovacích pozic se pak nachází v boxu hermetických pouzder a je tvořeno hermetickými trubkami (pouzdry), kam lze umístit poškozené PS.

Sekce B04 slouží k uložení kontejneru s čerstvým palivem nebo pro kontejner (obalový soubor) CATOR na použité palivo.

Vzhledem k tomu, že vlivem rozpadu produktů štěpení dochází v PS s použitým palivem k poměrně intenzivnímu vývinu zbytkového tepla, musí být toho vznikající teplo odváděno účinným systémem chlazení. Řádově se jedná o výkon jednotek až desítek kW_t dle stupně vyhoření, který musí být odváděn z jednoho PS.

Na JE Temelín slouží o odvodu zbytkového tepla samostatný systém TG, odvádějící zbytkové do rozvodu systému TVD. Tento systém je tvořen třemi nezávislými smyčkami, z nichž každá je dimenzována pro odvod zbytkového tepla ze všech sekcí BSVP při největším možném zavezeném tepleném výkonu. Jedná se o systém kategorie 1E se zálohováním 3 x 100%.

Technicky je odvod tepla řešen rozvodným systémem studené vody na dně sekcí B01, B02, B03. Tímto rozvodem je studená voda přiváděna pod kompaktní skladovací mříže s uloženými PS[2]. Studená voda pak dále stoupá vzhůru přes skladované PS, kde dochází k jejímu ohřevu vlivem smíšené konvekce[3] zbytkového tepla z uložených PS s použitým palivem. Odvod ohřáté vody je pak realizován jednoduchým odvodním potrubím ve stěně každé se sekcí nacházejících se několik centimetrů pod úrovní hladiny L1.

Stěny BSVP jsou tvořeny dvojitým obložením ocelovým plechem („oblicovkou“). Vnější vrstva „oblicovky“ je z nerezové oceli. Vnitřní vrstva, přilehající na betonové stěny kontejnmentu, je z uhlíkové oceli. Mezi oběma vrstvami je záměrně ponechána mezera několik cm pro indikaci případných úniků. Úniky z této mezery jsou odvedeny do speciální kanalizace.

3. Popis výpočtového modelu

Výpočtový model byl vytvořen v programu Gambit 2.4 (více viz [1]). Geometrie výpočtového modelu musela být oproti reálně předloze výrazně zjednodušena z důvodu omezení počtu buněk na jeden milion. Sekce B04, které neobsahuje žádné zdroje tepla, tak nebyla vůbec modelována, došlo k podstatnému zjednodušení oblasti skladovacích mříží a muselo být použito poměrně hrubé sítě.

Zjednodušení oblasti skladovacích mříží bylo provedeno úplným nahrazením skladovacích mříží skupinou objemů (sektorů) vyplněných tzv. porézní zónou. Definováním parametrů[4] porézní zóny pak lze modelovat přibližně stejné průtočné a energetické poměry jako při proudění skrz reálné skladovací hnízdo. Zadáním zdrojového členu porézní zóny je pak modelován ohřev chladící vody protékající skrz myšlenou skladovací mříž. Rozdělením jednotlivých mříží do sektorů, kdy každý sektor představuje skupinu několika skladovacích hnízd, pak lez dosáhnout alespoň částečného modelování rozložení tepelného výkonu v jednotlivých mřížích.

Dále bylo zcela upuštěno od modelování rozvodného systému studené mody. Místo toho mohl být díky přítomnosti homogenizační desky vstup studené vody modelován tak, že studená voda vstupuje do každé sekce celou stěnou tvořící dno sekce. Přítomnost homogenizační desky je modelována funkcí „porrous – jump[5]“.

[2] Pro rovnoměrné rozvedení chladící vody mezi všechny skladovací pozice je mezi přívody studené vody a dolním koncem skladovací mříže umístěna děrovaná homogenizační deska
[3] Vlivem velmi malých rychlostní proudění se jedná o smíšenou konvenci s dominantním podílem přirozené konvekce
[4] Součinitele viskózního a setrvačného odporu, porozita, zdrojový člen, vektory propustnosti
[5] Simuluje nekonečně tenkou porézní desku o definovaném hydraulickém odporu

Ostatní zjednodušení se pak týkala boxu hermetických pouzder a přívodních potrubí studené vody. Tyto prvky pak byly simulovány jako nemodelované prázdné objemu se stěnou typu „Shadow-Wall[6]“. Tato zjednodušení však neměla takový význam jako výše popsané.

Prostup tepla stěnami BSVP nebyl vzhledem k zanedbatelným hodnotám modelován, byla použita adiabatická stěna. Prostup tepla hladinou byl modelován. Na základě provedených citlivostních výpočtů byla ztráta hladinou stanovena na 0,9 $kW.m^{-2}$.

Protože je modelován poměrně velký geometrický objem (přes 1050 m^3) a omezení počtu buněk bylo z důvodu dosažení rozumně dlouhých výpočtových časů stanoveno na jeden milion, bylo nutno při tvorbě výpočtové sítě přijmout poměrně striktní omezující opatření.

Došlo tak k použití poměrně hrubé výpočtové sítě s převážně strukturovaným schématem sítě „Hex-Map[7]“. Nestrukturovaná síť „Hex-Cooper[8]“ a „Ted-Hybrid[9]“ byla použita pouze v nejnutnějších případech, například v oblasti výřezů ve skladovacích mřížích.

U takto vytvořené sítě pak průměrný objem buněk činil 0,001 m^3. V případě strukturované sítě se tedy jednalo o buňky o hraně 100 mm. Jak se později ukázalo, při charakteru proudění v BSVP činila taková velikost buněk již problémy se stabilitou výpočtu.

Na tomto místě je důležité podotknout, že výše popsaná zjednodušení bylo možno provést, protože byl požadován výpočet rozložení teploty v celém objemu BSVP. Pokud by byla například požadována přesnější znalost rozložení teploty v oblasti skladovacích mříží, bylo by nutno sestavit zcela jiný a přesnější model, jehož objem by mohl být naopak snížen vynecháním horního volného prostoru.

4. Popis měření vertikálních teplotních profilů na reálném BSVP

Série validačních měření byla externí společností (TES s.r.o) provedena v období od července do září 2011 na 1. bloku JE Temelín (viz [3] a [4]). V rámci těchto měření bylo provedeno ve stanovených měřících místech měření vertikálních teplotních profilů.

Tato měření byla rozdělena do čtyř etap, kdy byly monitorovány ustálené provozní stavy BSVP lišící se výškou hladiny, množstvím paliva v BSVP, polohami hradítek a provozním režimem systému TG. Z těchto čtyř etap byla pak vybrána data naměřená ve třetí etapě jako nejvhodnější pro provedení srovnávacího validačního výpočtu CFD modelu. Ve třetí etapě měření byla hladina v BSVP na úrovni L2 a všechna hradítka a krycí desky byly sejmuty.

Bohužel z bezpečnostních a režimových důvod nebylo provozovatelem JE Temelín povoleno provést měření nad obsazenými ani volnými pozicemi v žádné sekci, ale pouze v rohových v obdélníkových výřezech v rozích skladovacích mříží. Těmito výřezy bylo možno spustit měřící sondu až na úroveň skladovaného paliva a naměřit tak vertikální teplotní profil v sedmi bodech. Pozice těchto měřících míst, označených jako MM1-MM5´, je patrná na Obr. . konstantami na výslednou hodnotu teploty a použita k validaci výpočtového modelu. Nejistota tohoto měření byla stanovena na ±0,4 °C.

5. Výpočet CFD modelu

Validační výpočet byl proveden pro stejné okrajové podmínky, za kterých bylo provedeno měření vertikálních teplotních profilů na JE Temelín. Výsledky tohoto výpočtu pak umožňovali provést porovnáním s naměřenými hodnotami stanovit přesnost vytvořeného CFD modelu (viz [2]).

[6] Stěna s nulovým prostupem tepla a hmoty
[7] Strukturovaná síť tvořená šestistěnnými buňkami
[8] Nestrukturovaná síť tvořená šestistěnnými buňkami
[9] Nestrukturovaná síť tvořená čtyřstěnnými buňkami

Vzhledem k charakteru řešeného problému nebylo možné provést celý výpočet se stejným nastavením řešičů CFD výpočtového programu ANSYS Fluent 13r. Díky hrubé výpočtové síti a velmi malé rychlosti proudění se model vyznačoval velmi malou stabilitou se sklony k divergenci řešení.

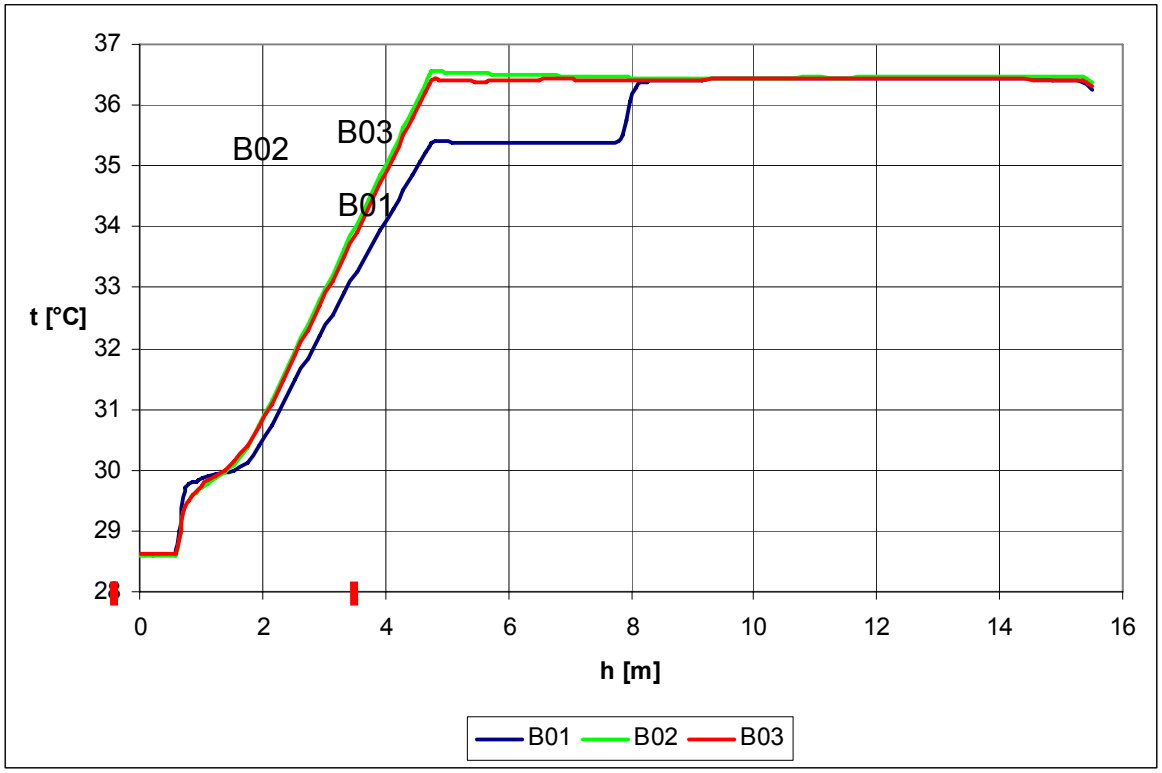
Proto bylo přistoupeno k výpočtu s postupným přenastavováním řešiče turbulencí (viz Tab. 1). Prvních 50 000 iterací byl použit segregovaný řešič turbulencí „pressure based“ pro uklidnění výpočtu. Zbylých 80 000 iterací byl použit implicitní řešič turbulencí „density based“, který výrazně napomohl ke zpřesnění výpočtu. Při použití tohoto řešiče byla také pomalu zvyšována hodnota Courantova čísla, jehož vyšší hodnota zvyšuje rychlost výpočtu, ale snižuje stabilitu.

iterační interval	přesnost výpočtu	řešič turbulencí	„Courantovo číslo“
0 – 5 000	normální	„pressure based“	-
5 000 – 50 000	„double precision“	„pressure based“	-
50 000 – 100 000	„double precision“	„density based“	0,5
100 000 – 130 000	„double precision“	„density based“	2

Tab. 1 - Průběžná nastavení řešičů během výpočtu

Paralelní výpočet byl proveden na 8 čtyřjádrových procesorech AMD Opteron 8354, 2,2 GHz, paměť 64 GB RAM. Délka výpočtu byla 128 hodin 31 minut. Což představuje při 8 procesorech téměř 1029 hodin strojového času.

Jedním z výstupů validačního výpočtu byl průběh teploty po výšce (vertikální teplotní profil) ve středech sekcí (viz
Obr. 4).



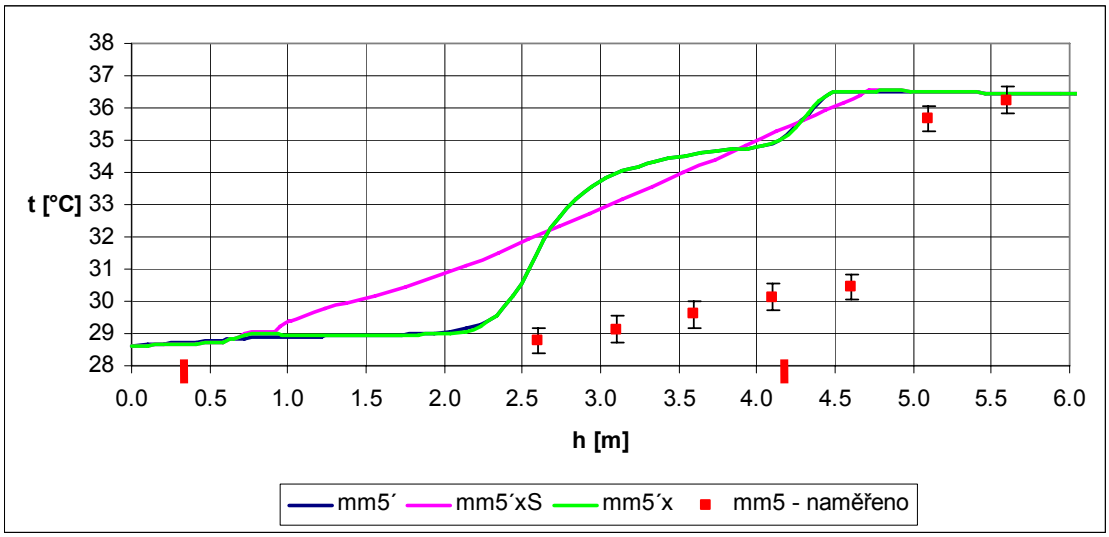
Obr. 4 - Vertikální průběhy teplot uprostřed jednotlivých sekcí. Poloha skladovací mříže je naznačena červenými ryskami na ose x.

O rozložení teploty v BSVP na základě validačního výpočtu můžeme učinit tyto závěry:

1. K ohřevu bazénové vody dochází pouze na úrovni mezi dolním a horním koncem skladovací mříže. V oblasti pod a nad mříží je teplota konstantní. Průběh ohřevu bazénové vody v oblasti skladovací mříže je podle předpokladu monotónně rostoucí.
2. Je vidět, že nejvyšší teplota vody v BSVP je v místě na výstupu ze sekcí. Podle předpokladů dále po výšce teplota vody velmi mírně poklesne vlivem promísení vod o různé teplotě z jednotlivých sektorů a dále až do místa propojení jednotlivých sekcí je teplota konstantní.
3. V místě propojení jednotlivých sekcí dochází k dalšímu mísení vod o různé teplotě a nad tímto místem je již teplota vody až k hladině.
4. V oblasti hladiny je vidět mírný pokles teploty, který je zapříčiněný okrajovou podmínkou na hladině (sdílením tepla). Je ale vidět, že pokles teploty u hladiny je pouze velmi malý a na rozložení teploty v BSVP nemá výrazný vliv.
5. Pokud se zaměříme na průběhy teploty v jednotlivých sekcích, vidíme, že jsou pro každou sekci různé podle toho, jak velký je tepelný výkon paliva uloženého v sekci. V místě propojení všech tří sekcí však dochází k promísení vod a vyrovnání všech tří průběhů na stejnou teplotu. Toto vyrovnání je nejmarkantnější u průběhu teplot sekce B01, ve které je menší tepelný výkon.

6. Validace CFD modelu

Z provedeného validačního výpočtu byly vyexportovány vertikální teplotní profily v měřících místech MM1 – MM5´. Tyto teplotní profily pak byly vyneseny do grafu společně s naměřenými hodnotami. Jako příklad bylo vybráno měřící místo MM5´ na Obr. 5.



Obr. 5 - Porovnání naměřených a vypočítaných vertikálních teplotních profilů v měřícím místě MM5´. Poloha skladovací mříže je naznačena červenými ryskami na ose x.

Při bližší analýze vynesených grafů bylo zjištěno, že ve všech případech (měřících místech) spolu nekorespondují naměřené a vypočítané hodnoty. Rozdíl výsledků se pohybuje okolo 2 -3°C v extrémním případě až o 5°C. Tento rozdíl nemohl být zapříčiněn chybou měření, která byla stanovena na ±0,4°C.

V rámci další analýzy pak byly vyneseny do grafů i teploty ze širšího okolí měřících míst, konkrétně v okolí geometrie tvořící stěnu mezi výřezem a skladovací mříží. Ukázalo se, že průběhy teploty v blízkosti stěny ze strany skladovací mříže (v Obr. označeny indexem xS) mají výrazně jiný tvar (lineární), než průběhy teploty ze strany výřezu (v Obr. označeny x), což je z fyzikálního hlediska nemožné.

7. Závěr

Z provedené analýzy rozložení teploty v prostoru výřezů skladovací mříže vyplynulo, že vlivem nesprávného nastavení přestupu tepla mezi geometrii představující skladovací mříž a geometrii představující vodní objem ve výřezech není v této části modelu dosaženo reálného rozložení teploty. Hlavním důvodem této nepřesnosti je omezená velikost sítě, která byla vytvořena původně pro jiný typ výpočtů. V oblasti výřezů ve skladovací mříži je tedy modle popsán nedostatečně.

Naopak z vypočítaných průběhů teploty ve skladovací mříži a z naměřených hodnot leze usuzovat, že v této části je model popsán dobře, protože oba dva průběhy, naměřený i vypočítaný, mají lineární průběh.

Vzhledem k tomu, že předmětem prováděných výpočtů bylo hlavně rozložení teploty nad oblastí skladovacích mříží, nesnižuje nepřesnost v oblasti výřezů hodnotu všech předešlých výpočtů.

Výše popsané závěry byly použity při tvorbě nového modelu, jenž zde popsaný model výrazně překonává svou přesností.

8. Zkratky

AZ	- aktivní zóna
BSVP	- bazén skladování vyhořelého paliva
CFD	- Computational fluid dynamics (řešení úloh dynamiky tekutin, přenosu tepla a hmoty pomocí numerického řešení dif. rovnic s pomocí výpočetní techniky)
JE	- jaderná elektrárna
TVD	- technická voda důležitá
PS	- palivový soubor

9. Literatura

[1] BLAHA, Martin, Jan FRÉLICH, Pavel ZÁCHA, Václav ŽELEZNÝ, Karel GREGOR a Petr ROUPEC. TES s.r.o., *Analýza rozložení teplot v BSVP JE Temelín při různých kombinacích provozu chladících okruhů systému TG*. Třebíč, 2011.

[2] BURIAN, Ondřej, ČVUT Fakulta strojní, *Validace CFD modelu bazénu skladování vyhořelého paliva na základě naměřených dat*, Diplomová práce, Vedoucí práce Pavel Zácha, Praha, 2012

[3] BURIAN, Ondřej a Pavel ZÁCHA. *Validace CFD modelu bazénu skladování vyhořelého paliva na základě naměřených dat*. In: Sborník TechSoft Engineering ANSYS 2012. 2012. ISBN 978-80-905040-1-1.

[4] TUREK, Jiří. TES s.r.o. *Měření teplot v BSVP 1TG21B01,B02,B03*. Třebíč, 2011.

IMPORTANČNÍ MÍRY V PSA

Ondřej Dedera
AF-Consult Czech Republic s.r.o., Praha 4
(práce byla vypracována v ÚJV Řež a. s.)

Abstrakt

Tato práce řeší použití pravděpodobnostního hodnocení bezpečnosti (PSA) a analýz spolehlivosti pro podporu bezpečného a ekonomického provozu jaderné elektrárny. Práce se zaměřuje na řešení vybraných problémů použití analýz spolehlivosti a rizik provozu jaderné elektrárny v optimalizaci údržby zařízení.

Úvod do problematiky PSA

Pravděpodobnostní hodnocení rizik bylo jako metoda poprvé použito již v roce 1940 v leteckém průmyslu. V jaderné oblasti se hodnocení pomocí PSA uplatnilo poprvé v roce 1967. Z důvodu nedostatku vstupních dat a zkušeností nebyla tato metoda brána jako relevantní. Následné, již propracovanější studie a především nehoda na Three-Mile Islandu, jejíž události studie zahrnovaly, přispěly k uznání PSA odpovídajícím nástrojem pro hodnocení bezpečnosti jaderných elektráren. Primárně začalo být PSA používáno dozornými orgány pro získání přehledu o míře rizika. Dále jej začaly používat úřady, udělující licence. Předmětem bylo analyzování vlivu uvažovaných změn designu elektrárny a identifikace a pochopení slabých míst elektrárny. V některých případech se dokonce PSA začalo používat pro hodnocení designu nové elektrárny.

Jedním ze základních nástrojů tvorby modelu PSA je **Strom událostí**. Přehledně znázorňuje jednotlivé sekvence odezvy na vznik iniciační události (událost, která vyžaduje určitou reakci iniciovanou automatikami nebo operátorem pro převedení elektrárny do bezpečného a stabilního stavu) a jejich vzájemné vazby.

Dalším prvkem je takzvaný **Strom poruch**. Má opačnou logiku postupu analýzy než strom událostí (tzv. deduktivní). To znamená, že od nežádoucí – vrcholové události pomocí binární logiky stanovuje příčiny vzniku této vrcholové události. Konečné příčiny (tedy ty, od kterých celá událost vznikla) se nazývají Primární události. Ty jsou v dané fázi analýzy pro naplnění jejich cílů již dále nedělitelné a nesmí být na sobě závislé.

Importanční míry a jejich využití v PSA

Se stále narůstajícím důrazem na efektivní financování provozu jaderné elektrárny při zachování všech bezpečnostních, ale také výrobních aspektů, stoupá význam importančních měr v PSA. Ty slouží ke stanovení pořadí důležitosti jednotlivých komponent na základě jejich vlivu na příspěvek k celkovému riziku nehody či jiné nežádoucí události. Většinu aplikací importančních měr lze zařadit do těchto tří oblastí:

- (Re)Design – optimalizace designu přidáním či ubráním systému či komponenty
- Testy a opravy – optimalizace plánu údržby a zkoušek pro konkrétní design elektrárny
- Kontrola denní konfigurace- jaký bude vliv, pokud bude komponenta neprovozuschopná

Výsledek PSA tedy reprezentuje určité riziko. To může být vyjádřeno například frekvencí poškození aktivní zóny (CDF – core damage frekvency), očekávanou dávkou atd.

V současnosti se nejvíce používají následující dvě základní importanční míry, které používá i program Risk spectrum, pomocí něhož jsem vypracovával svojí práci:

RIF

Risk increase factor (nebo též RAW – risk achievement worth) je poměr spolehlivosti systému s nefungující komponentou x ku aktuální spolehlivosti.

$$RIF(x) = \frac{CDF(x=1)}{CDF_{\text{aktuální}}}$$

Je to tedy míra důležitosti komponenty x při hodnocení spolehlivosti dalšího provozu a lze z ní vyvozovat důležitost oprav komponenty. Vysoká hodnota RIF v praxi znamená vyšší důležitost komponenty.

Pokud je: RIF(x) = 1 - nemá porucha komponenty x na riziko žádný vliv
= 1,05 – zvýší se při poruše komponenty x CDF o 5%
= 2 – CDF se při poruše komponenty x zdvojnásobí

RIF téměř není funkcí nepohotovosti samotné komponenty x. Představuje odolnost zbytku systému proti výpadku komponenty x. Vysokou hodnotu RIF mají spolehlivé komponenty s důležitou funkcí.

Fussell-Vesely

Importance Fussel-Vesely (FV) komponenty x je hodnota, o kterou by se zmenšila CDF, pokud by komponenta x byla vždy k dispozici (to znamená, že by nikdy neselhala či nebyla v opravě)

$$FV(x) = \frac{CDF_{\text{aktuální}} - CDF(x=0)}{CDF_{\text{aktuální}}}$$

Praktické hodnoty FV tedy znamenají:

FV(x) = 0 - zlepšení spolehlivosti komponenty x nemá na výsledné riziko žádný vliv
= 0,2 - pokud by komponenta x vždy pracovala, klesne výsledné riziko o 20%

Nové importanční míry

Do současnosti nebylo uspokojivě vyřešeno mnoho otázek v oblasti importancí, jako například možné nasazení importančních měr založených na interakci několika současných změn parametrů. Stejně tak nebyla zcela vyřešena otázka vhodné importanční míry pro iniciační události, jejichž potenciál je, na rozdíl od primárních událostí popsán frekvencí výskytu (a nikoli podmíněnou pravděpodobností selhání). Naskýtá se tedy otázka, zda lze použít například míru RIF také pro hodnocení významnosti iniciačních událostí a jakou hodnotu dosazovat do vztahu pro RIF za frekvenci komponenty, která selhala. Tyto otázky se snaží řešit následující návrhy nových importančních měr.

Diferenční importanční míra (DIM)

Tato importanční míra byla vyvinuta pro stanovení dopadu předpokládaných změn systému, které ovlivní vlastnosti komponent či primárních událostí na riziko provozu. Na rozdíl od v praxi užívaných importancí jako FV, RIF atp. je tato metoda aditivní. To znamená, že DIM skupiny primárních událostí či parametrů je sumací individuálních hodnot DIM. Metoda se také snaží o hodnocení importancí iniciačních událostí.

Diferenční importanční míra (DIM) lze vyjádřit rovnicí:

$$DIM(x_i) = \frac{dR_{x_i}}{dR} = \frac{\frac{\partial R}{\partial x_i} dx_i}{\sum_j \frac{\partial R}{\partial x_j} dx_j}$$

DIM je část z celkového rizika R, která je způsobena změnou parametru x_i. Změna R závisí na tom, jak jsou parametry měněny. Uvažujme tyto dva případy: při analýze můžeme předpokládat způsobení změny všech

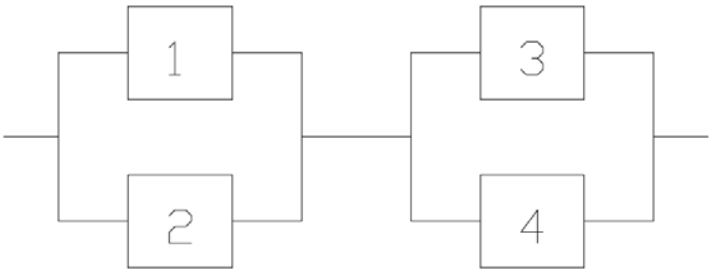
parametrů/pravděpodobností PU o stejnou malou hodnotu. Nebo můžeme dle jiného předpokladu hodnotit vliv změny, která všechny parametry/pravděpodobnosti PU změní o stejné procento. Tyto dvě situace nejsou ekvivalentní a musíme je rozlišovat. Rozlišujeme tedy uniformní a uniformní procentuální změnu. Při uniformní změně DIM(x_i) hodnotí parametry importance z hlediska malých změn, které jsou stejné pro všechny parametry. Při uniformní procentuelní změně DIM(x_i) hodnotí parametry dle jejich efektu na R, pokud jsou změněny o stejný díl jejich nominální hodnoty.

Diferenční importanční míra druhého řádu (DIM ^{II})

Klasická metoda DIM přes své prezentované výhody nezohledňuje interakce mezi jednotlivými komponentami. K tomuto účelu se jeví výhodná metoda DIM^{II}, diferenční importanční míra druhého řádu. Ta při hodnocení změn funkce systému v důsledku změn spolehlivostních parametrů zohledňuje interakce mezi dvojicí komponent.

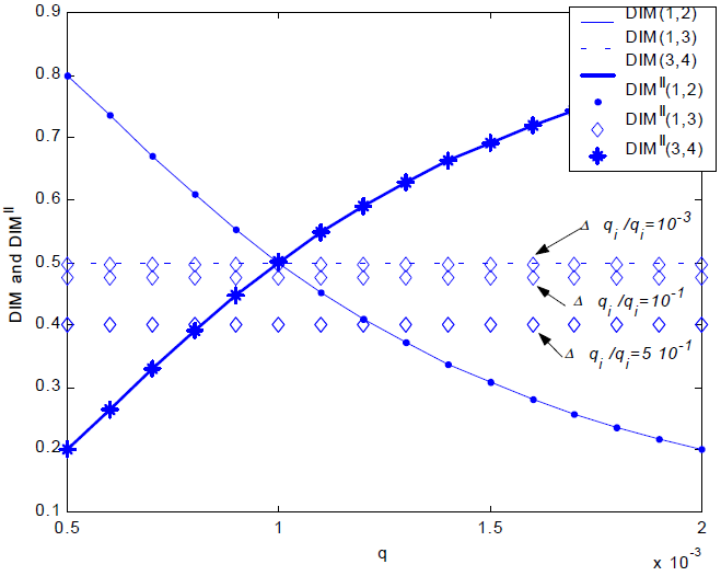
Porovnání DIM a DIM^{II}

Uvažujme jednoduchý systém jako je na Obr. 1. Nepohotovosti komponent nechť jsou $q_1 = q_2 = 10^{-3}$ a $q_3 = q_4 = q << 1$.



Obr. 1 - Schéma uspořádání komponent

Závislost DIM a DIM^{II} na q je vynesena na následujícím Obr. 2. Z důvodu symetrie systému z Obr. 1. jsou DIM(1,2), DIM(1,3) a DIM(2,4) stejné pro $q = 10^{-3} = q_1 = q_2$. Při změně nepohotovosti dvou komponent současně bychom očekávali rozdíl pro případ paralelně uspořádaných komponent (např. 1,2) a sériově (1,3). Takový rozdíl můžeme zjistit pomocí DIM^{II}. Pro případ $q \neq q_1 = q_2$, DIM(1,2)=2.DIM(1) a DIM(3,4) = 2.DIM(3). Avšak DIM(1,3) = DIM(2,4) je nezávislé na q.



Obr. 2 - Hodnoty DIM a DIM^{II} komponent 1-4 pro různé q

Uvažujme příklad, kdy $q = 10^{-3} = q_1 = q_2$. Zatímco stále platí DIM(1,2) = DIM(1,3) = DIM(3,4) = 0,5 tak $DIM^{II}(1,2) = DIM^{II}(3,4) > DIM^{II}(1,3)$ .Hodnocení provedené metodou DIM^{II} naznačuje, že současné zvyšování nepohotovosti komponent řazených paralelně (1,2) či (3,4) má větší dopad na nepohotovost systému, než stejná akce provedená na komponenty řazené sériově (1,3). Toto dává logicky smysl. Zhoršení komponent na jednom uzlu (paralelně řazených) má větší efekt na spolehlivost celého systému, než u komponent ležících na různých uzlech (sériově řazených).

Ověření vhodnosti použití metody citlivosti pro prioritizaci komponent

Existuje několik způsobů, jak v modelu PSA zavádět simulaci výpadku či zhoršení komponenty a hodnotit následné vlivy takových událostí. Konkrétně jsem se zaměřil na vhodnost prioritizace komponent dle importančních měr či citlivosti pro tlakovodní typ reaktoru. Prioritizace komponent znamená určení a seřazení komponent, jejichž výpadek nejvíce přispívá ke zvýšení celkového rizika. Tato definice platí v případě importancí. Pro prioritizaci komponent, jejichž zhoršení provozních vlastností nejvíce přispívá ke zvýšení celkového rizika, se s výhodou použije výpočet pomocí citlivosti. Pro výpočty importancí a citlivostí jsem použil program Risk Spectrum od firmy Scandpower.

Hlavní importanční míry, které využívá výpočetní program Risk spectrum předpokládají ve svých výpočtech buď komponentu fungující, či nefungující. To ale dle mého názoru neodpovídá reálnému stavu. U mnoha komponent během jejich životnosti totiž dochází spíše ke zhoršení jejich funkce (tak, jak dokládá teorie stárnutí), než přímo k jejich okamžitému výpadku bez jakýchkoliv předchozích provozních indikací.

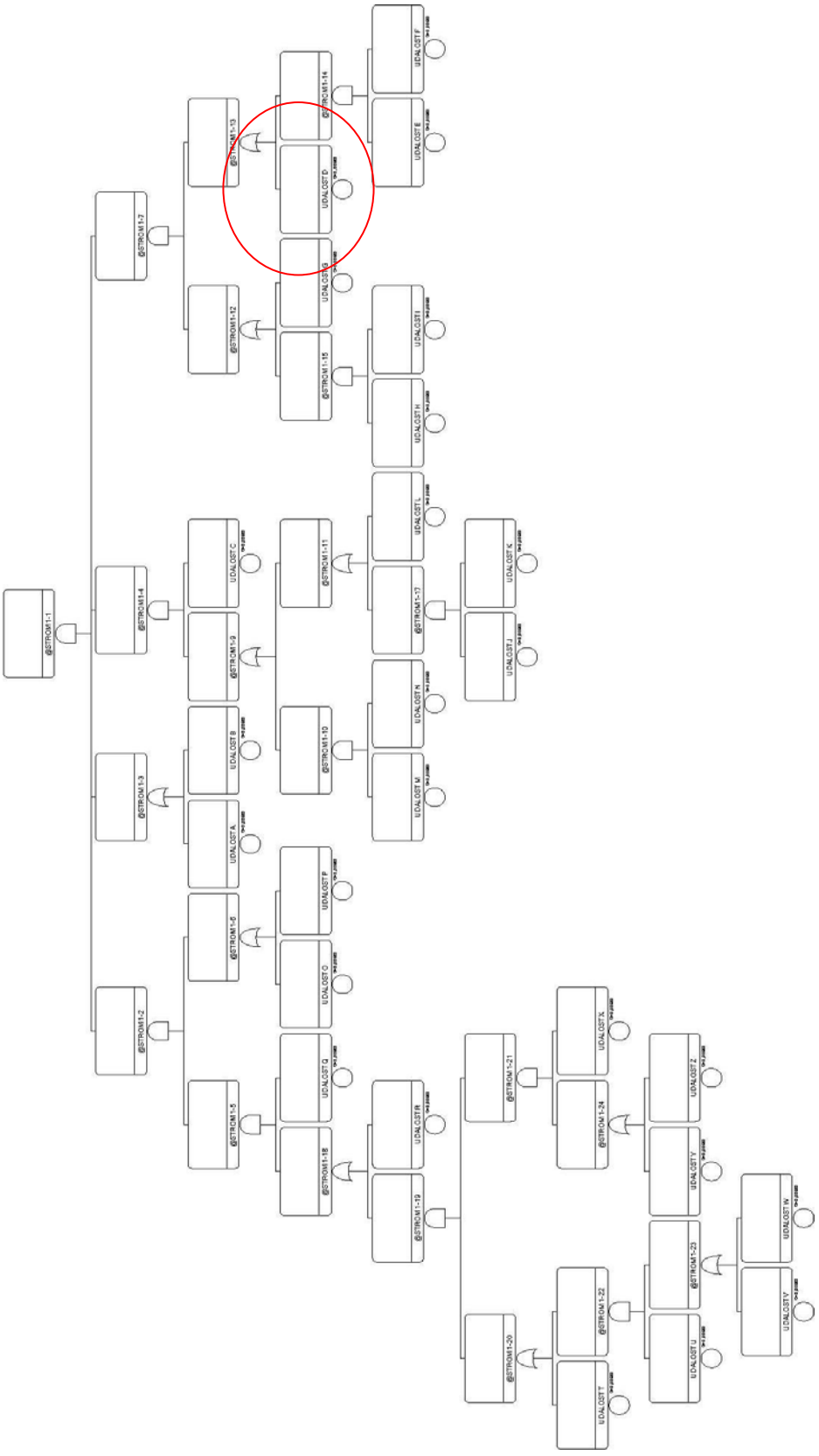
Zhoršení funkce komponenty se v programu Risk spectrum modeluje pomocí funkce *sensitivity factor*. Hodnota *sensitivity factoru* v praxi znamená, kolikrát se funkce komponenty zhorší. Naskýtá se tedy otázka, jak bude vypadat prioritizace komponent dle importančních měr a dle citlivosti, tj. zda má cenu, zabývat se modelováním zhoršení funkce komponent a dále ho zpřesňovat, či bude výsledný výčet komponent, majících významný vliv na riziko podobný, jako při užití importančních měr. Na první pohled by se totiž mohlo zdát, že importanční míry dávají konzervativnější přehled o bezpečnostně významných komponentách, a že modelování pomocí citlivostí, obzvláště s menším *sensitivity factorem*, nepřinese žádné významné změny v řazení bezpečnostně významných komponent.

Porovnání výsledků metody citlivosti a RIF na jednoduchém modelu

Při porovnání seznamu komponent, seřazeného dle importanční míry RIF (to znamená, že vždy uvažuji úplné selhání komponenty) se seznamem, seřazeným dle citlivosti (to znamená, že komponenta neselhala zcela, pouze se zhoršila její provozuschopnost) by se na první pohled mohlo zdát, že budou tyto seznamy podobné. Případně, že bude komponenta hodnocená dle RIF v seznamu výše než dle citlivosti. Zdálo by se nelogické, aby při úplném výpadku komponenty byla tato ve výsledném seznamu komponent seřazených dle metody RIF níže než dle seznamu řazeného dle citlivosti (dalo by se říci: zhoršení provozuschopnosti komponenty má větší vliv na příspěvek k celkovému riziku, než její výpadek). Toto má ale své vysvětlení. Na následujícím jednoduchém modelu lze tento jev demonstrovat. Pokud bude mít některá PU mírně vyšší pravděpodobnost poruchy oproti ostatním, nedojde při výpočtu importance (například pomocí RIF) k velkým rozdílům mezi PU (všechny měly podobnou pravděpodobnost a to, že měla jedna z nich o málo vyšší, se skryje dosazením hodnoty pravděpodobnosti 1). Naopak při posuzování podle citlivosti se tento rozdíl dobře ukáže. Komponenta tak v celkovém seznamu, seřazeném dle hodnot RIF, bude v pozici nižší, než v seznamu seřazeném dle citlivosti. Na následující straně je na Obr. 3. jednoduchý strom poruch pro demonstraci tohoto jevu. V tabulce je seznam primárních událostí a jejich pravděpodobností. Dále jsou uvedeny výsledky výpočtu RIF, citlivosti a řazení komponent dle těchto kritérií. Zvýrazněná událost D má mírně vyšší pravděpodobnost poruchy oproti ostatním primárním událostem. Jak je vidět, ve výsledku dle citlivosti se posunula o 3 místa nad pozici při řazení dle RIF.

Název události	Pravděpodobnost	Výsledek dle RIF	RIF	Výsledek dle citlivosti	Citlivost
UDALOST A	5,00E-02	UDALOST C	3,33E+01	UDALOST C	3,22E-08
UDALOST B	5,00E-02	UDALOST B	1,44E+01	UDALOST Q	3,22E-08
UDALOST C	5,00E-02	UDALOST A	1,44E+01	UDALOST R	3,17E-08
UDALOST D	1,00E-01	UDALOST Q	1,11E+01	UDALOST D	3,00E-08
UDALOST E	5,00E-02	UDALOST R	1,09E+01	UDALOST G	2,98E-08
UDALOST F	5,00E-02	UDALOST G	1,03E+01	UDALOST B	2,80E-08
UDALOST G	5,00E-02	UDALOST L	9,55E+00	UDALOST L	2,78E-08
UDALOST H	5,00E-02	UDALOST D	9,32E+00	UDALOST P	1,70E-08
UDALOST I	5,00E-02	UDALOST P	5,82E+00	UDALOST O	1,70E-08
UDALOST J	5,00E-02	UDALOST O	5,82E+00	UDALOST A	7,15E-09
UDALOST K	5,00E-02	UDALOST I	1,77E+00	UDALOST I	5,42E-09
UDALOST L	5,00E-02	UDALOST H	1,77E+00	UDALOST H	5,42E-09
UDALOST M	5,00E-02	UDALOST N	1,71E+00	UDALOST N	5,25E-09
UDALOST N	5,00E-02	UDALOST J	1,71E+00	UDALOST J	5,25E-09
UDALOST O	5,00E-02	UDALOST K	1,71E+00	UDALOST K	5,25E-09
UDALOST P	5,00E-02	UDALOST M	1,71E+00	UDALOST M	5,25E-09
UDALOST Q	5,00E-02	UDALOST E	1,69E+00	UDALOST E	5,19E-09
UDALOST R	5,00E-02	UDALOST F	1,69E+00	UDALOST F	5,19E-09
UDALOST T	5,00E-02	UDALOST X	1,16E+00	UDALOST X	3,69E-09
UDALOST U	5,00E-02	UDALOST T	1,14E+00	UDALOST T	3,62E-09
UDALOST V	5,00E-02	UDALOST Y	1,08E+00	UDALOST Y	3,44E-09
UDALOST W	5,00E-02	UDALOST Z	1,08E+00	UDALOST Z	3,44E-09
UDALOST X	5,00E-02	UDALOST U	1,02E+00	UDALOST U	3,28E-09

Tabulka 1 - Primární události a jejich seřazení dle RIF a citlivosti



Obr. 3 - Strom poruch pro modelování rozdílu RIF a citlivosti

Závěr

Tento model je velice jednoduchý, nicméně na něm tuto vlastnost lze dobře demonstrovat. Pokud si představíme tento pochod v daleko větším a komplikovanějším modelu elektrárny, mohly bychom pozorovat u některých událostí jejich posun ještě výraznější, než je tomu v případě tohoto modelu s malým množstvím událostí a hradel. K tomu u některých událostí skutečně na modelu elektrárny dochází.

Výše uvedené výsledky tedy dokazují, že modelování zhoršení provozuschopnosti pomocí citlivosti má smysl a může odhalit komponenty, jejichž zhoršení provozuschopnosti je rizikově významné a při prioritizaci pomocí importanční míry RIF dojde k maskování tohoto vlivu nastavením pravděpodobnosti rovnou na hodnotu 1.

Pomocí nové importanční míry DIM^{II} se dají přesněji než v ostatních importancích určit komponenty, které mají největší vliv na riziko provozu. Finance a invence se tak dají zaměřit přesněji pouze na ty komponenty, u kterých je to výhodné. Proto bych doporučil tuto metodu implementovat do programu Risk spectrum k ostatním importancím. Ve složitějších případech, než byly výše uvedené vzorové, není mnohdy spolupůsobení různých komponent v celé elektrárně tak jasné a tato importance může být dobrým vodítkem.

Literatura

[1] Pravděpodobnostní hodnocení bezpečnosti. In: *Bezpečnostní návod JB-1.6 SÚJB*. 2010. Dostupné z: www.sujb.cz

[2] Defining initiating events for purposes of probabilistic safety assessment IAEA. In: *TECDOC-719*. 1993. Dostupné z: www.iaea.org

[3] I N E S Mezinárodní stupnice hodnocení závažnosti jaderných událostí. In: *Uživatelská příručka SÚJB*. 2001. Dostupné z: www.sujb.cz

[4] VAN DER BORST, M. a SCHOONAKKER, H. An overview of PSA importance measures: Reliability Engineering and System Safety. [online]. 2001[cit. 2012-06-09].. Dostupné z: www.elsevier.com

[5] *PSA Basics*: *International workshop in Kyiv [prezentace]*. 2004. Dostupné z: http://www.insc.gov.ua

[6] BEESON, S. a JD. ANDREWS. Importance measures for non-coherent-system analysis: IEEE Transactions on Reliability. [online]. 2003 [cit. 2012-06-09]. Dostupné z: http://ieeexplore.ieee.org

[7] CONTINI, S. a V. MATUZAS. New methods to determine the importance measures of initiating and enabling events in fault tree analysis. [online]. 2011 [cit. 2012-06-09]. Dostupné z: http://www.sciencedirect.com

[8] BARLOW, R.E. a F. PROSCHAN. Importance of system components and fault tree events. [online]. 1974 [cit. 2012-06-09]. Dostupné z: http://stat.fsu.edu

[9] PETKOV, G. a M. PEKOV. Ageing effects sensitivity analysis by dynamic reliability methods. [online]. [cit. 2012-06-09]. Dostupné z: http://safelife.jrc.ec.europa.eu

[10] VESELY, W.E. Approaches for Age-Dependent Probabilistic Safety Assessments With Emphasis on Prioritization and Sensitivity Studies: NUREG/CR-5587. [online]. 1992 [cit. 2012-06-09]. Dostupné z: http://pbadupws.nrc.gov

[11] ATWOOD, C., O. CRONVAL, M. PATRIK a A. RODIONOV. Models and data used for assessing the ageing of systems, structures and components: NUREG/CR-5587. [online]. 2007 [cit. 2012-06-09]. Dostupné z: http://iet.jrc.ec.europa.eu

[12] LEVY, I.S., J. WREATHALL, G. DEMOSS, A. WOLFORD, E.P. COLLINS a D.B. JARRELL. Prioritization of TIRGALEX - Recommended Components for Further Aging Research: NUREG/CR-5248. [online]. 1988 [cit. 2012-06-09]. Dostupné z: http://pbadupws.nrc.gov

[13] RODIONOV, A. a A. MALKHASYAN. *A Case Study On VVER-440 Component Age-Dependent Reliability Data Assessment*: *JRC Aging PSA Meeting [prezentace]*. 2008.

[14] HONG, J.S., H.Y. KOO a C.H. LIE. Joint reliability importance of k-out-of-n systems. [online]. 2001 [cit. 2012-06-10]. Dostupné z: http://www.sciencedirect.com

[15] HONG, J.S., H.Y. KOO, C.H. LIE a J.S. LEE. Characterization of Partial Redundant Systems Using Joint Reliability Importance. [online]. [cit. 2012-06-10]. Dostupné z: http://iceb.nccu.edu.tw
[16] Applications of probabilistic safety assessment for nuclear power plants IAEA: IAEA-TECDOC-1200. [online]. 2001 [cit. 2012-06-10]. Dostupné z: http://www-pub.iaea.org
[17] LEDERMAN, L. Probabilistic safety assessment: Growing interest. [online]. 1985 [cit. 2012-06-10]. Dostupné z: http://www.iaea.org
[18] Baseline Risk Index for Initiating Events. In: *NUREG/CR-6932*. 2007. Dostupné z: http://www.nrc.gov
[19] BORGONOVO, E. a G.E. APOSTOLAKIS. A new importance measure for risk-informed decision making. [online]. 2000 [cit. 2012-06-10]. Dostupné z: http://www.sciencedirect.com
[20] DUŠEK, J. Pravděpodobnostní hodnocení jaderné bezpečnosti: *Přednáška pro posluchače FJFI a FSI v rámci cyklu „Jaderná bezpečnost“. [prezentace]*. 2011.
[21] HUSŤÁK, S. *Vybrané aspekty školení PSA pro SÚJB [prezentace]*.
[22] ZIO, E., L. PODOFILLINI. A Second Order Differential Importance Measure for Reliability and Risk Applications. [online]. [cit. 2012-06-10]. Dostupné z: http://www.sciencedirect.com
[23] VESELY, W.E., T.C. DAVIS, DENNING a N. SALTOS. Measures of risk importance and their applications: NUREG/CR-3385. [online]. 1986 [cit. 2012-06-10]. Dostupné z: http://www.nrc.gov
[24] STEFANOV, E., G. PETKOV a N. SALTOS. Sensitive Incorporation of Ageing Effects into the PSA Model. [online]. [cit. 2012-06-10]. Dostupné z: http://iet.jrc.ec.europa.eu
[25] Safety aspects of nuclear power plant ageing. In: *IAEA-TECDOC-540*. 1990. Dostupné z: http://www.iaea.org
[26] HONG, J.S., H.Y. KOO a C.H. LIE. Computation of joint reliability importance of two gate events in a fault tree. [online]. 2000 [cit. 2012-06-10]. Dostupné z: http://www.sciencedirect.com
[27] ZIO, E., L. PODOFILLINI. Accounting for components interactions in the differential importance measure. [online]. 2006 [cit. 2012-06-10]. Dostupné z: http://www.sciencedirect.com
[28] UNWIN, S.D., P.P. LOWRY a M.Y. TOYOOKA. A New Class of Risk-Importance Measures to Support Reactor Aging Management and the Prioritization of Materials Degradation Research. [*konference PSAM 10*]. 2010.
[29] RODIONOV A. Elaboration of reliability data for aging PSA. [*konference PSAM 0154*]. 2006.
[30] Poghosyan S., A.Amirjanyan. Investigation of ageing impact on safety systems´ reliability.[*konference ANS PSA*]. 2011.

PŘÍPRAVA BIOLOGICKY DEGRADABILNÍCH ESTERŮ TRITERPENICKÝCH KYSELIN

Petra Mičolová[1], Martin Vlk[1] a Jan Šarek[2]
[1]České vysoké učení technické, Praha
Katedra jaderné chemie, Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská
[2] Univerzita Palackého, Olomouc
Katedra organické chemie, IMTM, Přírodovědecká fakulta

Abstrakt

Triterpeny lze izolovat z běžně známých přírodních zdrojů. Tyto látky společně se svými semisyntetickými deriváty vykazují různé biologické účinky, např.: analgetický, antikariogenní, antimikrobiální, antiulcerogenní, antivirotický, hepatoprotektivní, protinádorový či protizánětlivý. V této práci byla pozornost věnována esterům triterpenických karboxylových kyselin ve snaze dosáhnout příznivější farmakologické vlastnosti a zachování nebo zvýšení cytotoxicity studovaných sloučenin. Ze syntetizovaných esterů byly jako nejvýznamnější vybrány acetoxymethyl estery a byly připraveny estery v oleananové, ursanové a taraxastanové řadě, které by mohly být vhodnými prodrug a tedy i potenciálními kandidáty pro selektivní značení ^{2}H, ^{3}H, ^{13}C, ^{14}C a ^{15}N.

1. Úvod

Nádorová onemocnění jsou celosvětově závažný problém. V roce 2008 bylo po celém světě diagnostikováno 12,6 milionů těchto onemocnění. Jedná se o soubor chorob, při kterých dochází k nekontrolovatelné proliferaci buněk. Tyto buňky ztrácejí schopnost odhalení mutace a poté její opravení či vyvolání své vlastní apoptózy. Při léčbě onkologických onemocnění se využívá protinádorové chemoterapie, tedy použití látek, které jsou buď pro buňku cytotoxické (jedovaté) nebo cytostatické (zabraňují růstu a dělení). Často se jako chemoterapeutik využívá přírodních látek vykazujících biologickou aktivitu ($IC_{50} < 10$ μmol/l) a dále disponujích dalšími účinky jako např. protizánětlivý, hepatoprotektivní či analgetický[1].

Vzhledem k problémům léčebného procesu je nutné objevovat a vyvíjet stále nová cytostatika, která budou působit jiným mechanismem, než působí konvenčně známá chemoterapeutika. Tato léčiva se potýkají s problémem rezistence, přičemž nepomáhá ani synergismus medikace a radiační terapie, či při pozdní diagnostice nedochází k zahájení léčby z důvodu její neúčinnosti vzhledem k přílišné pokročilosti onemocnění.

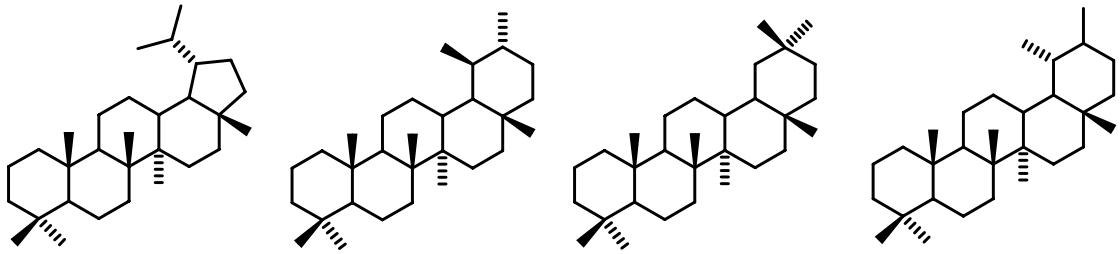
V práci byly zhodnoceny již připravené estery a dále byla pozornost zaměřena pouze na acetoxymethylestery (Acm estery), které byly předpokládány jako aktivní látky. V další fázi práce budou syntetizovány selektivně izotopicky značené (^{2}H, ^{3}H) analogy připravených Acm esterů.

2. Teoretická část

2.1. Triterpeny

Triterpeny jsou podskupina isoprenoidů, obsahují ve své molekule 30 atomů uhlíku. Jedná se o cyklické sloučeniny, které se vyskytují v přírodě volně nebo ve formě glykosidů, fytosterolů či jako jejich prekurzory.[2,3] Jejich charakteristikou je především vyšší bod tání a špatná rozpustnost ve vodě.[2] Jejich chemickou modifikací probíhá snaha o zlepšení farmakologických parametrů (např. rozpustnost, rozdělovací koeficient mezi nepolární a vodnou fází, či acidobazické vlastnosti), ale zároveň o zachování protinádorové aktivity a nízké akutní toxicity, z důvodu jejich širšího použití v medicíně či kosmetice.[3]

Na základě fytoterapeutické praxe a zkušeností s léčivými rostlinami bylo zjištěno, že triterpeny vykazují biologické účinky např. analgetický, antimikrobiální, antiulcerogenní, antivirotický, hepatoprotektivní, protinádorový či protizánětlivý.[1,3,4] Z tohoto hlediska jsou zvláště zajímavé sloučeniny jsou odvozené od skeletů lupanu (**1**), ursanu (**2**), oleananu (**3**) a taraxastanu (**4**).[3]



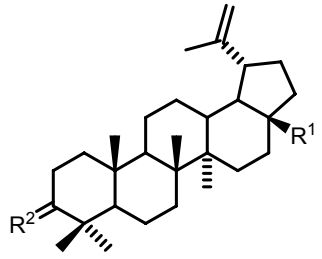
1 **2** **3** **4**

Nejznámějšími představiteli skupiny triterpenických sloučenin jsou kyselina betulinová (**5**) a betulin (**6**). Kyselinu **5** lze izolovat z kůry *Platanus hispanica*, která obsahuje 3 % kyseliny **5**.[4,5] Kyselina betulinová (**5**) vykazuje cytotoxickou aktivitu vůči lidskému melanomu MEL-2 (IC_{50} = 4.2 μmol/l)[6], plicnímu karcinomu A549 (IC_{50} = 6.6 μmol/l)[7] či myeloidní leukemii (IC_{50} = 7.2 μmol/l)[7]. Betulin (**6**) je v kůře *Betula Pendula* obsažen v množství 20 %. Březová kůra se získává jako odpadní materiál z dřevařského a papírenského průmyslu v severských zemích a dále se zpracovává (v ČR např. firma Betulinines).[8,9]

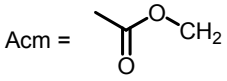
2.2. Cytotoxické estery

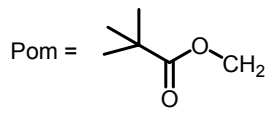
Semisyntetická analoga přírodních látek vykazují lepší farmakologické vlastnosti se zachováním nebo dokonce zvýšením cytotoxicity. Pozornost byla věnována především esterům triterpenických karboxylových kyselin.

Estery **8** - **15** již byly připraveny.[4] Methylester **8** se ukázal oproti výchozí kyselině méně aktivní a methylester **9** neaktivní. Připravené pivaloyloxymethyl- (**10**, **11**) a benzylestery (**12**, **13**) jsou také vůči výchozím kyselinám neaktivní. Na druhé straně acetoxymethylestery (**14**, **15**) jsou dokonce nepatrně aktivnější než výchozí kyseliny.[1,4,6,7] Cytotoxické aktivity vůči lidskému karcinomu plic A549, lidskému karcinomu prostaty DU145, lidskému karcinomu prsu MCF-7, lidské chronické myeloidní leukemii K562 či lidské T-lymfoblastické leukemii CEM jsou porovnány v tabulce 1.



	R^1	R^2
5;	CO_2H	α-H, β-OH
6;	CH_2OH	α-H, β-OH
7;	CO_2H	O
8;	CO_2Me	α-H, β-OH
9;	CO_2Me	O
10;	CO_2Pom	α-H, β-OH
11;	CO_2Pom	O
12;	CO_2Bn	α-H, β-OH
13;	CO_2Bn	O
14;	CO_2Acm	α-H, β-OH
15;	CO_2Acm	O





Sloučenina	IC_{50} [μmol/l]				
	A549	**DU145**	**MCF-7**	**K562**	**CEM**
5	146	196	143	56	30
7	15	36	29	6	20
8	184	110	120	71	150
14	83	71	96	83	-
15	19	12	24	15	-

Tab. 1 - Cytotoxické aktivity esterů kyselin 5 a 7

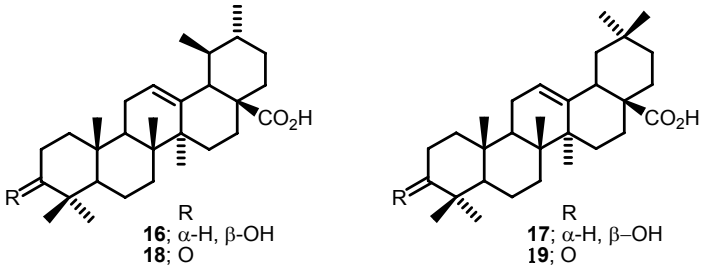
Díky své cytotoxické aktivitě, která je srovnatelná či dokonce vyšší vůči výchozí kyselině a díky svému lipofilnějšímu charakteru, který je vyšší než u ostatních esterů, by Acm estery mohly být vhodnými prodrug.

2.3. Výchozí triterpenické kyseliny s cytotoxickou aktivitou

2.3.1. Kyselina ursolová (16) a ursonová (18)

Kyselinu ursolovou (**16**) lze nalézt společně s kyselinou oleanolovou (**17**) v ovoci, zelenině či různých dalších rostlinných druzích.[10] Díky širokému spektru biologických aktivit je kyselina **16** využívána v kosmetice a medicíně.[11,12] Zajímavé cytotoxické aktivity vykazuje kyselina **16** vůči lidskému karcinomu prsu MCF-7 (IC_{50} = 10 μmol/l) a MDA-MB-231 (IC_{50} = 3 μmol/l) nebo myší lymfocytární leukemii L1210 (IC_{50} = 15 μmol/l).

Kyselinu ursonovou (**18**) lze nalézt v přírodě ve vyšších organismech a houbách. Bylo prokázáno, že tyto organismy jsou schopné transformovat kyselinu **16** na kyselinu **18**.[11] Kyselina **18**, která je méně aktivní než kyselina **16**, vykazuje výraznější cytotoxickou aktivitu pouze proti lidské promyelocytické leukemii HL-60 (IC_{50} = 43 μmol/l)[12].



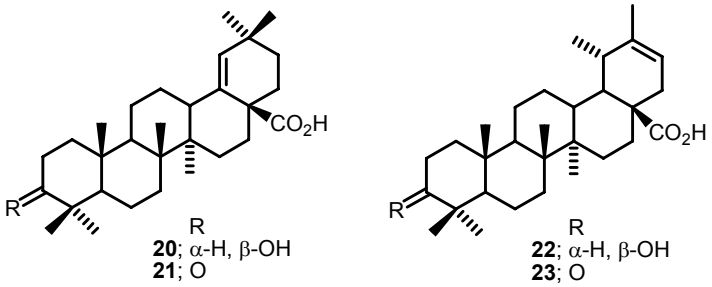
2.3.2. Kyselina oleanolová (17) a oleanonová (19)

Jednou z nejvíce prozkoumaných a v přírodě nejrozšířenějších (je obsažena ve více než 1600 rostlinných druzích) triterpenických kyselin je kyselina oleanolová (**17**).[10,13] Komerčním zdrojem této kyseliny **17** je *Olea europia*.[10] Zajímavý biologický účinek kyseliny **17** je v potlačování angiogeneze a invaze nádorových buněk, a rovněž vykazuje příznivé účinky na kardiovaskulární systém.[14] Tyto vlastnosti společně s dalšími příznivými biologickými aktivitami lze potenciálně využít při tvorbě nových chemoterapeutik. Významné cytotoxické aktivity vykazuje **17** vůči lidské chronické myeloidní leukemii K562 (IC_{50} = 0.06 μmol/l), mišímu melanomu B16 (IC_{50} = 0.12 μmol/l) nebo lidskému karcinomu prsu MCF-7 (IC_{50} = 5 μmol/l).[13]

Kyselina oleanonová (**19**) se oproti kyselině **17** vyskytuje v přírodě pouze omezeně, ale přesto ji lze nalézt, např. v *Pistacia terebinthus*, jehož methanolický extrakt vykazuje protizánětlivé účinky.[15] Zajímavou cytotoxicitu vykazuje kyselina **19** vůči lidskému adenokarcinomu plic A549 ((IC_{50} = 6 μmol/l) oproti kyselině **17**, která je neaktivní.[13]

2.3.3. Kyselina morolová (20) a moronová (21)

Kyselinu morolovou (**20**) lze získat společně s jejím ketoanalogem kyselinou moronovou (**21**) z *Phoradenderon reichenbachianum*,[16] kyselinu **21** pak dále např. z *Roylea elegant wall*.[17] Vůči T-lymfoblastické leukemii CEM vykazuje kyselina **21** (IC_{50} = 9.6 μmol/l) příznivější aktivitu než kyselina **20** (IC_{50} = 26 μmol/l). Dále se obě kyseliny **20** i **21** ukazují jako slibné léčebné přípravky proti ischemickým chorobám a cukrovce.[18]



2.3.4. Kyselina heterobetulinová (22) a heterobetulonová (23)

Poprvé byly kyselina heterobetulinová (**22**) a kyselina heterobetulonová (**23**) získány z *Calyptranthes pallens*, jehož chloroformový extrakt vykazuje zajímavou cytotoxicitu vůči hormonálně podmíněnému karcinomu prostaty LNCaP (IC_{50} = 13 μmol/l).[19] Obě kyseliny jsou výrazně cytotoxické na T-lymfoblastyckou leukemii CEM, kyselina **22** IC_{50} = 3.04 μmol/l a kyselina **23** IC_{50} = 6.5 μmol/l.

3. Příprava Acm esterů a testování jejich cytotoxicity

3.1. Činodla a výchozí kyseliny

Acetoxymethylbromid (Acm-Br), 1,8-diazabicykloundecen (DBU), acetonitril (MeCN) a tetrahydrofuran (THF) byly zakoupeny u firmy Sigma Aldrich. THF byl před použitím destilován se sodíkem v inertní atmosféře. Pro filtraci byl používán neutrální oxid hlinitý 90 (0.063 - 0.200 mm, aktivita Brockman I, Merck), pro sloupcovou chromatografii silikagel Kieselgel 60 (63 - 200 μm, Merck 7734).

Kyseliny ursolová (**16**), ursonová (**18**), oleanolová (**17**), moronová (**21**) a heterobetulinová (**22**) byly poskytnuty RNDr. Janem Šarkem, Ph. D. Kyseliny oleanonová (**19**) a heterobetulonová (**23**) byly připraveny oxidací příslušné hydroxykyseliny (**17** resp. **22**). Kyselina morolová (**20**) byla připravena redukcí kyseliny moronové (**21**).

Oxidace byla provedena následujícím způsobem: příslušná hydroxykyselina byla rozpuštěna ve směsi THF a kyseliny octové (AcOH), poté byl přidán dichroman sodný. Reakční směs byla míchána po dobu 24 hod. za l.t. (laboratorní teploty). Průběh reakce byl sledován pomocí TLC (hexan:ethylacetát 6:1 (obj.), R_f = 0,3-0,4). Zpracování poté bylo provedeno následujícím postupem: do destilované vody, která byla okyselena kyselinou chlorovodíkou (10%), byla nalita reakční směs a extrahována ethylacetátem. Organické podíly byly promyty destilovanou vodou a odpařeny na rotační vakuové odparce (RVO).

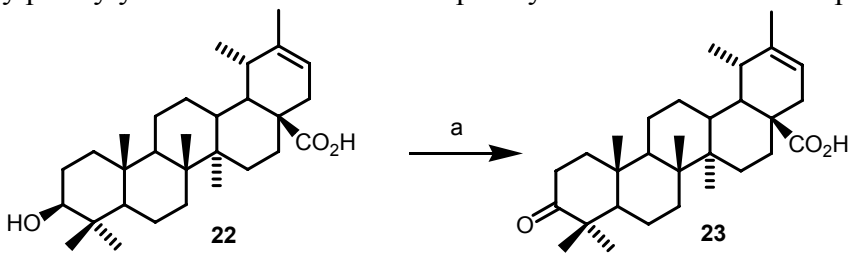


Schéma 1 - Příprava ketokyseliny 23; a: $Na_2Cr_2O_7$/THF, AcOH

Při redukci kyseliny moronové (**21**) byla kyselina **21** rozpuštěna v THF a methanolu (MeOH) Po ochlazení v ledové lázni byl postupně přidáván tetrahydroboritan sodný. Reakční směs byla míchána 2 hodiny za l.t. a průběh byl sledován pomocí TLC (toluen:ether 5:1, R_f = 0,17). Zpracování poté bylo provedeno následně: do destilované vody, která byla okyselena kyselinou chlorovodíkou (10%), byla nalita reakční směs a extrahována ethylacetátem. Organické podíly byly promyty destilovanou vodou a odpařeny na RVO.

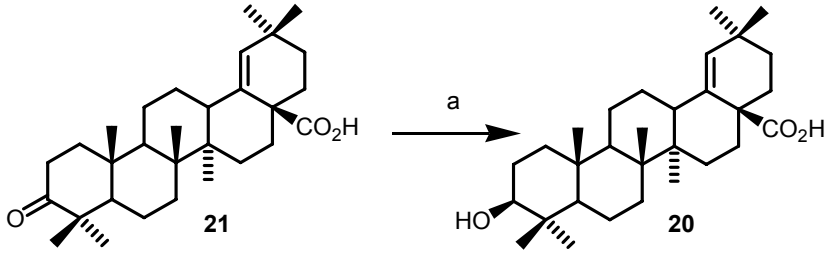


Schéma 2 - Příprava hydroxykyseliny 20; a: $NaBH_4$/THF, MeOH

3.2. Acm estery

Acetoxymethylestry byly připraveny alkylačními reakcemi výchozích kyselin **16** – **23** s Acm-Br za přítomnosti báze DBU. Tento způsob přípravy byl použit z důvodu nereaktivní karboxylové skupiny v poloze 28 a nelze tak použít klasický způsob esterifikace neboli reakce karboxylové kyseliny s příslušným alkoholem.

Acm estery byly připraveny následujícím postupem: výchozí kyselina byla rozpuštěna ve směsi dichlormethanu (CH_2Cl_2) a MeCN s přídavkem DBU. Poté byl přidán Acm-Br. Směs byla míchána po dobu 2 - 4 h, l.t. (kontrola pomocí TLC, R_f = 0,17-0,29). Zpracování proběhlo prolitím přes sloupec oxidu hlinitého (20 g) v chloroformu. Poté byla reakční směs odpařena na RVO. Odparek byl rozpuštěn

v chloroformu a methylován diazomethanem, nakonec byl opět odpařen na RVO. Produkt byl čištěn sloupcovou chromatografií na silikagelu (100 g) ve směsi hexan:ethylacetát (25%) a poté byl krystalován z MeOH.

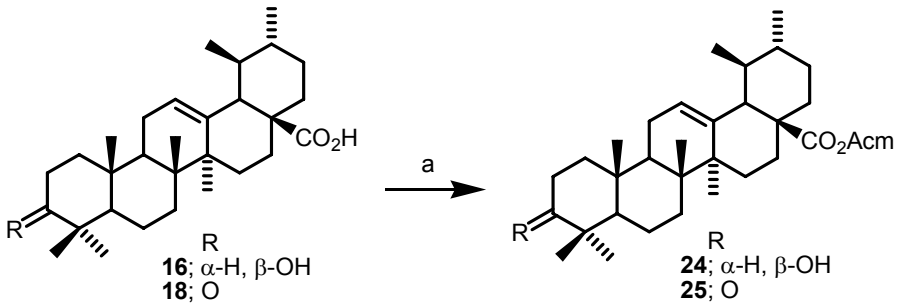
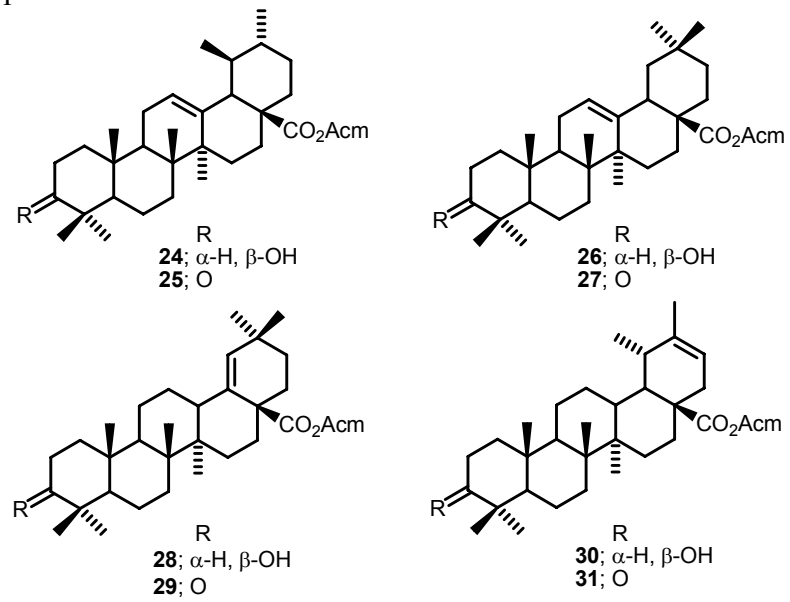


Schéma 3 - Příprava acetoxymethylesterů 24 a 25; a: Acm-Br, DBU / CH_2Cl_2, MeCN

Slouče-nina	Navážka [mg]	Rozpouštědla [ml]			DBU [µl]	Acm-Br [µl]	t [hod]	Izolace [mg]	Výtěžek [%]
		CH_2Cl_2	MeCN	THF					
24	2 000	12.5	4.0	-	1 500	1 500	4.0	485	24
25	1 000	6.2	2.0	-	750	750	4.0	179	18
26	2 000	12.5	4.0	-	1 500	1 500	2.0	685	34
27	1 500	9.5	3.0	-	1 100	1 100	2.5	469	31
28	449	2.8	0.9	2.5	340	340	1.5	63	14
29	1 000	6.2	2.0	-	750	750	1.0	320	32
30	1 500	2.0	4.0	12.5	1 100	1 100	3.0	507	34
31	1 500	-	4.0	12.5	1 100	1 100	4.0	587	39

Tab. 2 - příprava jednotlivých esterů

Celkem bylo připraveno 8 Acm esterů:



3.3. Testování cytotoxicity

Připravené acetoxymethylestery byly testovány *in vitro* na cytotoxickou aktivitu vůči nádorové linii CEM metodou MTT testu: Každá sloučenina byla testována v dubletu a v šesti různých koncentracích. Poté byla ke každé koncentraci přidána tkáňová kultura buněk T-lymfoblastické leukémie CEM. Inkubace trvala 72 hodin při teplotě 37 °C v 5% atmosféře CO_2 a 100% vlhkosti. Poté byl do každé jamky kultivačního panelu přidán MTT-[3-(4,5-dimethylthiazol-2-yl)-2,5-difenyl-2H-tetrazolium bromid]. Inkubace dále

probíhala ještě další 4 hodiny a poté byl přidán dodekansulfonát sodný. Při 540 nm bylo spektrofotometricky stanoveno procento přežívajících buněk, a poté byla koncentrace usmrcující 50 % buněk (IC_{50}) byla vypočítána z křivek dávkové závislosti.

Cytotoxickou aktivitu lze vyjádřit pomocí idexu IC_{50}, jedná se o minimální koncentraci testované látky, který usmrtí právě 50 % nádorových buněk. Získané výsledky jsou uvedené v tabulce 3. Jako nejlepší se ukazují látky **25**, **27** a **30**, které vykazují cytotoxitu menší něž 10 μmol/l. Dále jsou zajímavé i látky **24**, **26**, **28** a **31**.

Sloučenina	IC_{50} [μmol/l]
	CEM
24	23
25	**6**
26	17
27	**9**
28	10
29	35
30	**7**
31	11

Tab. 3 - Cytotoxické aktivity testovaných sloučenin

4. Závěr

Byly připraveny výchozí kyseliny **19**, **20** a **23** v dostatečném množství a čistotě a dále byly připraveny a charakterizovány dosud nepopsané acetoxymethylestery **24** - **31**. Připravené Acm estery byly testovány *in vitro* na cytotoxickou aktivitu proti buněčné linii CEM metodou MTT testu.

5. Poděkování

Práce byla financována za laskavé podpory SGS 11/133/OHK4/2T/14, MSM 6840770040 a GAČR 305/09/1216. Za testování cytotoxické aktivity připravených sloučenin bych chtěla poděkovat kolegům z Institutu molekulární a translační medicíny Dětské kliniky FN UP v Olomouci.

6. Literatura

1. ŠAREK, J.; KVASNICA, M.; VLK, M.; URBAN, M.; DŽUBÁK, P. & HAJDÚCH, M. The potential of triterpenoids in the treatment of melanoma. In: M. Murph. *Research on melanoma*. InTech, 2011, s. 125-159. ISBN 978-953-307-293-7.
2. DEWICK, P. M.: *Medicinal natural compounds*, A Biosynthetic Approach, 167-172, ISBN 0471496405. WILEY, London 2002.
3. DŽUBÁK, P.; HAJDÚCH, M.; VYDRA, D.; HUSTOVÁ, A.; KVASNICA, M.; BIEDERMANN, D.; MARKOVÁ, L.; URBAN, M. & ŠAREK, J. (2006). Pharmacological activities of natural triterpenoids and their terapeutic implications. *Nat. Prod. Rep.* Vol. 23, No. 3, pp. 394-411, ISSN 0265-0568.
4. URBAN, M.; ŠAREK, J.; TISLEROVÁ, I.; DŽUBÁK, P. & HAJDÚCH, M. (2005). Influence of esterification and modification of A-ring in a group of lupane acids on their cytotoxicity. *Bioorg. Med. Chem*. Vol. 13, No. 19, pp. 5527-5535, ISSN 0968-0896.
5. URBAN, M.: Dizertační práce. Karlova Univerzita v Praze, Praha 2004.
6. JEONG, H.; CHAI, H. B.; PARK S. Y.; KIM, D. S. H. L. (1999). Preparation of Amino Acid Conjugates of Betulinic Acid with Activity against Human Melanoma. *Bioorg. Med. Chem. Lett.* Vol. 9, pp. 1201-1204, ISSN 0960-894X.

7. ŠAREK, J.; KVASNICA, M.; VLK, M. & BIEDERMANN, D. Semisynthetic lupane triterpenes with cytotoxic aktivity. In: J. A. R. Salvador. *Pentacyclic triterpenes as promising agents in cancer*. Hauppauge NY: Nova Science Publishers, Inc., 2010, s. 159-189. ISBN 978-1-60876-973-5.
8. KRASUTSKY, P. A.; CARLSON, R. M.; NESTRENKO, V. V.; KOLOMITSYN, I. V. & EDWARDSON, C. F. (2005). Birch bark processing and the isolation of natural products from birch bark, US 2005158414, 21st July 2005.
9. ŠAREK, J.; HAJDÚCH, M. & SVOBODA, M. (2008). Method of preparation and isolation of betulin diacetate from birch bark from paper mills and its optional processing to betulin, CZ 301038, 29th October 2008.
10. POLLIER, J. & GOOSSENS, A. (2012). Oleanolic acid. *Phytochem.* Vol. 77, pp. 10-15, ISSN 0031-9422.
11. LEIPOLD, D.; WÜNSCH, G.; SCHMIDT, M.; BART, H. J.; BLEY, T.; NEUHAUS, H. E.; BERGMANN, H.; RICHLING, E.; MUFFLER, K. & ULBER, R. (2010). Biosynthesis of ursolic acid derivatives by microbial metabolism of ursolic acid with *Nocardia* sp. strains - Proposal of new biosynthetic pathways. *Process Biochemistry*. Vol. 45, No. 7, pp. 1043-1051, ISSN 1359-5113.
12. SALVADOR, J. A. R. & MOREIRA, V. M.: Semisynthetic pentacyclic triterpenoids in the cancer setting: ursolic acid and its derivatives. In: *Pentacyclic triterpenes as promising agents in cancer*. Hauppauge NY: Nova Science Publishers, Inc., 2010, s. 249-277. ISBN 978-1-60876-973-5.
13. SALVADOR, J. A. R.; LEAL, A. S. M. & SANTOS, R. C. Semisynthetic pentacyclic triterpenoids in the cancer setting: oleanolic acid and its derivatives. In: *Pentacyclic triterpenes as promising agents in cancer*. Hauppauge NY: Nova Science Publishers, Inc., 2010, s. 190-248. ISBN 978-1-60876-973-5.
14. LIU, J. (2005). Oleanolic acid and ursolic acid: Research perspectives. *J. Ethnopharmacol.* Vol. 100, pp. 92-94, ISSN 0378-8741.
15. GINER-LARZA, E. M.; MÁÑEZ, S.; RECIO, M. C.; GINER, R. M.; PRIETO, J. M.; CERDÁ-NICOLÁS, M. & RÍOS, J. L. (2001). Oleanolic acid, a 3-oxotriterpene from Pistacia, inhibic leukotriene synthesis and has anti-inflammatory aktivity. *Eur. J. Pharmacol.* Vol. 428, No. 1, pp. 137-143, ISSN 0014-2999.
16. RAMÍNEZ-ESPINOSA, J. J.; RIOS, M. Y.; LÓPEZ-MARTÍNEZ, S.; LÓPEZ-VALLEJO, F.; MEDINA-FRANCO, J. L.; PAOLI, P.; CAMICI, G.; NAVARRETE-VÁZQUEZ, G.; ORTIZ-ANDRADE, R. & ESTRADA-SOTO, S. (2011). Antidiabetic aktivity of some pentacyclic acid triterpenoids,role of PTP-1B: *In vitro*, *in silico*, and *in vivo* approaches. *Eur. J. Med. Chem.* Vol. 46, No. 6, pp. 2243-2251, ISSN 0223-5234.
17. MAJUMDER, P. L.; MAITI, R. N.; PANDA, S. K. & MAL, D. (1979). Structure of Moronic Acid. *J. Org. Chem.* Vol 44, No. 15, pp. 2811-2812, ISSN 0022-3263.
18. ZHANG, P.; HAO, J.; ZHANG, L. & SUN, H. (2009). Efficient synthesis of morolic acid and related triterpenes starting from betulin. *Tetrahedron*. Vol. 65, No. 22, pp. 4304-4309, ISSN 0040-4020.
19. LOBO-ECHEVERRI, T.; RIVERO-CRUZ, J. F.; SU, B. N.; CHAI, H. B.; CORDELL, G. A.; PEZZUTO, J. M.; SWANSON, S. M.; SOEJARTO, D. D. & KINGHORN, A. D. (2005). Constituents of the leaves and twigs of *Calyptranthes pallens* collected from an experimental plot in Southern Florida. *J. Nat. Prod.* Vol. 68, No. 4, pp. 577-580, ISSN 0974-5211.

MODELOVÁNÍ PROUDĚNÍ CHLADIVA V AKTIVNÍ ZÓNĚ REAKTORU POMOCÍ CFD

Bc. Antonín Povolný
ČVUT v Praze
Katedra jaderných reaktorů, Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská

Abstrakt

Tento článek vychází z bakalářské práce a věnuje se využití CFD k výpočtům proudění chladiva v aktivní zóně jaderných reaktorů. V úvodních kapitolách je popsáno fyzikální i matematické pozadí CFD. Jsou zmíněny použité zákony zachování a jevy turbulence a mezní vrstvy. Je nastíněn přístup CFD k jejich popisu. Následuje popis základních numerických metod (FDM, FVM a FEM), které se používají v CFD. Další je rešerše CFD kódů používaných pro výpočty v aktivních zónách jaderných reaktorů a seznámení s jedním z nich, Star-CD. Příspěvek uzavírá prezentace několika modelů vytvořených ve Star-CD pro výpočet proudění v kanálu mezi palivovými tyčemi v aktivní zóně, a to včetně vypočítaných výsledků.

1. Úvod

Pro termohydraulické výpočty v jaderných reaktorech se aktuálně téměř výhradně používají *Systémové výpočetní kódy* vycházející z mnohých zjednodušení a empirických vztahů. Toto omezuje jak jejich přesnost, tak míru informace, kterou mohou podat. Pro modelování některých jevů nebo pro zvýšení přesnosti je třeba použít lepší nástroj, tím se může stát CFD.

2. Proudění tekutiny a přenos tepla konvekcí

Mechanika tekutin vychází z mechaniky kontinua (pohled na tekutinu jako na spojitě rozloženou hmotu namísto velkého množství molekul) a většinou využívá *Eulerův přístup*; spojuje chování tekutiny s pevnou pozicí v čase a prostoru. Kromě toho je znám ještě *Lagrangeův přístup*, který spojuje chování tekutiny s jednotlivými malými objemy tekutiny, jejichž trajektorii se snaží popsat (to je náročnější, ale výsledek poskytuje více informací). V mechanice kontinua se zavádí plošné síly, z nichž nejvýznamnější je pro mechaniku tekutin síla vazkosti, která vyjadřuje odpor různých částí tekutiny vůči vzájemnému pohybu.

2.1. Zákony zachování

Zvažováním změn veličiny v objemu lze odvodit zákonitosti, které se nazývají zákony zachování (nebo také transportní rovnice). Pro změny hmotnosti lze takto odvodit *Rovnici kontinuity*. Pro změny hybnosti pak *Navier-Stokesovy rovnice*. Z hlediska primární zóny je důležitá také rovnice zachování vnitřní energie nebo entalpie. Dohromady takto lze získat soustavu pěti diferenciálních rovnic o pěti neznámých (většinou tlak, teplota a tři složky vektoru rychlosti). Problém je, že Navier-Stokesovy rovnice jsou matematicky těžko uchopitelné ať už z hlediska dokazování existence řešení, nebo jeho hledání.

2.2. Turbulence a mezní vrstva

Nelinearita Navier-Stokesových rovnic je příčinnou *turbulence*, velkých fluktuací řešení v čase i v prostoru. Dokud v rovnicích převažují lineární členy vyjadřující působení vazké síly, fluktuace jsou potlačeny a lze pozorovat *laminární proudění*, při kterém se řešení mění jen zvolna. Lze dokázat, že fluktuace mají podobu vírů. Tyto víry popisuje Kolmogorova teorie, která dělí víry na tři druhy. Největší odebírají kinetickou energii translačního pohybu a mění ji na kinetickou energii rotace. Po určité době se rozpadají na víry menší a předávají jim svoji energii. Tyto menší víry se rozpadají až na víry, u kterých vazké síly vyrovnají síly setrvačné. Tak dojde k zastavení rotace a k přeměně kinetické energie na energii tepelnou.

Obtížný popis vírů se však často zjednodušuje pomocí statistiky. Veličiny se středují na střední hodnoty (bez vlivu vírů) a statistické fluktuace (způsobené víry). Pro popis míry turbulence se pak používá bezrozměrné *Reynoldsovo číslo* vycházející z teorie podobnosti.

Další problém působí fenomén *mezní vrstvy*, která se vytváří na hranicích objemu vyplněného tekutinou (u stěny nádrže/potrubí nebo poblíž hladiny). V těchto místech jsou velké gradienty rychlosti a popis je obtížný. Pro CFD nelze použít mnohá z přiblížení, která jsou mimo mezní vrstvu vcelku přesná (je tedy třeba uvažovat mezní vrstvu zvlášť).

2.3. Turbulence v CFD

Před popisem přístupu CFD k turbulenci je třeba zmínit, že podstata CFD spočívá v odhadu řešení. Konkrétně např. rozdělením def. oboru na jeho malé podmnožiny, kde se předpokládá lineární nebo konstantní řešení. Když jsou tyto podmnožiny dostatečně malé, tak se tento odhad od skutečného řešení moc neliší a lze ho s ním ztotožnit. Avšak řešení v CFD (zvlášť u turbulence) se mění velmi rychle. Požadavek „dostatečně malé podmnožiny“ (který určuje složitost a délku výpočtu) pak lze dostupnou výpočetní technikou dosáhnout jen výjimečně. CFD používá tři druhy přístupů k tomuto problému: Přímou numerickou simulaci (DNS), Simulaci velkých vírů (LES) a Reynoldsovy středované Navier-Stokesovy rovnice (RANS).

DNS spočívá v dodržení požadavku na „dostatečně malé podmnožiny“, což tuto metodu činí velmi náročnou. Časová náročnost simulace roste řádově s třetí mocninou Reynoldsova čísla. Proto se používá především pro proudění s nízkým Reynoldsovým číslem, tedy s nízkou rychlostí a malými rozměry. Pro praxi je důležité, že výsledky DNS simulací se ukládají do databází a často mají větší váhu než experimentální výsledky.

V *LES* se popisují pouze největší a nejdůležitější fluktuace příslušející největším vírům (víry nesoucí např. 80% kinetické energie všech vírů). Výběr mezi víry se provádí pomocí *filtrování* (násobení vhodnou zobecněnou funkcí) aplikovaného na zákony zachování.

Podobný je i princip *RANS*, kdy je filtrování/středování nastaveno tak, aby se zbavilo efektu všech vírů. Praktický rozdíl oproti LES je, že při časové neměnnosti okrajových podmínek je středovaná veličina v čase konstantní. Středování je (jako i u LES) aplikováno na zákony zachování, čímž se přejde k podobným diferenciálním rovnicím, kde místo původních neznámých vystupují jejich střední hodnoty. Rozdíl je ve výskytu nových neznámých. Jedná se třeba o tenzor Reynoldsova napětí (vyjadřující přenos hybnosti vlivem turbulentních fluktuací rychlosti). Tyto nové neznámé se popisují pomocí různých modelů a empirických poznatků. Například pomocí několika jiných neznámých, pro které lze odvodit vlastní zákony zachování (např. kinetická energie turbulentních pohybů a rychlost její disipace). Často se vliv Reynoldsova napětí modeluje přičtením *turbulentní viskozity* k té skutečné. Místo jednotlivých prvků tenzoru Reynoldsova napětí se pak modeluje tato turbulentní viskozita.

Každý z těchto modelů má své vlastní požadavky na to, jak moc „dostatečně malé podmnožiny“ je třeba z definičního oboru vybrat. Tento požadavek se většinou mění v mezních vrstvách, kde je třeba vyšší přesnost. Druhý přístup k mezním vrstvám spočívá v předpokladu určité podoby řešení (např. teoretické pro plně vyvinutou mezní vrstvu).

3. Numerické řešení

Základem CFD je převod diferenciálních rovnic na soustavu algebraických rovnic pomocí *diskretizace*. Diskretizuje se definiční obor i diferenciální rovnice. Definiční obor je částí časoprostoru, ale často se dělí na čas kartézsky násobený 3D prostorem. Tyto množiny se diskretizují každá zvlášť (a zvlášť se diskretizují i příslušné členy v zákonech zachování).

3.1. Diskretizace prostoru

Prostor se diskretizuje vytvořením *sítě*, což je množina bodů (uzlů) nebo buněk. Tato síť může být *strukturovaná* nebo *nestrukturovaná*. U první z nich lze každému bodu/buňce přidělit jedinečnou trojici indexů, která určuje pozici v síti a zároveň určuje sousední body/buňky. Buňky jsou šestistěny. U nestrukturované sítě se body/buňky označí pouze jedním indexem, často mají buňky tvar čtyřstěnů.
Síť lze vytvářet ručně nebo také automaticky. Obojí je časově velmi náročné. Výhoda nestrukturovaných sítí je v automatickém vytváření sítě, které je rychlejší než u strukturovaných. Strukturované sítě zase zrychlují proces samotného řešení diferenciálních rovnic a především snižují jeho paměťové nároky. Celý prostor lze rozdělit na menší bloky, které jsou pak rozsíťovány zvlášť. Toto je vhodné zvláště pro paralelní implementaci.

3.2. Metoda konečných diferencí (FDM)

Tato metoda diskretizace diferenciálních rovnic vychází z Taylorova rozvoje a nahrazuje derivace (podíly intifezimálních rozdílů) podíly konečných rozdílů hodnot v daných bodech sítě. Výsledek je aproximace funkčních hodnot řešení v uzlech sítě. Tato metoda vyžaduje ortogonální síť a nekonverguje moc rychle. Používá se jen v DNS nebo LES modelech.

3.3. Metoda konečných objemů (FVM)

FVM vychází z integrálního tvaru zákonů zachování, rovnosti mezi integrály přes daný objem a integrály přes jeho hranice. FVM pracuje s průměrnými hodnotami veličin v buňkách sítě. Pomocí těch se aproximují hodnoty integrálů v zákonech zachování. Konvergence k nějakému řešení (při zjemňování sítě) zajišťuje pomocí *Lax-Wendroffovy věty*, že toto řešení je řešením zákonů zachování.

3.4. Metoda konečných prvků (FEM)

FEM aproximuje hodnoty řešení v bodech sítě. Na rozdíl od ostatních metod se aproximuje celá funkce řešení (ne jen hodnoty v bodech) pomocí bazických funkcí (kterých je tolik, kolik je bodů v síti). Každá funkce je nenulová většinou jen v okolí příslušného bodu sítě. Informace o celé funkci umožňuje použití zobecněných funkcí a zákony zachování jsou tak násobeny různými zobecněnými funkcemi. Díky znalosti zobecněné funkce i bazických funkcí řešení lze toto násobení provést. Neurčenými tak zůstanou jen „souřadnice“ řešení ve vybrané bázi bazických funkcí. Tato metoda byla původně vyvinuta pro analýzu pružnosti a pevnosti. Její výhoda spočívá v aplikaci na nestrukturované sítě.

3.5. Časová diskretizace

U časové diskretizace je podstatné, zda se uvažuje stacionární proudění. I stacionární proudění se často považuje za časově závislé s tím, že z odhadnuté počáteční podmínky se proudění vyvine do stabilní pozice správného řešení. Diskretizace rovnic většinou probíhá podobně jako ve FDM aproximací časových derivací. Tato aproximace může být *explicitní*, pro výpočet hodnot v daném čase se používají pouze již spočítané hodnoty odpovídající předchozím časům. V tomto případě se musí dodržet *CFL podmínka* na maximální velikost časových kroků (dostatečně malé, aby se nestihla „předat informace“ mezi body sítě). Aproximace může být také *implicitní.* V tom případě se pro výpočet hodnot v daném čase používají i další hodnoty z tohoto času. Pro přechod k novému časovému úseku tak nestačí „vynásobit maticí,“ ale je třeba vyřešit algebraickou soustavu, což je složitější.

V případě časově závislých toků se často od jednoho času k druhému přechází přes více stupňů, kdy se spočítané řešení několikrát koriguje *Runge-Kuttovými metodami*.

4. Rešerše CFD kódů

V jaderné energetice se nyní používají převážně systémové kódy, které zjednodušují náročnost řešení (například snížením dimenze). Tím však dochází ke snížení přesnosti a komplexnosti získané informace. Zvyšování výpočetních kapacit naznačuje, že náročnost řešení bude v budoucnu menší překážkou. A proto bude záhodno použít přesnější CFD kódy. Tento pohled sdílí NEA, která ve spolupráci s IAEA koordinuje výzkum v oblasti aplikace CFD na problémy jaderné bezpečnosti. Z hlediska aktivní zóny jde třeba o modelování ředění bóru v aktivní zóně nebo hledání teplotních gradientů (v čase i prostoru). Další problémy jsou vztažené k proudění v kontejnmentu nebo v potrubích.

Z výpočetních kódů jsou nejvíce používané kódy CFX a FLUENT (oba po úspěšných akvizicích patří společnosti ANSYS), dále je to STAR-CD firmy CD ADAPCO nebo PHOENICS firmy CHAM. Tyto kódy jsou velmi rozšířené v mnoha odvětvích. Konkrétně pro energetiku byla vyvinuta čtveřice francouzských kódů TRIO-U, CAST3M, SATURNE a NEPTUNE. První dva jsou z dílny CEA, druhé vyvinula EDF. Zajímavé je také, že kód CAST3M je nabízen zdarma a kód SATURNE je dokonce vyvíjen jako Open-source projekt.

5. Star-CD

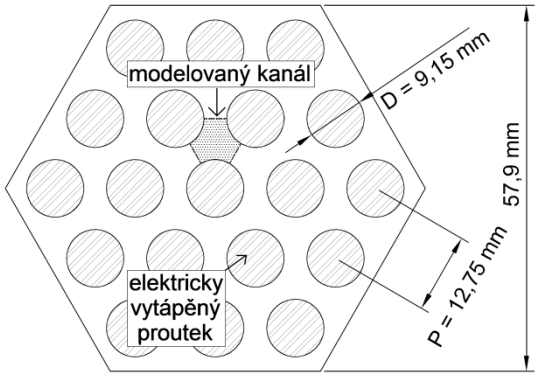
Tento výpočetní kód se skládá ze dvou programů: *pro-STAR* a *STAR*. První z nich vytváří soubory s popisem geometrie, sítě, parametrů tekutiny, zvoleného modelu nebo vybrané numerické metody řešení. Program STAR provede na základě těchto souborů výpočet a vygeneruje soubor s hodnotami řešení. Program pro-STAR může z tohoto souboru extrahovat data, vytvářet grafy nebo na základě výsledku upravit zadání pro přesnější výpočet (zjemnění sítě). Program pro-STAR lze ovládat pomocí grafického uživatelského rozhraní nebo pomocí příkazů v terminálu. Program také podporuje použití FORTRANu.

Velmi důležitý je výběr modelu turbulence. Star-CD nabízí široké spektrum RANS a LES modelů včetně volby modelu mezní vrstvy. Je také nutné nastavit parametry proudící tekutiny, tedy definovat stavovou rovnici. K dispozici je mnoho okrajových podmínek. Kód vyžaduje zadání počáteční podmínky (pro stacionární proudění není třeba moc přesné).

Většinu veličin lze uvažovat relativně vzhledem k zadané hodnotě (například při malých změnách vysokých tlaků), uživatel také zadává sledovací buňku. Hodnota veličin v této buňce se během výpočtu zobrazuje po každé iteraci a uživatel tak může proces kontrolovat.

6. Popis modelu

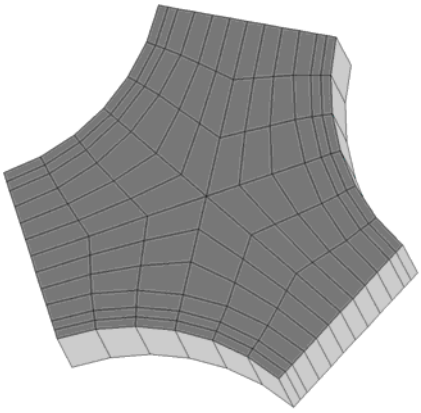
V kódu Star-CD byl v rámci bakalářské práce za účelem seznámení s použitím CFD vytvořen model jednoduchého kanálu mezi palivovými tyčemi reaktoru. Geometrie kanálu s výškou 3,48 m odpovídá VVER-1000 (viz Obr. 1). Vstupní teplota je 229,4 °C. Z palivových tyčí přechází do vody tepelný tok o konstantní hustotě 263,951 kW/m^2. Tlak na výstupu je 14,38 MPa. Hustota hmotnostního toku je G=1856,2 kg/m^{2}s. Toto zadání odpovídá výpočtu metodou izolovaného kanálu podle [2]. Původní inspirace je v experimentu provedeném společností Škoda JS dne 28. 1. 1986. Účelem modelu však je pouze seznámení s praxí CFD a model tak nezahrnuje mnohé prvky, které výsledek i průběh výpočtu silně ovlivňují, např. distanční mřížky. Model také nezahrnuje gravitační sílu. Dalším zjednodušením je uvažování termohydraulicky hladkého povrchu stěn a axiálně i radiálně konstantní hustoty tepelného toku přes povrchy palivových tyčí.



Obr. 1 - Geometrie modelovaného kanálu

Pomocí několika příkazů byl v programu pro-STAR vytvořen základní segment 108mi buněk s výškou 2 mm (viz Obr. 2), ten se poté svým mnohonásobným zkopírováním rozšířil na délku celého kanálu. Takto vytvořená síť byla nazvána SÍŤ 1 a skládala se z 187 920 buněk a 236 776 uzlů. Zjemněním

vrstvy (na 10 menších vrstev) buněk, které se dotýkají povrchu palivové tyče, byla vytvořena SÍŤ 2 skládající se ze 469 800 buněk a 565 825 uzlů. Byla také provedena analýza toho, zda jsou buňky dostatečně malé. Pro jednodušší modely mezní vrstvy byly buňky obou sítí dostatečně tenké, pro přesnější modely však nestačila ani SÍŤ 2, větší zjemnění však nebylo z hlediska výpočetních kapacit možné. Problém obou sítí, především SÍTĚ 2, spočíval v nevhodném poměru délek jednotlivých stran buněk. Konkrétně výška základního segmentu (2 mm) by potřebovala snížit. To by však znamenalo velký nárůst počtu buněk, což nebylo z hlediska nedostatečné výpočetní kapacity možné.



Obr. 2 - Základní segment SÍTĚ 1

Proudící tekutina, konkrétně její hustota, viskozita, tepelná vodivost, tepelná kapacita, entalpie a entropie byly na základě tabulkových hodnot definovány jako po částech lineární funkce teploty. Na stěně palivového proutku byly zvoleny okrajové podmínky „stěna“, tedy nulová rychlost a tepelný tok podle zadání. Na plochách, kde hraničí dva sousední kanály (rovné okraje) byla zvolena okrajová podmínka pro symetrii řešení. Na vtoku do kanálu pak byla okrajová podmínka „vtok“ se zadanou rychlostí, teplotou a odhadem hodnot veličin popisujících turbulenci. Na výstupu pak byla aplikována okrajová podmínka „tlak“, s tlakem dle zadání. Pro výpočet bylo vybráno 15 různých RANS modelů. Lišily se především zvoleným modelem turbulence, tedy způsobem jakým bylo vyjádřeno Reynoldsovo napětí. Dále popisem mezní vrstvy nebo i aplikací okrajových podmínek.

7. Výsledky

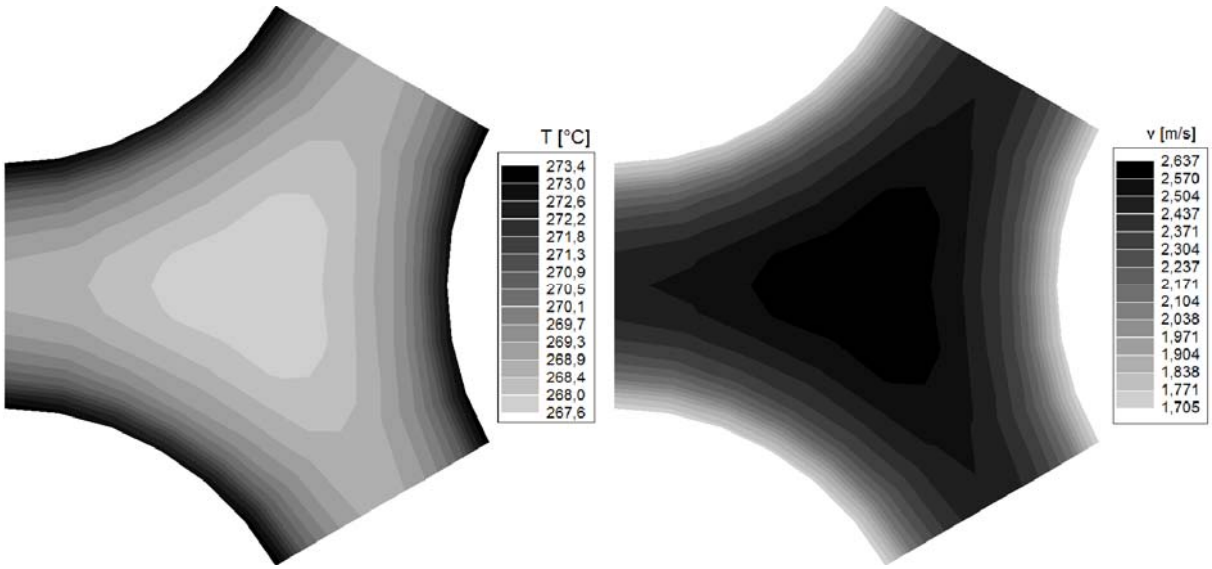
Výpočet probíhal na PC s procesorem Intel Core™ i3-540 (4M Cache, 3,06 GHz), což je dvoujádrový procesor pracující až se čtyřmi vlákny (Intel® Hyper-Threading). Výpočty ovšem probíhaly jednovláknově (čas vynaložený na zprovoznění vícevláknového výpočtu by byl větší, než časová úspora výpočtu jeho zparalelněním). Doba výpočtu byla často od 10 do 60 minut. Při použití složitějšího modelu se prodlužovala, stejně tak při požadavku na větší přesnost řešení algebraického systému, největší vliv však měl počet buněk (tedy zvolená síť).

Při diskuzi o přesnosti výpočtu je důležité si uvědomit existenci trojí nepřesnosti. První nepřesnost vzniká převodem systému diferenciálních rovnic na algebraický systém (tato nepřesnost klesá se zjemněním sítě). Druhá nepřesnost je nepřesnost řešení tohoto algebraického systému (tuto nepřesnost popisuje residuum v Tab. 1). Proti realitě pak vzniká další nepřesnost v použitém modelu turbulence (nebo hraničních podmínek). Tato poslední nepřesnost se hodnotí pomocí experimentů nebo, velmi často, pomocí DNS simulací.

Výsledkem výpočtu je pole neznámých (rychlost, tlak a teplota), které je třeba nějak interpretovat. Zde byla porovnána hodnota výsledné průměrné teploty na výstupu a tlakové ztráty (bez vlivu gravitace). Bylo také provedeno srovnání distribuce teploty a rychlosti na výstupu. První je v Tab. 1 a druhé na Obr. 3.

Model č.	Model turbulence	t [min]	Res. [-]	T_{out} [°C]	Δp [Pa]
Model 5	k-ε + nerovnovážná funkce stěny	10	1E-4	269,298	11864,4
Model 6	k-ε + funkce stěny	11	1E-4	269,302	11852,3
Model 7	k-ε + hybridní stěna	12	1E-4	269,296	11776,0
Model 8	k-ε + 2vrstvý Wolfstein (SÍŤ 2)	30	1E-3	273,322	10067,7
Model 9	k-ε kvadratický + nerovnovážná funkce stěny	25	1E-4	269,302	11092,8
Model 11	k-ω + nerovnovážná funkce stěny	12	1E-4	269,263	12215,2
Model 12	k-ω SST + malá Reynoldsova čísla (SÍŤ 2)	590	3E-5	269,278	10557,9
Model 15	RSM (Speziale-Sarkar-Gatski) isotropický	59	1E-5	269,280	13112,2
	Izolovaný kanál [2]			269,39	11679,5

Tab. 1 - Výsledky několika modelů, doba výpočtu a hodnota rezidua poslední iterace



Obr. 3 - Rozložení teploty a velikosti rychlosti na výstupu (Model 7)

8. Závěr

Modelování proudění tekutiny v aktivní zóně reaktoru probíhá doposud za pomocí zjednodušených systémových kódů. Přesun k plnohodnotným třírozměrným CFD kódům je ve stádiu výzkumu organizovaného společnostmi NEA a IAEA. Nejčastěji se používají výpočetní kódy FLUENT, ANSYS CFX, Star-CD a PHOENICS. Vhodné mohu být také programy vyvinuté v CEA nebo EDF (jsou přímo pro energetiku a zdarma dostupné).

Při použití těchto nebo jiných kódů je třeba rozumět principu CFD, tedy numerickému řešení zákonů zachování (Rovnice kontinuity, Navier-Stokesovy rovnice a další rovnice). Velké obtíže vznikají díky turbulenci a mezní vrstvě. Pro popis obou jevů je třeba zvolit vhodný model. Při volbě modelu hraje roli jak přesnost, se kterou popisuje reálné jevy, tak složitost spojená s délkou výpočtu.

Numerické řešení spočívá v převodu diferenciálních rovnic na soustavu algebraických – diskretizace. Ta probíhá pomocí tvorby sítě. Tvorba sítě je často velmi náročná a její výsledná podoba má velký vliv na průběh samotného výpočtu. Čím jemnější je síť, tím přesněji odpovídá získaná soustava algebraických rovnic původním rovnicím diferenciálním.

Za účelem hlubšího seznámení s CFD byl vytvořen jednoduchý model kanálu mezi palivovými tyčemi (geometrie VVER-1000) a bylo provedeno 15 výpočtů s různě volenými modely turbulence a mezní vrstvy. Bylo také vyzkoušeno použití jemnější sítě a jeho vliv na výsledek.

V budoucnu by mělo dojít k vytvoření přesnějšího modelu zahrnujícího více faktorů (aby bylo možné srovnání s experimentem) a také k rozšíření teoretických znalostí, především v oblasti numerické analýzy. Jedním z cílů je použití CFD výpočtů k nastavení přesnějších parametrů pro výpočty pomocí Systémových kódů.

9. Literatura

[1] POVOLNÝ, A. *Modelování proudění chladiva v aktivní zóně reaktoru pomocí CFD*, Bakalářská práce [disk]. Katedra jaderných reaktorů, Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská, České vysoké učení technické v Praze, 2012.
[2] KREJČÍ, J. *vystup_povolny.txt* [e-mail]. Příloha elektronické pošty ze dne 21. 8. 2012 pro <povolant@fjfi.cvut.cz> od <krejci.jakub@seznam.cz>.

POROVNANIE VÝPOČTOV PALIVOVÝCH KAZIET S VYHORIEVAJÚCIM GADOLÍNIOVÝM ABSORBÁTOROM V KÓDOCH SCALE A MCNP

Andrej Salaj
Ústav jadrového a fyzikálneho inžinerstva FEI STU, Bratislava

Abstrakt

Práca sa zaoberá zhrnutím poznatkov o využívaní gadolínia v oblasti jadrovej energetiky, predovšetkým jeho využitím ako vyhorievajúceho absorbátora v palivových kazetách pre ľahkovodné reaktory. Práca porovnáva jednotlivé typy palivových kaziet (PK) s využitím gadolínia a zaoberá sa výpočtami vyhorievania vybraných typov palivových kaziet pomocou výpočtového modulu TRITON kódu SCALE. Následne na základe týchto výpočtov zhodnocuje vývoj multiplikačného koeficientu výpočtami kritickosti v module KENO a verifikuje tieto výsledky výsledkami získanými v kóde MCNP. Výpočtami kritickosti v oboch kódoch demonštruje táto práca zvládnutie problému v obidvoch výpočtových prostrediach a ohodnocuje zmeny prevádzkových parametrov vplyvom použitia gadolíniového vyhorievajúceho absorbátora v jadrovom palive.

1. Úvod

Zefektívnenie ekonomiky palivového cyklu jadrových reaktorov (JR) sa okrem iného zameriava na zlepšenie využitia jadrového paliva počas kampane v JR. To je možné dosiahnuť napríklad použitím profilovaného paliva, paliva s vyhorievajúcimi absorbátormi, zvýšením počiatočného obohatenia paliva, zvýšením strednej hodnoty vyhorenia, ako aj doby pobytu paliva v reaktore.

Práve problematika vyššieho obohatenia, ako nutná podmienka pre predĺženie využitia paliva v jadrovom reaktore ide ruka v ruke s nutnosťou viazať prebytočnú reaktivitu takýchto palivových kaziet. K tomuto je nutné použitie vyhorievajúcich absorbátorov, akým je napríklad gadolínium.

2. Absorbátory a vyhorievajuce absorbátory

Absorpčné materiály majú dôležitú úlohu v systéme riadenia a ochrany jadrových reaktorov. V súčasnosti sa pozornosť zameriava na dosiahnutie vyššieho vyhorenia paliva najmä preto, aby mohol byť zvýšený koeficient využitia JE, aby boli predĺžené palivové kampane a aby bolo dosiahnuté lepšie využitie jadrového paliva. Ďalej sa neustále odďaľuje komerčné využívanie VJP a rovnako je snaha aj o znižovanie zaťaženia ŽP. Tieto trendy sú často protichodné a je veľmi náročné uspokojivo súčasne všetky realizovať. Napríklad pre dosiahnutie vysokých hodnôt vyhorenia je nutné premiestňovať PK v reaktore častejšie a pri kratších palivových kampaniach, ale pre zvýšenie koeficientu využitia JE je výhodné práve naopak pracovať s čo najdlhšou kampaňou paliva. Jednou z možností ako zvýšiť vyhorenie paliva a zároveň výrazne neovplyvniť ekonomické parametre prevádzky elektrárne, je využitie takzvaných vyhorievajúcich absorbátorov.

Vyhorievajúce absorbátory (VA) majú podstatný význam v riadení jadrového reaktora. Tieto materiály sa vyznačujú vysokou schopnosťou absorbovať neutróny a do aktívnej zóny sa vnášajú na viazanie prebytočnej zásoby reaktivity na začiatku kampane, pričom jedna z najdôležitejších vlastností je rýchlosť ich vyhorievania, ktorá musí korešponodovať s rýchlosťou vyhorievania jadrového paliva. Ako vyhorievajúce absorbátory sú vhodné izotopy s vysokým účinným prierezom pre absorpciu neutrónov, ale sučasne také, ktoré sa po absorpcii neutrónu menia na izotopy s malým alebo zanedbateľným účinným prierezom pre ďalšiu absorpciu neutrónov. Ako vyhorievajúce absorbátory pripadajú do úvahy najmä bór a gadolínium.

3. Gadolínium

Gadolínium je ôsmy člen skupiny lantanoidov a vyskytuje sa v ôsmich izotopoch. Je to mäkký, poddajný, striebristo biely ťažný kov vzácnych zemín. V zlúčeninách sa vyskytuje iba v mocenstve Gd^{+3}. Najvýznamnejšou vlastnosťou gadolínia, ktorá ho predurčuje na jeho využitie v jadrovej energetike, ako už bolo vyššie spomenuté, je jeho účinný prierez zachytenia tepelných neutrónov, ktorý je najvyšší zo všetkých známych prvkov. Vďaka tomu je dôležitý ako absorpčný materiál v systéme riadenia a ochrany jadrovej elektrárne. Táto vlastnosť spojená s rýchlosťou vyhorenia, ktorá je blízka rýchlosti vyhorenia ^{235}U a s dobru zlúčiteľnosťou s UO_2 a tým, že pri ožiarení nevznikajú dcérske produkty s vysokým účinným prierezom záchytu tepelných neutrónov robia z gadolínia ideálny vyhorievajúci absorbátor.

Izotop	Podiel	σ_a $[10^{-28}\ m^2]$	$T_{1/2}$	Typ rozpadu	Energia [MeV]	Produkt rozpadu
^{152}Gd	0.20%	14,4	$1{,}08.10^{14}$	α	2,205	^{148}Sm
^{154}Gd	2.18%	85,9	Stabilný			
^{155}Gd	14.80%	$6{,}1.10^{4}$	Stabilný			
^{156}Gd	20.47%	1,74	Stabilný			
^{157}Gd	15.65%	$2{,}55.10^{5}$	Stabilný			
^{158}Gd	24.84%	2,0-2,4	Stabilný			
^{160}Gd	21.86%	0,77	$1{,}3.10^{21}$	β−β−	1,7	^{160}Dy

Obr. 1 - Izotopy gadolínia

Spočiatku sa v jadrovom palive používali tabletky Gd_2O_3, ktoré sa vložili medzi tabletky z UO_2. Takéto rozloženie sa ale ukázalo ako neefektívne a začali sa používať palivové prútiky so zmesou UO_2 a Gd_2O_3, pričom sa používa prírodný Gd_2O_3 s hmotnostnou koncentráciou 3,35 % v tabletke s palivom. Takto rozmiestnený absorbátor umožňuje pri rovnakom výkone bloku ponechať vyššie obohatené palivo v reaktore dlhšiu dobu a tak prechádzať na dlhšie viacročné kampane, s čím priamo súvisí aj zníženie počtu každoročne vymieňaných kaziet.

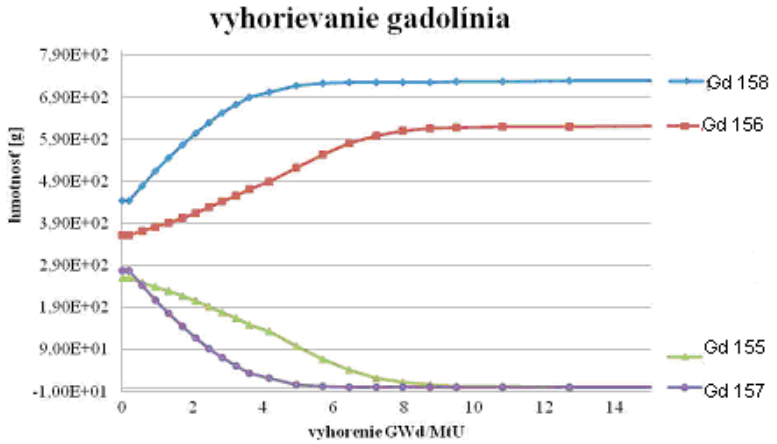
Medzi výhody, ktoré prináša zavedenie gadolínia ako VA patrí zvýšenie teploty tavenia paliva vo forme UO_2 , malý vplyv na poréznosť a veľkosť zŕn UO_2 paliva, dĺžka vyhorenia blízka k dobe vyhorenia UO_2, vznik dcérskych produktov s nízkym koeficientom absorpcie neutrónov a pri interakcii oxidu gadolínia s oxidom uránu vzniká zlúčenina pevného skupenstva.

Medzi nevýhody patrí zníženie počtu možností vo variantoch zostavenia AZ podľa skutočného stavu bezprostredne pred začiatkom novej kampane. Integrálny VA Nemôže byťdodatočne umiestnený v čiastočne vyhorenom palive alebo vyhovieť dodatočným požiadavkám na profilovanie po výške PK.

Gadolínium v palive pre jadrový reaktor je zmes izotopov, z ktorých nepárne po absorpcii neutrónu zvýšia svoje nukleónové číslo a menia sa na párne izotopy, ktoré už nie sú tak významným pohlcovačom neutrónov.

Z fyzikálneho hľadiska vytvárajú ^{155}Gd a hlavne ^{157}Gd "neutrónovú clonu" pre urán vo vnútri palivoveho prútika (resp. tablety), takže vnútorná oblasť paliva sa stáva prístupnou pre neutróny až s postupujúcim vyhorievaním oboch izotopov. Ako je zrejmé z grafu (obr. 2.), po ožiarení dostatočnom na vyhorenie východiskového množstva ^{155}Gd a ^{157}Gd, nastáva v prírodnom gadolíniu dynamická rovnováha. Z toho vyplýva, že pri vyhorení do približne 10 GWd/MtU sa významne uplatňujú absorpčné vlastnosti gadolínia a následne s rastúcim vyhorením paliva ich príspevok k zápornej reaktivite klesá až do stavu, kedy sa uplatní rovnováha medzi izotopmi a koncentrácie uvedených izotopov zostávajú prakticky nemennými v dôsledku ich vzniku z ^{154}Gd a ^{156}Gd. To zabezpečuje prakticky stálu zostatkovú pohlcovaciu schopnosť

gadolínia na konci kampane. Gadolínium umožňuje nielen lepšie vyrovnanie výkonu na začiatku cyklu, ale jeho význam spočíva aj v zvýšení podkritickosti skladovaných čerstvých kaziet.



Obr. 2 - Priebeh koncentrácií Gd v palive počas vyhorievania

4. Multiplikačný koeficient

Multiplikačný koeficient k_{inf} je parameter, ktorý charakterizuje štiepnu reťazovú reakciu v nekonečne veľkom prostredí a interpretuje tak násobiace vlastnosti prostredia. Je definovaný ako pomer počtu neutrónov v n-tej generácii k počtu neutrónov v (n-1)-tej generácii. Hodnota koeficientu k_{inf} je bezrozmerné číslo nadobúdajúce hodnoty <1, 1 a >1. Kritickosť štiepneho systému závisí od vlastností materiálu ako sú: účinné prierezy, hustoty, koncentrácie, obohatenia, čistoty, teploty a od geometrických vlastností danej sústavy.

5. Metóda Monte Carlo a jej charakteristika

Metóda Monte Carlo (MC) je numerická výpočtová metóda, ktorá na riešenie úloh využíva stochastický model a pomocou štatistiky a pravdepodobnostného rozdelenia, odhaduje hľadané numerické výsledky riešenej úlohy. Od ostatných numerických metód sa líši náhodným vzorkovaním pri hľadaní riešenia zadaného problému.

Využívanie metódy MC v oblasti jadrovej fyziky je opodstatnené z dôvodu, že deje a javy pozorované v jadrovej fyzike sú významne založené na pravdepodobnosti a teda vykazujú stochastický charakter, čím si vyžadujú na svoje riešenie použitie výhradne numerických metód a riešenie zložitých integrálov je prakticky možné tiež len numericky. Interakcia žiarenia s prostredím vykazuje stochastický charakter a transportná rovnica môže byť riešená numericky s použitím pravdepodobností interakcií. Aplikácia MC do riešenia problémov v jadrovej fyzike a v problémoch riešenia interakcie žiarenia rieši oba vyššie spomenuté obmedzenia. V tejto práci je riešená aplikácia výpočtových kódov na základe MC využívajúcich predovšetkým transportné MC.

Štatistický vzorkovací proces je založený na voľbe náhodných čísel. Pri transporte častíc je Monte Carlo číselný experiment v podstate pozostávajúci sledovaním každej z množstva častíc, od vzniku cez dobu jej života až po zánik (absorpcia, únik, atd.). Rozdelenie pravdepodobnosti je náhodne volené použitím transportných dát na určenie výsledku každého kroku života danej častice. V tomto systéme dokážeme znižovať neistotu výpočtu zvyšovaním počtu generovaných neutrónov na začiatku každého opakovania. Na zistenie optimálnych parametrov simulácie sa robia takzvané citlivostné analýzy. Preto sa pri náročných počítačových simuláciách sledujú tisícky inicializačných neutrónov v stovkách generácií.

6. MCNP 5

MCNP je všeobecne účelový výpočtový kód, je to skratka pre Monte Carlo N-Particle, čo znamená, že MCNP je kód na výpočet transportu častíc (neutróny, fotóny, elektróny alebo aj kombinácie) stochastickou metódou Monte Carlo, vrátane možnosti výpočtu parametrov pre kritickosť systémov. Je validovaný a pre vznikajúcu zhodu svojich výsledkov s experimentami je považovaný za referenčný kód Pre výpočet zadanej úlohy sa používala verzia MCNP 5 v1.40.

Kód MCNP verzia 5 v1.40, s ktorou sa riešili zadané problémy v tejto práci, je všeobecný kód počítajúci s kontinuálnou energiou častíc a zovšeobecnenou geometriou. Je to časovo závislý transportný kód riešiaci problémy v trojrozmernej konfigurácii. V zadaných výpočtoch sa používali knižnice typu ENDF VII.0, ktoré zahŕňajú aj informácie o účinných prierezoch v závislosti od teploty prostredia.

7. SCALE 6

Systém SCALE je nástroj obsahujúci moduly určené na riešenie širokého záberu jadrovofyzikálnych problémov. Systém sa na najvyššej vrstve skladá z dvoch základných typov modulov a to: riadiace a funkčné moduly. Riadiaci modul pre daný výpočet načítava vstupné údaje od užívateľa a generuje vstupné súbory pre funkčné moduly, ktoré volá v závislosti od riešenia konkrétneho problému. Funkčné moduly slúžia na vykonávanie konkrétnych čiastkových výpočtov, ktoré sú následne riadiacim modulom zbierané a vyhodnocované. Pre riešenie zvolenej úlohy boli použité nasledovné moduly.

TRITON:

Riadiaci modul pre dvoj a trojrozmernú analýzu a charakterizáciu vyhorievajúceho jadrového paliva z pohľadu transportu nuklidov a vyhárania. modul TRITON zahŕňa výpočty izotopického zloženia vyhoreného paliva a podporuje výpočty, ktoré umožňujú zisťovanie prierezov s ohľadom na teplotu paliva a moderátora, hustotu moderátora, koncentráciu bóru a vloženie kontrolných tyčí, ako funkciu vyhorenia. Tieto prierezy sú uložené v databáze, ktorá môže byť vyvolaná a spracovávaná v analyzačných kódoch. TRITON má schopnosť vykonávať dôsledné fyzikálne výpočty s niekoľkými implicitnými aproximáciami.

KENO VI.:

3D Monte Carlo modul optimalizovaný pre výpočet multiplikačného koeficientu neutrónov keff zo štiepenia systému. Tento funkčný modul môže byť použitý buď ako volaný modul vo výpočtovej sekvencii alebo aj ako samostatný výpočtový kód. KENO VI je rozšírený o možnosť modelovania komplikovaných geometrií, dokáže modelovať všetky geometrie popísateľné kvadratickými rovnicami a okrem toho dokáže už pracovať s rotáciami geometrii, trojuholníkovými mrežami, šesťuholníkovými geometriami, poliami či podmnožinami geometrii, čo dáva tomuto modulu vysokú flexibilitu použitia. Oproti starším verziám je výrazná hlavne schopnosť tohto modulu vykonávať výpočty v spojitom režime energií na rozdiel od mnohoskupinového prístupu modulu KENO V.

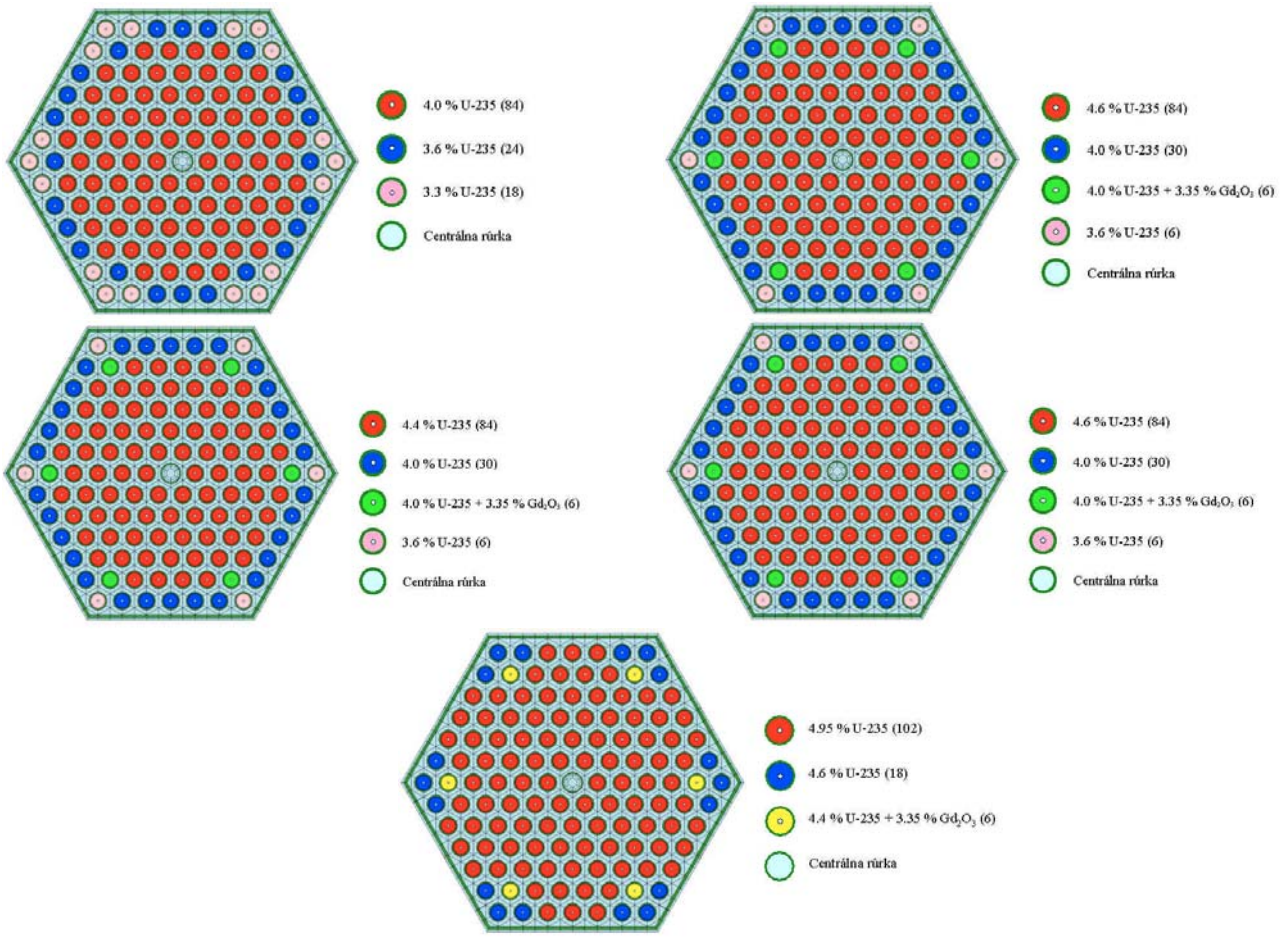
8. Praktická časť

Táto práca sa zaoberá verifikáciou výpočtov multiplikačného koeficientu palivových kaziet s obsahom vyhorievajúceho absorbátora na základe gadolínia vo forme Gd_2O_3 vo výpočtovom kóde určeného na riešenie kritickosti štiepneho systému KENO VI porovnaným s výpočtami v referenčnom kóde MCNP 5. Riešili sa vybrané kazety vyobrazené na Obr.3

Pre riešenie vyhárania JP počas kampane bol použitý modul TRITON, na základe ktorého bol obrdžaný výstup v podobe koncentrácií jednotlivých izotopov obsiahnutých v PK v niekoľkých desiatkach časových momentov v priebehu vyhorenia. Tieto koncentrácie následne slúžili ako materiálový vstup pre jednotlivé modely kódov KENO a MCNP, ktoré v týchto bodoch vyriešili multiplikačný koeficient

namodelovanej sústavy. Vyhorenie sa sledovalo po hodnotu 50 GWd/tU s krokom približne 0,8 GWd/tU do 10 GWd/tU, kvôli presnému stanoveniu koncentrácií pre jemnejšie simulovanie vplyvu vyhárania Gd na multiplikačný koeficient. Následne bol zvolený krok približne 2 GWd/tU, pretože tu už sa nepredpokladala zmena trednu krivky, nakoľko koncentrácia Gd by už mala byť ustálená. Model bol zostavený ako nekonečná 2D mreža PK a to nastavením rozhrania moderátora obklopujúceho PK s vonkajším prostredím ako 100 % reflektor.

Následne po získaní výsledkov vyhárania bol vytvorený model pre výpočty v moduloch KENO a MCNP. Všetky modely zohľadňovali aj teplotu materiálov, zvolenú podľa najbližšej teplote definovanej v použitých knižniciach ENDF VII a to 900 °K pre palivo a He a 600 °K pre pokrytie a moderátor. Výpočty v module KENO boli uskutočnené s 238 skupinovou knižnicou energií ako aj presnejší výpočet s kontinuálnymi energiami. Tieto boli verifikované výpočtami s kontinuálnymi energiami v kóde MCNP.



Obr. 3 - Model riešených kaziet (zlava doprava zhora dolu) Profilovaná kazeta 3,82%, Gd1 4.38%, Gd2 4.25%, Gd2M 4.38%, Gd2R 4.87%

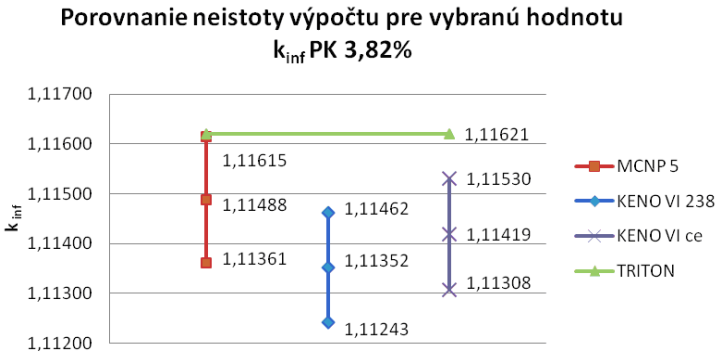
Okrajové podmienky boli nastavené tak aby sa dosiahol kompromis medzi presnosťou a časovou náročnosťou výpočtu. Počet inicializačných neutrónov bol po citlivostnej analýze stanovený na 10 000. Od tohto údaju sa odvíja presnosť výpočtu vzhľadom na rozptyl sigma, ktorý sa takto dostal na úroveň približne $\pm 4.10^{-4}$ pri presnosti jednej sigma. Rovnako bolo potrebné stanoviť aj počet celkových cyklov a počet cyklov nezahrnutých do štatistiky. Tento parameter bol stanovený na 260 celkových cyklov a 10 neaktívnych. Neaktívne cykly, sú prvé v poradí výpočtu a vzhľadom na citlivostnú analýzu riešenia sa nezapočítavajú do výsledku kvôli veľkej zaťaženosti nepresnosťou a následným možným nežiaducim skreslením výsledku.

9. Výsledky výpočtov

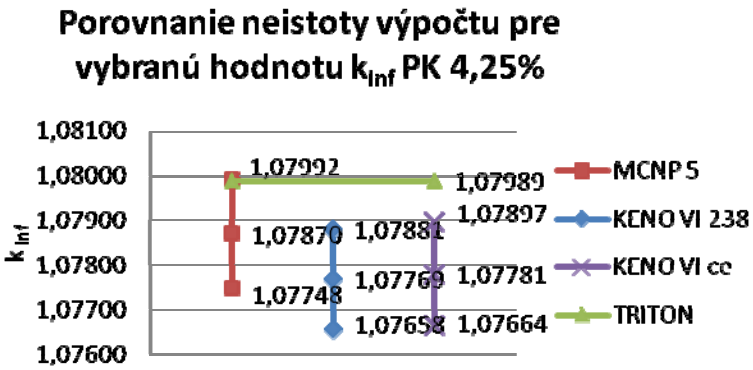
V tejto časti sú zosumarizované výsledky výpočtov multiplikačného koeficientu vybraných PK a zhodnotenie porovnania výsledkov oboch typov výpočtov v kódoch KENO VI v porovnaní s MCNP 5. Následne sú vyhodnotené priebehy multiplikačného koeficientu palivových kaziet jednotlivých typov získané výpočtami v jednotlivých výpočtových kódoch v priebehu vyhorievania a následne sú zhodnotené z pohľadu vplyvu gadolíniového vyhorievajúceho absorbátora na tento priebeh.

- **Verifikácia výpočtov KENO VI a MCNP 5**

Pre všetky výpočty boli nastavené zhodné okrajové podmienky a vlastnosti výpočtu. Počítala sa vždy rovnaká trojica modelov, v ktorých sa priebežne menilo izotopické zloženie paliva. základné parametre výpočtu boli zadefinované rovnako a to uskutočnenie výpočtov s 10000 inicializačnými neutrónmi pre každú generáciu a počítanie v celkovom počte 260 generácií, z ktorých sa prvých 10 nezapočítavalo do výsledného odhadu. Vybrané hodnoty s maximálnou relatívnou odchýlkou výsledkov KENO VI – MCNP 5 sú ilustrované na v grafe na obrázku 4 a 5. V grafe sú zakreslené maximálne smerodajné odchýlky 3.σ, ktoré zaručujú obsiahnutie skutočnej hodnoty na úrovni viac ako 99 %.



Obr. 4 - Graf výsledkov s maximálnou relatívnou odchýlkou KENO-MCNP



Obr. 5 - Graf výsledkov s maximálnou relatívnou odchýlkou KENO-MCNP

Z vypočítaných hodnôt vynesených do grafov je zrejmé, že výpočty uskutočnené v kóde KENO VI sa v závislosti od zvolenej metódy evidente líšia v presnosti v porovnaní s výsledkami získanými z MCNP. Riešenia získané z výpočtov systémom MCNP sa budú ďalej nazývať presné.

Pri riešení PK s obohatením 3,82% bez použitia gadolínia sa relatívne odchýlky riešení mnohoskupinovou metódou pohybovali na priemernej úrovni 0,1104 %. Riešenia s použitím analogickej

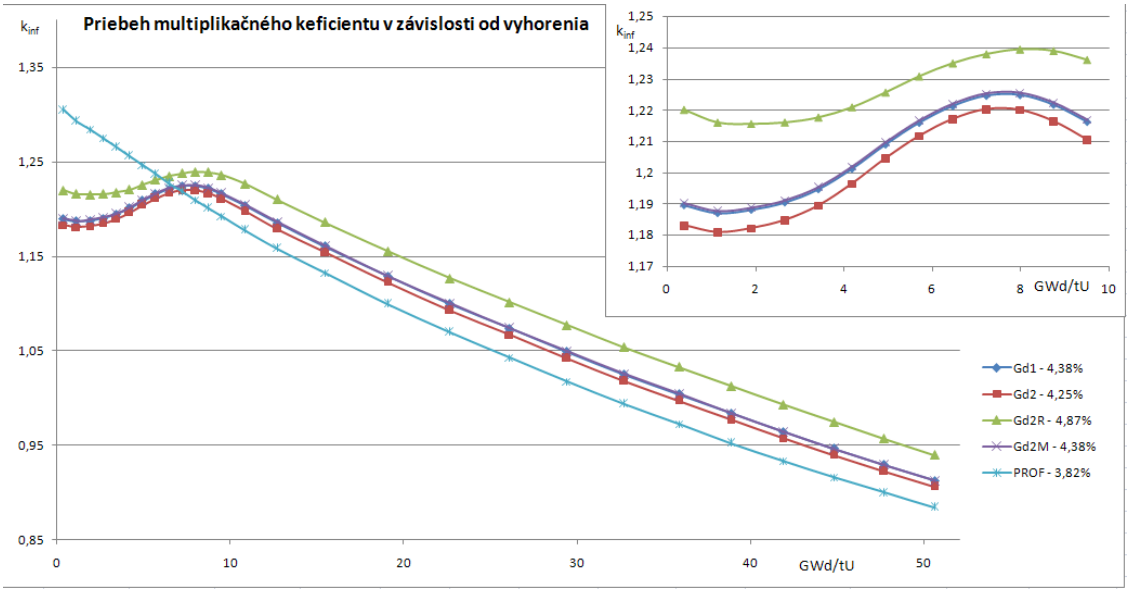
metódy ako v MCNP, teda metódy s kontinuálnymi energiami, sa relatívne odchýlky pohybovali na priemernej úrovni 0,03721%. Z daných výsledkov sa dá usúdiť, že mnohoskupinová metóda je menej presná, čo je logické, pretože táto potrebuje v priebehu výpočtu nutne využívať aproximácie účinných prierezov izotopov, z čoho môže a evidentne plynie určité skreslenie. Na rozdiel od presnejšieho výpočtu s kontinuálnymi energiami však takýto spôsob riešenia ponúka výsledky v relatívne dobrej zhode s presnými výsledkami. Metóda riešenia s kontinuálnymi energiami ponúka výrazné spresnenie avšak stále vykazujúce určité konštantné vychýlenie od presných výsledkov. Toto vychýlenie môže byť spôsobené najmä prípadným zaokrúhľovaním materiálových vstupov pri prepočtoch na jednotky používané v module KENO. Pri porovnaní analogických výpočtov obomi metódami pre kazetu s obohatením 4,25% s použitím gadolínia, vidíme mierne zvýšenie relatívnych odchyliek výsledkov a to na úroveň 0,1197% u mnohoskupinovej metódy a 0,04625% u metódy kontinuálnych energií. Toto odchýlenie je pravdepodobne spôsobené zahrnutím izotopov gadolínia do materiálového modelu, kde i malá koncentrácia významne vpýva na výsledok a tak prípadné nezrovnalosti v modeloch pre jednotlivé kódy ako aj ich riešení sú ešte zreteľnejšie. Mnohoskupinová metóda vykazovala počas celého priebehu vyhorievania väčšiu nepresnosť, ktorá však pre potreby riešenia zadanej úlohy na základe porovnania intervalov 3 sigma stále môže byť tolerovaná. Vo všeobecnosti výsledky výpočtov v KENO VI možno považovať za porovnateľné s referenčnými hodnotami získanými výpočtom v kóde MCNP 5.

- **Výpočty priebehu multiplikačného koeficientu**

V tejto časti sú zhodnotené výsledky výpočtov multiplikačných koeficientov jednotlivých konfigurácií PK s obsahom gadolínia a ich vzájomné vyhodnotenie. Na základe verifikačných výpočtov uskutočnených v predošlej kapitole a vzhľadom na časovú náročnosť a množstvo potrebných kalkulácií bol ako základný model pre tieto výpočty zvolený mnohoskupinový výpočet modulom KENO VI.

PK sú počítané na základe rovnakých modelov ako v predchádzajúcej kapitole. Na vynesených krivkách sa dajú ľahko odpozorovať zmeny priebehy k_{inf} v závislosti od vyhorenia zanesené vplyvom gadolínia. Z dôvodu veľkej mierky na grafe nie sú zobrazené smerodajné odchýlky, ktoré aniv jednom prípade neprekročili požadovanú presnosť $\pm 5.10^{-4}$.

Z vynesených závislostí priebehu multiplikačného koeficientu je zrejmé ako sa zmení charakter rýdzomonotónneho klesajúceho priebehu krivky kazety bez použitia vyhorievajúceho absorbátora, po použití gadolínia. Na začiatku kampane teda zhodne u všetkých gadolíniových PK pozorujeme významné obmedzenie reaktivity s postupným uvoľňovaním až do vyhorenia približne 9 GWd/tU, kedy multiplikačný koeficient PK dosahuje svoje maximum a po ustálení koncentrácií izotopov gadolínia na rovnovážnej úrovni už pozorujeme priebeh krivky s rovnakým trendom ako u kaziet bez použitia vyhorievajúceho absorbátora. Pri porovnaní priebehov kaziet Gd-1 a Gd-2M je viditeľný len málo odlišný posun krivky, je to z dôvodu prakticky rovnakej konfigurácie PP v kazete. Jediný vplyv, ktorý zabezpečuje kazete Gd-2M mierne vyššie dosahované hodnoty je zmena v konštrukčných rozmeroch zabezpečujúca nárast množstva paliva v PK. Kazeta Gd-2 má podľa očakávania analogický priebeh avšak celkom logicky posunutý o približne 0,05 jednotiek k nižším hodnotám z dôvodu nižšieho priemerného obohatenia PK. Naproti tomu kazeta Gd-2R s priemerným obohatením na úrovni 4,87% U^{235} vykazuje značné zvýšenie nadobúdaných hodnôt a rovnako z dôvodu značne vyššieho obohatenia možno pozorovať miernejší pokles reaktivity na začiatku kampane respektíve menej výrazné maximum v čase ustálenia koncentrácií izotopov gadolínia, čo je spôsobené príliš veľkou reaktivitou, ktorú už gadolínium nebolo schopné zaviazať tak účinne ako u kaziet s nižším priemerným obohatením. Následne je však po vyhorení gadolínia pozorovaný očakávaný priebeh s rovnakým trendom ako u všetkých ostatných kaziet. Z tohto pohľadu je zrejmý pozitívny prínos použitia gadolínia ako vyhorievajúceho absorbátora pre jadrové palivo. Jeho schopnosť viazať prebytočnú reaktivitu vyššie obohatených PK na začiatku kampane a jej následné postupné uvoľňovanie, tvorí základný princíp predlžovania pobytu paliva v reaktore a tým významne vplýva na zvyšovaní ekonomickosti prevádzky jadrového paliva ako aj celej jadrovej elektrárne.



Obr. 6 - Priebeh multiplikačného koeficientu získaný výpočtom modulom KENO VI

10. Záver

Táto práca mala za úlohu zhodnotiť vplyv gadolínia pre prevádzku jadrového paliva a výpočtovo podložiť predpokladané dopady jeho použitia. Zhrnuté teoretické poznatky o gadolíniu, konštrukcii PK a konfigurácii jednotlivých modelov palivových kaziet boli základom k nosnej časti práce, ktorá sa venovala vytvoreniu a overeniu modelov jednotlivých PK s použitím gadolínia vo výpočtových kódoch systému SCALE a MCNP. Jedna z úloh tejto práce bola ozrejmiť si prácu s výpočtovým kódom KENO a overiť si korektnosť vytvorenia modelu pre výpočty multiplikačného koeficientu systému PK cez modul CSAS6 na základe overených verifikačnými výpočtami kódom MCNP 5. Práca s modulom KENO VI bola zvládnutá, čo potvrdzujú aj verifikačné výpočty a porovnania výsledkov, ktoré sa pre dané zjednodušenia podarilo dosiahnuť v dobrej zhode s výsledkami dosiahnutými kódom MCNP 5. Následne práca výpočtovo zhodnotila príspevky gadolínia pre vývin reaktivity počas vyhárania všetkých skúmaných typov PK. Dosiahnuté výsledky výpočtov sú v jednoznačnej zhode s teoretickými poznatkami a predpokladmi použitia takéhoto vyhorievajúceho absorbátora na prevádzku jadrového paliva a potvrdzujú tak jeho významnú úlohu v systéme zvyšovania ekonomickosti prevádzky jadrových elektrární.

11. Literatura

[1] SLUGEŇ, V., LIPKA, J., HAŠČÍK, J., PAVLOVIČ, M., NEČAS, V.: Jadrovoenegetické zariadenia, FEI STU Bratislava, 2003

[2] NEČAS, V.: Materiálové aspekty jadrových elektrární. 1.vyd., FEI STU Bratislava, 2009.

[3] SALAJ, A.: Porovnanie palivových kaziet s vyhorievajúcim gadolíniovým absorbátorom využívaných v ľahkovodných reaktoroch FEI STU 2010 bakalárska práca

[4] WINTER, M.: Gadolinium, online 10.11.2011, dostupné na internete: http://www.webelements.com/gadolinium/

[5] ČUDRNÁK, P.: Minimalizácia nerovnomernosti výkonu v palivovej kazete reaktora VVER-440 s gadolíniom, Bratislava, FEI STU 2009, diplomová práca

[6] LAVRENYUK, P.I., MOLOCHANOV, V.L.: VVER fuel update, Online 12.11.2011, dostupné na internete: http://www.neimagazine.com/story.asp?sectionCode=76&storyCode=2060517

[7] OTČENÁŠEK, P.: Fyzika reaktorů III. Praha: Ediční středisko ČVUT, 1983.

[8] X-5 MONTE CARLO TEAM, MCNP – A General Monte Carlo N- Particle Transport Code, Version 5, Los Alamos, April 2003.

[9] ORNL: SCALE: A Modular Code System for Performing Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation, verzia 6, CD-Rom, 2009

OVĚŘENÍ NOVÉHO ROZVÁDĚCÍHO KOLEKTORU UVNITŘ BARBOTÁŽNÍ NÁDRŽE NA BLOCÍCH ETE

František Tlamsa
ČVUT Praha
Fakulta strojní, Ústav energetiky

Abstrakt

Cílem diplomové práce je analyticky a experimentálně ověřit dostatečnost kondenzace páry v barbotážní nádrži jaderné elektrárny Temelín po zavedení nového kolektoru.

Práce popisuje důvod navrhovaných změn, technické řešení kolektoru, výpočet kondenzace páry a provedený ověřovací experiment.

Výsledkem této práce je ověření, že navrhovaný kolektor splňuje zadané požadavky a lze jej použít.

1. Analýza úkolu

Cílem diplomové práce je analytické a experimentální ověření dostatečnosti kondenzace páry v barbotážní nádrži (dále BN) jaderné elektrárny Temelín. BN slouží potlačení tlaku v případě použití pojistných ventilů kompenzátoru objemu a následném odfouknutí páry. BN je směšovací kondenzátor pára – voda. Pára probublává studenou vodou, čímž kondenzuje a zároveň vodu ohřívá kondenzačním teplem.

V rámci modernizací prováděných na blocích jaderné elektrárny Temelín je jako opatření pro zvýšení provozuschopnosti bloků zaveden do BN nový kolektor, který má za úkol separovat trasu YR havarijního odvodu paroplynové směsi z I.O. a trasu YP24 pro přechod z dusíkového polštáře na parní od stávající trasy od odlehčovacího a pojišťovacích ventilů I.O. do BN. Tím by se měla zvýšit provozuschopnost bloku a snížit riziko neplánovaného odstavení z důvodu roztěsnění pojistných ventilů kompenzátoru objemu.

Z hlediska provozního použití trasy YP24 a pravidelných provozních zkoušek trasy YR je důležité, aby přiváděná pára v BN zkondenzovala a aby nedošlo k zvýšení tlaku v BN, což by mohlo způsobit porušení pojistných membrán v BN.

V letošním roce, tj. 2012, byl první kolektor zaveden do BN druhého hlavního výrobního bloku a v příštím roce, tj. 2013, by tato úprava měla být provedena na bloku 1.

2. Úprava barbotážní nádrže

Následující kapitola zdůvodňuje potřebu zavést do BN nový kolektor a klade základní požadavky na jeho tvar, velikost a umístění.

2.1 Současný stav, důvod a požadavky na úpravu BN

Ve výchozím stavu (viz Obr. 1) byla na JE Temelín do výfukové trasy spojující pojistné ventily KO (dále pojistný ventil) a odlehčovací ventil KO (dále odlehčovací ventil) s BN zaústěna trasa YR havarijního odvodu paroplynové směsi z I.O. a trasa YP24 pro přechod z dusíkového polštáře na parní. Toto zapojení tras bylo za provozu bloku pravidelně testováno a bylo používáno pro přechod z dusíkového na parní polštář. Mohlo však způsobit roztěsnění sedel pojistného a odlehčovacího ventilu. Tento problém mohl být způsoben rázovým zvýšením tlaku za kuželkou pojistného ventilu při přepouštění páry těmito trasami. Při přepouštění bylo třeba ze stávajícího kolektoru v BN nejprve vytlačit vodu v úrovni dané nominální

hladinou BN, anebo vodu nasátou podtlakem, který byl způsobený kondenzací páry po předchozím použití kolektoru.

Nejvyšší nároky na dimenzování nového kolektoru kladl požadavek odvodu potřebného množství mokré páry při začátku havarijního režimu Feed & Bleed. Pro uvažovaný havarijní režim jsou uvedeny parametry média v místě napojení stávající trasy YR do stávající trasy spojující pojistný ventil a odlehčovací ventil s BN. Tyto hodnoty byly ve výpočtech přepočítány pro novou trasu zakončenou novým kolektorem v BN.

Ať už při havarijním stavu nebo při testování funkčnosti ventilů YR nastává na začátku procesu Feed&Bleed tento stav - v KO je uvažován tlak 15,7 MPa a z KO je odpuštěna pára na mezi sytosti z prostoru nad hladinou v KO. Podél trasy YR vzhledem k poklesu tlaku, narůstá podíl vodní fáze ve formě kapiček unášených proudem páry.

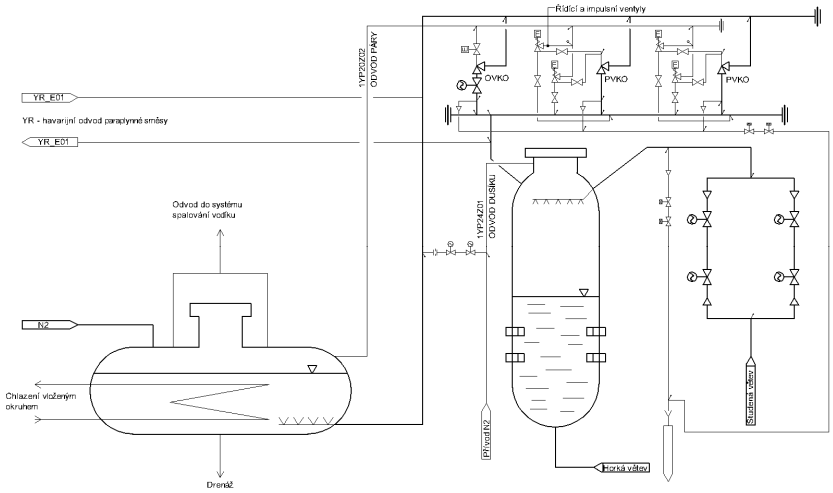
Parametry média v místě napojení stávající trasy YR do stávající trasy spojující pojistný ventil a odlehčovací ventil s BN:
médium: mokrá pára
hmotnostní průtok páry: 19,54 kg s-1
hmotnostní průtok vody: 4,28 kg s-1
teplota: 266°C
tlak: 5,21 MPa

Detailními termohydraulickými výpočty v rámci konstrukce nového kolektoru však bylo zjištěno, že maximální propustnost trasy DN 65 je při daných parametrech 18,42 kg/s syté páry. Snížení průtoku vede k prodloužení počáteční fáze Feed&Bleed.

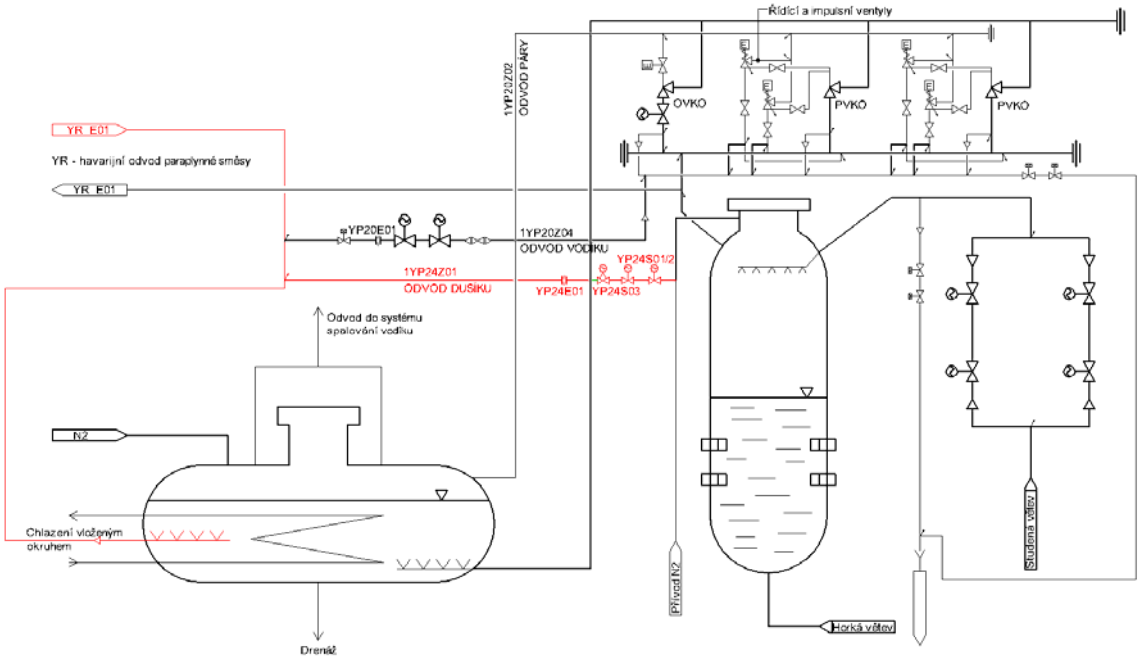
Trasa s novým rozváděcí kolektorem je znázorněna na Obr. 2.

2.2 Kolektor

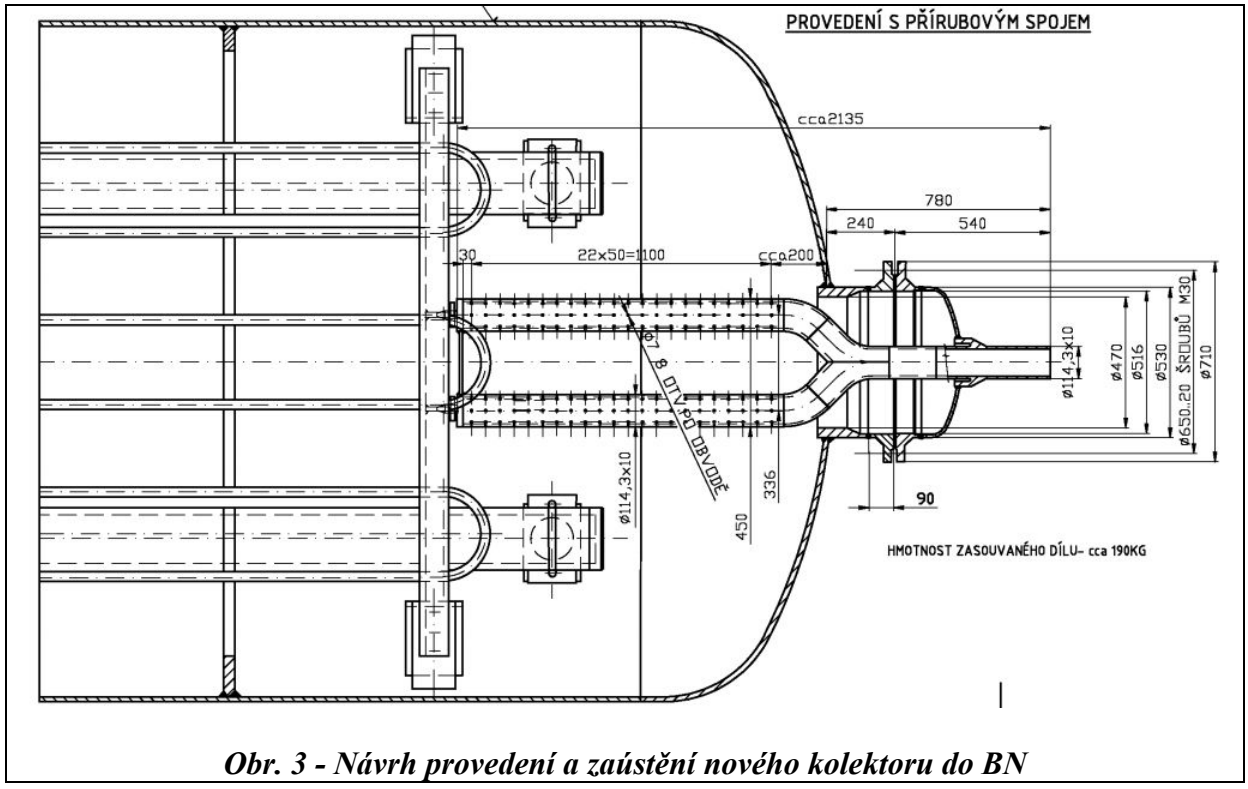
Zhotovitel a dodavatel kolektoru navrhl a zhotovil variantu s 8 dírami po obvodu. Každá díra má průměr 7 mm a vzdálenost jednotlivých řad děr je 50 mm. Kolektor o rozměrech 114,3 x 10 mm má celkem 368 děr, je však rozdělen na dva stejné kusy s jednotným přívodem. Výkres kolektoru je na Obr. 3.



Obr. 1 - Stávající stav zapojení BN do soustavy



Obr. 2 - Návrh zapojení nové trasy



Obr. 3 - Návrh provedení a zaústění nového kolektoru do BN

3. Kondenzace páry při přímém kontaktu s vodou

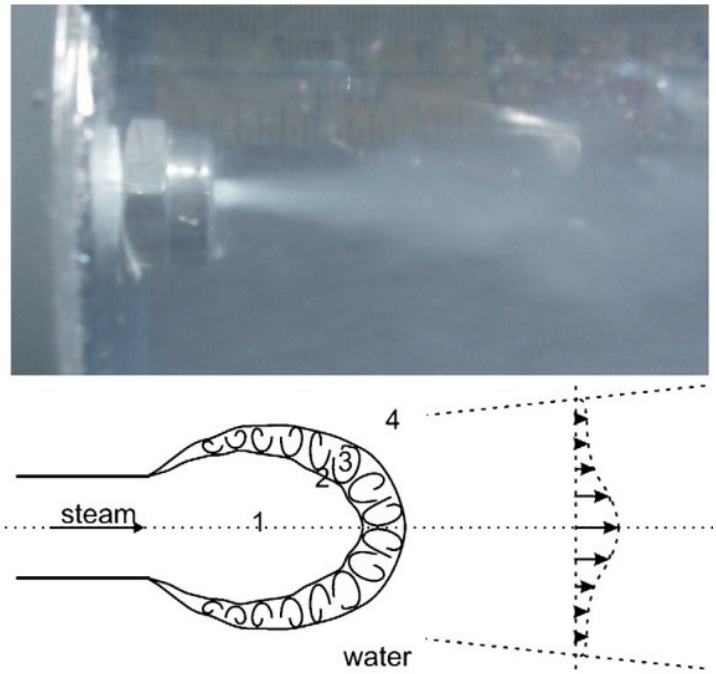
Pro tento děj se v anglické literatuře používá označení DCC (direct contact condensation). Nastává v okamžiku, kdy je pára vstříknuta do vody a dochází k přímému přestupu tepla z bublinek vodní páry do vody. Na výstupu z trysky se vytváří tzv. steam plume, volně přeloženo jako parní jazyk. Jeho chování, tvar

a velikost závisí na teplotě, tlaku a průtoku páry. Dále na velikosti, směru a hloubce ponoření trysky a na teplotě vody, do které je pára vstříknuta. Při vysokém průtoku páry a při teplotě vody blížící se teplotě varu, může pára probublávat jako nekondenzující plyn. A naopak, při nízkém průtoku páry a nízké teplotě vody je parní jazyk nepatrný. Z tohoto důvodu lze pouze obtížně předpovědět chování páry při kondenzaci.

DCC se používá v jaderném průmyslu k potlačení tlaku jak u PWR, tak u BWR. Při tomto ději se využívá velmi vysoký součinitele přestupu tepla (1 ÷ 3,5 MW/m2K), který je způsoben turbulencí v těsné blízkosti rozhraní voda – vodní pára.

3.1 Oblasti kondenzace

Proces kondenzace sestává vždy ze čtyř rozdílných oblastí. První oblast je samotná pára vytvářející viditelný parní jazyk. Vnější povrch parního jazyka tvoří rozhraní, kde začíná docházet k DCC. Kolem rozhraní se nachází vrstva horké vody, kde dochází ke kondenzaci bublin a jejich promíšení s chladnější vodou. Tuto vrstvu obklopuje voda, do které je pára vstřikována. Tyto čtyři oblasti nemusí být vždy patrné, nicméně se vždy při DCC vyskytují.
Oblasti jsou popsány na Obr. 4.



Obr. 4 - Ukázka DCC (1 – pára, 2 – rozhraní, 3 – vrstva horké vody, 4 – voda) + schéma procesu kondenzace (R. K. CALAY, A. de WITH, G. de WITH, Three-dimensional Condensation Regime Diagram for Direct Contact Condensation of Steam Injected into Water, Hatfield 2006, s. 1766).

Režimy DCC

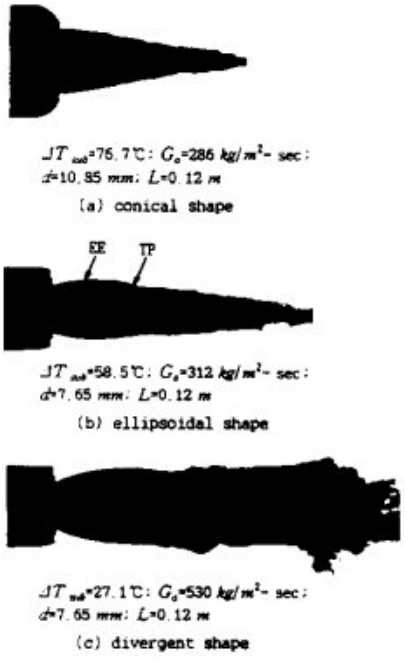
Dynamiku a geometrický tvar parního jazyka je možno rozdělit do třech hlavních režimů (viz Obr. 5):

- chugging regime (dále CHR, volně přeloženo jako režim chrlení)
- jetting regime (dále JR, volně přeloženo jako režim tryskání)
- bubbling regime (dále BR, volně přeloženo jako režim bublání)

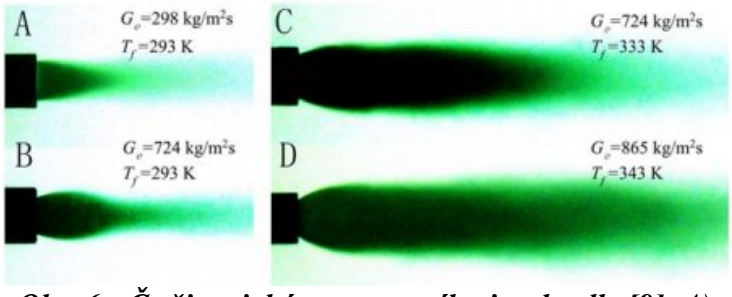
Případně do 4 (v závislosti na autorech rozdělení, viz Obr. 6):

- contraction shape – pro malý hmotnostní tok a nízkou teplotu vody v nádrži
- expansion-contraction shape – pro vyšší hmotnostní tok a nízkou teplotu vody v nádrži
- double expansion-contraction shape - pro vyšší hmotnostní tok a zvyšující se teplotu v nádrži
- divergent shape - pro vyšší hmotnostní tok a teplotu vody nad 50°C

Snad všechny výše zobrazené tvary parního jazyka bylo možné pozorovat při experimentu, který je popsán níže.



Obr. 5 - Ukázka tvarů parního jazyka a) kónický, b) eliptický, c) divergentní (Moon-Hyun CHUN, Yeon-Sik KIM, Jee-Won PARK, An Investigation of Direct Condensation of Steam Jet in Subcooled Water, Taejon 1996, s. 957.)



Obr. 6 - Čtyři typické tvary parního jazyka dle [9], A) contraction, B) expansion-contraction, C) double expansion-contraction, D) divergent (WU, Xin-Zhuang, a kol., Experimental Study on Sonic Steamjet Condensation in Quiescent Subcooled Water, Xi´an 2009, s. 5004.)

Z teoretického pochopení DCC bylo možno určit omezení na provoz kolektoru.

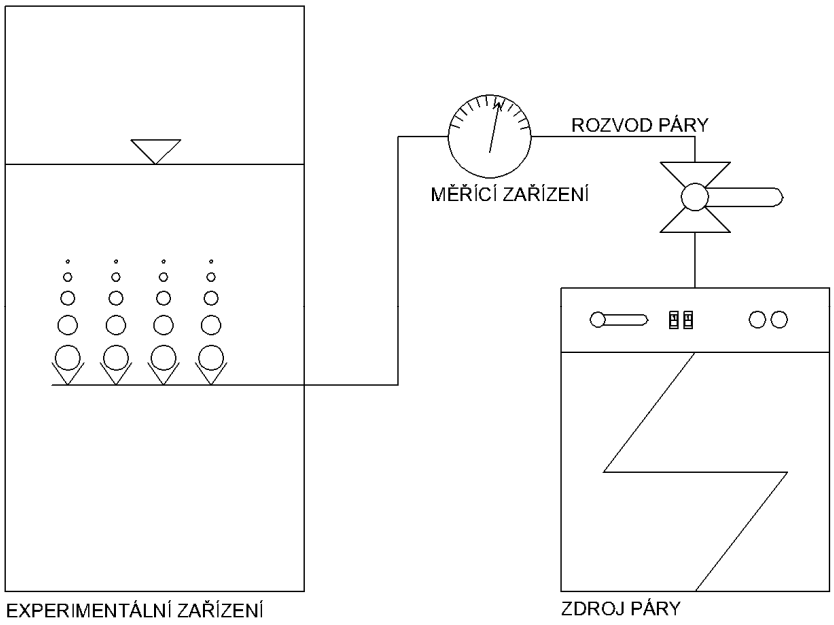
První omezení je kladeno na maximální teplotu vody v BN, aby ještě docházelo ke kondenzaci a pára neprobublávala na hladinu. Toto omezení by nemělo způsobovat potíže, neboť teplota vody v BN zadaná provozním předpisem splňuje podmínky kondenzace, tzn., že na začátku procesu Feed&Bleed podmínky splněny jsou, zatímco na konci procesu se již počítá s poškozením membrán BN a výtokem do kontejmentu. Druhé omezení klade na minimální hodnotu hmotnostního toku páry, aby kondenzace probíhala až v BN a ne uvnitř kolektoru. Kondenzace páry v kolektoru totiž způsobuje tlakové oscilace a s tím spojené rázy, které by nepříznivě namáhaly přívodní potrubí, spoje a celou BN.

4. Experimentální zařízení

Experimentální zařízení bylo zhotoveno tak, aby korespondovalo navrženému řešení. Byl dodržen průtok páry jednou dírou kolektoru, rozměry kolektoru (průměr a tloušťka stěny), výška hladiny, parametry páry a teplota vody v nádrži. Schéma zapojení je na Obr. 7.

5. Ověřovací experiment

S cílem co nejvěrohodněji ověřit výpočty délky parního jazyka bylo použito výše popsané experimentální zařízení k ověřovacímu experimentu, kdy byl nasimulován co možná nejodpovídající stav (tzn. tlak, teplota a hmotnostní tok páry), který je předpokládán pro nový kolektor BN ETE.



Obr. 7 - Schéma zapojení experimentálního zařízení

V průběhu vypracování této práce proběhly 3 experimenty. Vyhodnocen byl poslední experiment, který se hodnotami páry nejvíce blížil předpokládanému stavu.

První experiment simuloval probublávání nekondenzujícího plynu. Bylo patrné, že se bubliny ve výšce 10 ÷ 15 cm nad kolektorem shlukují. Při odtržení bubliny od kolektoru byl naměřen její největší průměr 38 mm.

Druhý experiment byl proveden v laboratořích ČVUT. Experimentální zařízení bylo připojeno na sytou páru o tlaku 0,68 MPa. Postupně se proměnily jednotlivé navržené kombinace děr s ohledem na průtok páry, tzn. jedna a 5 děr vodorovně uspořádané (vertikální výtok), 8 děr po obvodě a 6 děr (tři a tři díry tvoří po obvodě kruhovou výseč s vrcholovým úhlem 90°, střední díra má vertikální výtok). Důležitým výsledkem bylo zjištění, že se jednotlivé parní jazyky neovlivňují.

Třetí experiment při předpokládaném tlaku se uskutečnil ve výměníkové stanici elektrárny Poříčí. Experimentální zařízení bylo připojeno na zdroj páry, kdy parametry páry v průběhu testu odpovídaly předpokládanému stavu počátku Feed&Bleed.

Vzhledem k předchozím zkušenostem byl experiment proveden pouze pro vertikální výtok jednou a deseti děrami.

K odečtení délky parního jazyka byla na kolektor připevněna měrka délky 100 mm se zápichy po 5 mm.

Každý experiment byl nasnímán kamerou, záznam převeden do počítače a následně vyhodnocen pomocí programu AutoCAD. Vyhodnocení je díky vícero okolnostem pouze přibližné, nicméně pro tuto práci dostatečné.

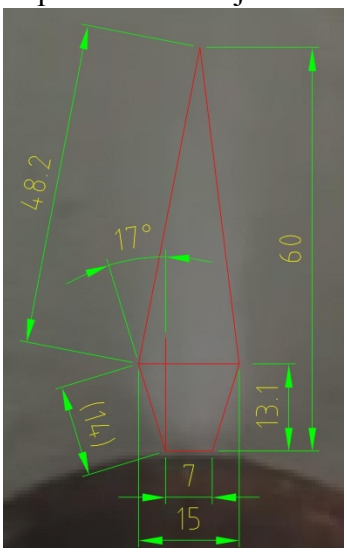
Hlavním přínosem experimentu je ověření vhodnosti návrhu parního kolektoru pro barbotážní nádrž v JE Temelín. Při nasimulování předpokládaných podmínek pro zkoušku i pro samotný režim Feed&Bleed bylo ověřeno, že pára s jistotou zkondenzuje dříve, než dorazí k hladině. Tím se zabrání navýšení tlaku v BN.

6. Analytické výpočty, výpočty pomocí korelací

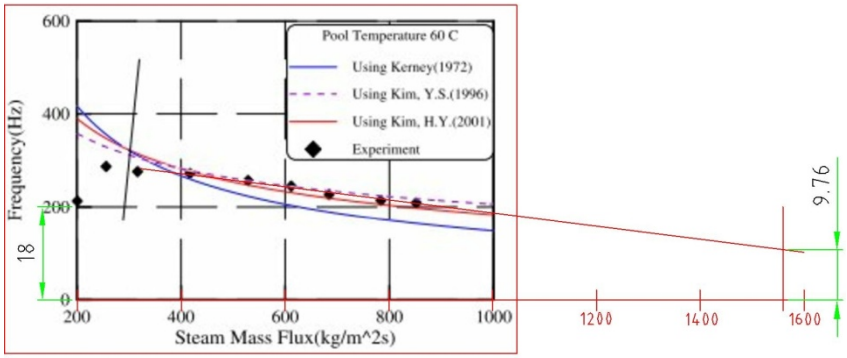
Bylo provedeno několik druhů výpočtů dráhy kondenzace. První výpočet se zakládal na dynamice parní bubliny ve vodě a v páře. Následovaly výpočty pomocí korelací jednotlivých autorů a jejich srovnání.

Do jednotlivých korelací byly dosazeny parametry páry, vody a rozměry parního jazyka, které byly naměřeny při experimentu, popř. následně vyhodnoceny (viz Obr. 8). Všechny výpočty potvrdily dráhu kondenzace v jednotkách centimetrů, některé přesněji, jiné méně.

Z praktických důvodů byl doporučen výpočet autora odborného článku Honga, který pro jednotlivé teploty vody a hmotnostní toky naměřil frekvenci kondenzace. Z naměřených hodnot, které jsou zaneseny v grafu, lze jednoduše odečíst přibližnou frekvenci kondenzece (viz Obr. 9) a z ní dopočíst délku kondenzace. Pro tento výpočet není potřeba znát plochu parního jazyka jako v případě ostatních rovnic. Výsledek vyjde v určitém rozsahu. Řádově se jedná a desítky milimetrů, což je pro tuto práci stěžejní, neboť se přibližně shoduje s naměřenými výsledky.



Obr. 8 - ukázka vyhodnocení parního jazyku



Obr. 9 - Ukázka odečtení přibližné frekvence kondenzace

7. Závěr

Tato práce potvrdila výpočetně i experimentálně technické řešení rozváděcího kolektoru, který je zaveden do BN jaderné elektrárny Temelín z důvodu zamezení roztěsnění odlehčovacího a pojistných ventilů.

Popsáním procesu kondenzace páry v přímém kontaktu s vodou byly stanoveny obecné limitující podmínky pro provoz rozváděcího kolektoru. Těmito podmínkami jsou maximální teplota vody v BN, aby stále ještě docházelo ke kondenzaci a dále minimální průtok páry kolektorem, aby ke kondenzaci docházelo v BN a ne uvnitř kolektoru.

Experimentálním ověřením se při nasimulování předpokládaných provozních podmínek potvrdilo, že navržený kolektor vyhovuje podmínkám zadání. Pára s jistotou kondenzovala na dráze kratší než 100 mm při teplotě vody v nádrži 60°C.

Ve výpočtové části byla několika způsoby výpočtem ověřena délka parního jazyka pro podmínky při experimentu. Všechny výpočty potvrdily dráhu kondenzace v jednotkách centimetrů, některé přesněji, jiné méně.

Z těchto výpočtů byl doporučen ten nejpraktičtější. Výpočet je založen na odečtu z grafu naměřených hodnot a následném dopočtení délky kondenzace.

Tato práce splnila předsevzaté cíle a pro řešení dané problematiky by měla být přínosem.

8. Literatura

[1] TLAMSA, František, *Ověření nového rozváděcího kolektoru uvnitř barbotážní nádrže na blocích ETE (diplomová práce)*, Praha 2012.

STANOVENÍ EMISE NEUTRONOVÉHO ZDROJE

Petr Vácha
ČVUT Praha
Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská

Abstrakt

Cílem bakalářské práce bylo shrnout vývoj metody stanovení emise zdroje neutronů – metody manganové lázně, se zaměřením na použité korekční faktory a způsoby určení objemu. Dále je popsána manganové lázeň a gama spektrometrický systém používaný na katedře jaderných reaktorů FJFI ČVUT. Součástí práce jsou také experimentální stanovení objemu nádoby manganové lázně KJR pomocí ozářeného roztoku $MnSO_4$ a stanovení emise dvou Am-Be zdrojů neutronů.

Úvod

Radionuklidové zdroje neutronů jsou v současnosti využívány zejména v dozimetrii při ověřování měřidel prostorového dávkového ekvivalentu a osobních dozimetrů, v geologii, v některých metodách instrumentální aktivační analýzy, v lékařství při brachyterapii určitých nádorů, ve vlhkoměrech a v neposlední řadě při spouštění jaderných reaktorů. Metoda manganové lázně se postupem času stala dominantní metodou při stanovování emise radionuklidových zdrojů neutronů, tedy určení počtu neutronů emitovaných zdrojem za sekundu.

Hlavními cíli mé bakalářské práce bylo vypracovat literární rešerši na téma metody manganové lázně, se zaměřením na použité korekční faktory, detektory a metody stanovení objemu lázně. Druhá část byla věnována popisu manganové lázně a HPGe gama spektrometrického systému používaných na Katedře jaderných reaktorů (KJR). Na ní navazuje závěrečná část, ve které jsou popsány provedené experimenty – stanovení objemu lázně, srovnávací měření emise zdrojů neutronů a stanovení emise zdroje neutronů metodou manganové lázně.

Metoda manganové lázně

Základní princip této metody spočívá v termalizování a záchytu neutronů pomocí vodného roztoku $MnSO_4$. V závislosti na koncentraci roztoku je až 50 % neutronů emitovaných zdrojem zachyceno ^{55}Mn [1], který se poté rozpadá s poločasem rozpadu 2,57878 ± 0,00046 h [2] podle rovnice:

$$^{55}Mn + n \rightarrow {}^{56}Mn \rightarrow {}^{56}Fe + \beta^- + \gamma \qquad (1)$$

Po určité době (obvykle se uvádí přibližně 10 poločasů rozpadu) se aktivita lázně dostane do saturovaného stavu, kdy je v rovnováze produkce nových jader ^{56}Mn a radioaktivní rozpad ^{56}Mn. Mezi aktivitou lázně a počtem neutronů emitovaných zdrojem jasně existuje korelace a je možné ho z nasycené aktivity lázně vypočítat.

Provedení lázně a měřící aparatury

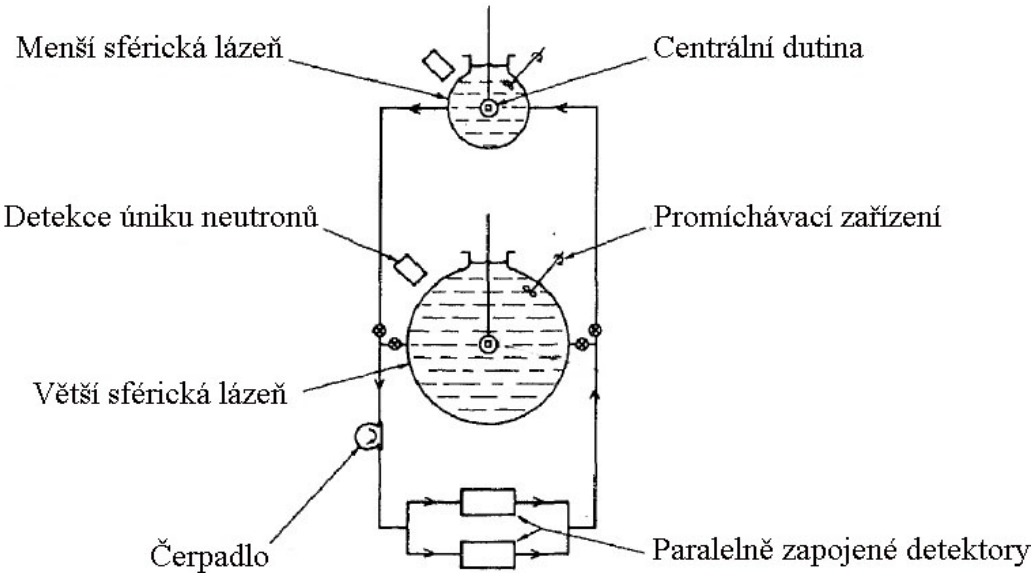
Historicky byl pro manganovou lázeň volen sférický tvar (díky jednodušším výpočtům a také lepší možnosti vyhnout se nehomogenitám uvnitř lázně), někteří průkopníci využívali i lázně cylindrického tvaru.

Nádoba lázně je většinou vyrobena z oceli nebo průhledného plastu, s vnitřním průměrem pohybujícím se většinou v rozmezí 50 – 130 cm [1]. Menší lázně mají tu výhodu, že v nich je možné provést dostatečně přesná měření i pro zdroje s nízkou emisí, na druhou stranu z nich více neutronů uniká a výsledek je třeba výrazněji opravit korekčními faktory.

Zdroj se před umístěním do lázně hermeticky uzavře do malé duté nádobky, obvykle tvaru koule nebo válce s průměrem několika centimetrů, vyrobené z materiálu s nízkým účinným průřezem pro záchyt neutronů. Tímto se zamezí přímému styku zdroje s roztokem $MnSO_4$, dojde k rovnoměrnějšímu toku neutronů do lázně (vzduch v nádobce nefunguje jako moderátor), a zároveň je tím zabráněno vysokému toku tepelných neutronů v bezprostředním okolí zdroje, který by zapříčinil vysokou absorpci neutronů ve zdroji. [1]

V neposlední řadě je nutno vyřešit, jakým způsobem bude zdroj v nádobce umístěn do lázně a fixován na místě. I zde existuje mnoho metod, od prostého připevnění dvojicí drátů na spodní a vrchní straně nádobky se zdrojem, přes tyč z pevného materiálu napojenou na nádobku, až po sofistikovaná automatická umisťovací zařízení.

Z hlediska provedení měření jsou možné v zásadě dva přístupy. Historicky starší přístup je izolovaná lázeň, ze které je po ozáření roztoku vyjmut zdroj, lázeň je pečlivě promíchána a poté je měřena aktivita lázně. Novější přístup je průtočná lázeň [3], kdy je roztok kontinuálně čerpán skrz nádobu do oddělené komory obsahující detektor, a poté zpět do lázně. Na Obr. 1 je schéma typického průtočného systému.



Obr. 1 - Schéma průtočného systému stanovení emise zdroje neutronů [4]

Výpočet emise zdroje

Emisi zdroje lze zapsat ve tvaru: [5]

$$B = \frac{A}{\varepsilon f(1 - L - S - O)}, \qquad (2)$$

kde B je emise zdroje, A je saturovaná aktivita ^{56}Mn v lázni, ε je účinnost použitého detektoru, L je korekční faktor na únik neutronů z lázně, S je korekční faktor na záchyt neutronů ve zdroji a součástkách uchycení zdroje v lázni, O je korekční faktor na reakce rychlých neutronů na kyslíku a síře a f je podíl, určující kolik ze zbývajících neutronů je zachyceno jádry manganu.

Veškerá složitost v chování neutronů v difuzním prostředí, geometrie zdroje a jeho anizotropie a další je tedy reprezentována touto sadou korekčních faktorů.

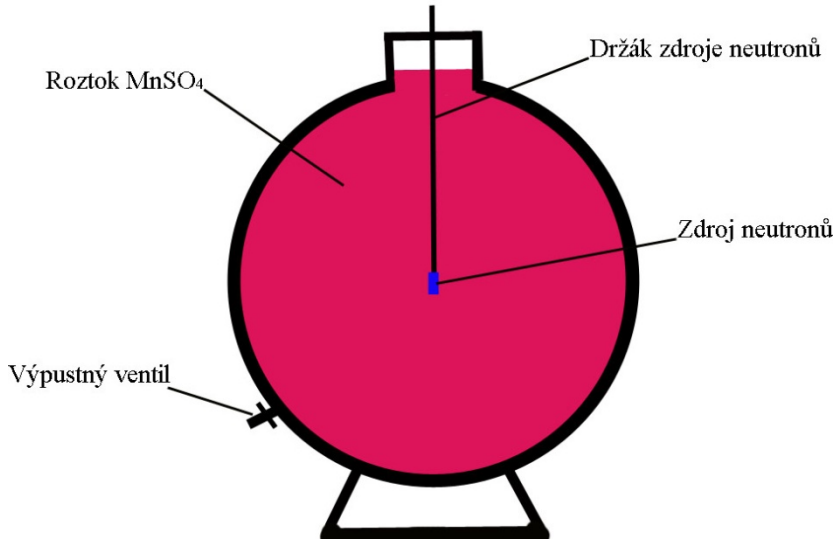
Vývoj korekcí lze z historického hlediska shrnout do tří etap:

1) Experimentální určení korekčních faktorů nebo jejich výpočet pomocí difuzní teorie.
2) Výpočet korekčních faktorů metodou Monte Carlo.
3) Přímý výpočet počtu neutronů zachycených na manganu v lázni pomocí výpočetních kódů.

V dnešní době se ke stanovení korekcí používají výhradně výpočetní kódy. Nejčastěji používaným je kód MCNP.

Manganová lázeň KJR

Manganová lázeň KJR je koncipována jako lázeň malého průměru – 650 mm, sférického tvaru, s objemem roztoku přibližně 150 l. Nádoba lázně je vyrobena z průhledného polymethylmethakrylátu (plexiskla) tloušťky 10 mm, neprůtočná, ve spodní části s vypouštěcím ventilem. Schéma manganové lázně KJR je na Obr. 2, fotografie lázně při odebírání vzorků pro měření na Obr. 3.



Obr. 2 - Schéma manganové lázně na pracovišti reaktoru VR-1

Zdroj neutronů je v lázni umístěn na pevné ocelové tyči se závitem, která je navržena pro práci s používanou válcovou geometrií zdrojů neutronů ve vlastnictví KJR. Tento systém je navržen tak, aby měřený zdroj byl umístěn přesně uprostřed nádoby. Promíchání lázně před odebráním vzorků je zajištěno malým akvaristickým čerpadlem umístěným přímo do lázně a majícím průtok 10 l/min.

Obr. 3 - Fotografie manganové lázně KJR při odběru vzorku

Chemickou analýzou v roce 1984 bylo zjištěno, že lázeň obsahuje roztok síranu manganatého o vysoké čistotě, hustota roztoku 1,23 g/cm3 a koncentrace 20,84 ± 0,02 % hmot. V roce 2009 byla provedena nová analýza roztoku lázně KJR s výsledky: Hustota roztoku 1,20 g/cm3, koncentrace roztoku 21,5 % hmot. Vzhledem k větší aktuálnosti je tento výsledek považován za platný pro současnou lázeň.

Gama spektrometrický HPGe systém

Gama spektrometrický HPGe systém na pracovišti reaktoru VR-1 se skládá z HPGe (High Purity Germanium – germánium o vysoké čistotě) detektoru od firmy Canberra, typ GC218-7500SL, zesilovače Canberra 2016, mnohakanálového amplitudového analyzátoru AccuSpec B (16k) a PC se softwarem Canberra Genie 2000. Polovodičový detektor je umístěn v olověném stínícím boxu o vnitřních rozměrech 450 x 450 x 600 mm. [6]

Detektor je koaxiálního typu, chlazený tekutým dusíkem. Základ tvoří monokrystal vysoce čistého germania o rozměrech: průměr 55,5 mm, výška 45,5 mm. Deklarovaná relativní účinnost detekce je 25 % a pološířka impulzu (energetické rozlišení) 0,816 keV při 122 keV a 1,74 keV při 1332 keV. Svodový proud má při doporučených provozních parametrech certifikovanou hodnotu menší než 0,1 nA. Detailnější informace bohužel nejsou dostupné, firma vyrábějící detektor je považuje za své know-how a nezveřejňuje je.

Provedené experimenty

V rámci bakalářské práce bylo provedeno celkem pět experimentů – třikrát byla stanovena emise zdroje neutronů pomocí metody manganové lázně, jedenkrát proběhlo měření objemu nádoby manganové lázně KJR pomocí ozářeného roztoku $MnSO_4$ a jedenkrát bylo provedeno srovnávací měření emise zdrojů neutronů v ČMI (Českém Metrologickém Institutu).

Srovnávací stanovení emise zdrojů neutronů

Pro experimentální stanovení emise pomocí manganové lázně KJR byly zvoleny dva Am-Be zdroje. Jeden s certifikovanou emisí $1,1 * 10^7$ n/s ve tvaru válce s vnějšími rozměry 30 mm (průměr) x 60 mm (výška) a identifikačním číslem 5751 NE. Druhý s certifikovanou emisí $1,9 * 10^5$ a vnějšími rozměry 17,4 mm (průměr) x 19,2 mm (výška), identifikační označení CZ/1014/S-96.

Vzhledem k tomu, že certifikát slabšího zdroje CZ/1014/S-96 pochází z roku 2006 a silnějšího zdroje 5751 NE z roku 1983, bylo rozhodnuto o provedení srovnávacího stanovení jejich současné emise. K tomu byl použit proporcionální plynový detektor plněný heliem vložený dovnitř Bonnerovy sféry o průměru 17,8 cm (7 palců).

Stanovení emise dvou zdrojů KJR probíhalo jako porovnávací měření – již dříve byly stejným detektorem ve stejné geometrii změřeny četnosti impulzů pro dva Am-Be zdroje s řádově stejnými emisemi a se stejnou geometrií jako zdroje KJR. Konkrétně šlo o zdroje s identifikačním kódem 5709 NE a s emisí $(1,05 \pm 0,01)*10^7$ n/s a druhý s identifikačním číslem 2626 a emisí $(7,38 \pm 0,06)*10^5$ n/s, oba ve vlastnictví ČMI. U těchto dvou zdrojů byla hodnota emise přesně stanovena metodou manganové lázně v ČMI.

Následně byla změřena četnost impulzů pro dva zdroje KJR a porovnáním s emisí a četností impulzů změřených pro zdroje ČMI byla vypočtena jejich emise. Pro všechny zdroje byla provedena tři měření a počet impulzů za sekundu následně zprůměrován.

Výsledné takto změřené emise zdrojů KRJ byly $(1,15 \pm 0,01)*10^7$ n/s a $(1,94\pm 0,02)*10^5$ n/s.

Měření objemu nádoby manganové lázně

Objem nádoby manganové lázně KJR byl změřen pomocí roztoku $MnSO_4$ ozářeného ve školním výzkumném reaktoru VR-1.

Celkem 10 ml roztoku bylo v kapsli vloženo do kanálu H6 aktivní zóny C5, tedy do jejího středu. Ozařování probíhalo po dobu 11 min. při výkonu reaktoru, kterému odpovídá výtěžek neutronů $1,0 * 10^8$ n/s. Roztok byl následně rozdělen na dvě části – 1 ml byl přidán do neaktivního roztoku $MnSO_4$ v Marinelliho nádobě a zbývajících 9 ml bylo přidáno do manganové lázně. Po důkladném promíchání byl z lázně odebrán vzorek roztoku do druhé Marinelliho nádoby a pomocí HPGe spektrometrického systému u obou změřena aktivita. Výsledný objem byl určen poměrnou metodou na 165,3 ± 0,8 l.

Stanovení emise zdroje neutronů

Pro stanovení emise byla použita manganová lázeň KJR a gama spektrometrický HPGe KJR. Dvakrát byla měřena emise Am-Be zdroje č. 5751 NE (emise $(1,15 \pm 0,01) * 10^7$ n/s) a jedenkrát emise Am-Be zdroje CZ/1014/S-96 (emise $(1,94 \pm 0,02) * 10^5$ n/s).

Postup měření byl při všech třech experimentech stejný. První den byl zdroj vložen do lázně a zapsán čas s přesností na minuty. Po přibližně 24 hodinách ozařování byl zdroj z lázně vyjmut a opět zapsán čas. Následně bylo do lázně vloženo čerpadlo a roztok se začal promíchávat. Při průtoku čerpadla 10 l/min bylo odhadnuto, že k dokonalému promíchání lázně by mělo stačit přibližně 45 minut. Po promíchání byl výpustným ventilem proveden odběr vzorků roztoku do předem zvážených Marinelliho nádob o objemu 450 ml – nejprve byl roztok několikrát nalit zpět do lázně, aby se předešlo nechtěným kontaminacím z hadičky vedoucí k ventilu. Poté byly do Marinelliho nádob odebrány dva vzorky roztoku a odneseny do laboratoře s detektorem. Po zvážení naplněných nádob se mohlo přikročit k samotnému měření aktivity.

Geometrie Marinelliho nádob je pro měření HPGe spektrometrem KJR zvlášť výhodná – její centrální prohlubeň má stejné rozměry jako vyústění detektoru a nádoba tedy může být „nasazena“ na detektor. Tím se oproti jiným geometriím podstatně zvětší prostorový úhel, ze kterého na detektor dopadají fotony.

Ke stanovení energetické kalibrace detektoru byl použit radionuklidový etalon typu MBSS 2 v geometrii Marinelliho nádoby, o objemu 450 ml, s přesně známými aktivitami šesti různých radionuklidů. Radionuklidy etalonu vyzařují gama částice o známých energiích, v programu Genie 2000 tedy stačí v datech naměřených detektorem nalézt jejich píky a zadat energii, jakou by měli mít – program již provede další kroky k dokončení kalibrace automaticky.

Pro stanovení detekční účinnosti byla vybrána data naměřená 19. 4. 2011 Ing. Kolrosem a Ing. Vinšem. ^{56}Mn vyzařuje většinu kvant gama o třech energiích – 846,769 KeV, 1810,775 KeV a 2113,104 KeV. Podle kalibrační křivky jsou detekční účinnosti pro tyto energie 0,011, 0,0039 a 0,0027.

Pro tři energie fotonů ^{56}Mn se získají tři příslušné aktivity vzorku, které je dále nutné opravit pomocí korekčních faktorů. Pro lázeň KJR určil korekční faktory Ing. J. Rataj, Ph.D. výpočetním kódem MCNP a jejich hodnoty jsou: $L = 0,00547$, $f = 0,37581$, $S \mid O = 0,03674$. Emise zdroje se poté určí z rovnice (2).

Po korekcích stále zbývají tři dílčí emise zdroje pro tři energie rozpadu ^{56}Mn. Výsledná emise zdroje neutronů je určena jejich váženým průměrem, za váhové faktory jsou brány hodnoty relativních emisních účinností na rozpad jádra. V Tab. 1 jsou zaneseny výsledky všech tří experimentálních stanovení emisí zdrojů neutronů.

Datum	Zdroj	Vzorek č.	Emise stanovená ČMI [n/s]	Emise stanovená Mn lázní KJR [n/s/]	Relativní odchylka [%]
15. 12. 2011	5751 NE	1	$(1,15 \pm 0,01)*10^7$	$(0,94 \pm 0,01)*10^7$	18,26
15. 12. 2011	5751 NE	2	$(1,15 \pm 0,01)*10^7$	$(0,99 \pm 0,01)*10^7$	13,91
17. 4. 2012	5751 NE	1	$(1,15 \pm 0,01)*10^7$	$(1,01 \pm 0,01)*10^7$	12,17
17. 4. 2012	5751 NE	2	$(1,15 \pm 0,01)*10^7$	$(1,06 \pm 0,01)*10^7$	7,83
24. 4. 2012	CZ/1014 /S-96	1	$(1,94 \pm 0,02)*10^5$	$(1,91 \pm 0,04)*10^5$	1,55

Tab. 1 - Stanovení emise neutronových zdrojů pomocí manganové lázně KJR

Diskuse

Jedním z hlavních cílů experimentální části této práce bylo stanovit objem manganové lázně KJR. Vzhledem k dostupnosti vhodného jaderného reaktoru bylo rozhodnuto o zjištění objemu metodou ozáření roztoku $MnSO_4$. Výsledná nejistota měření, která je přibližně 0,5 %, ukazuje, že tato metoda je pro měření objemu manganové lázně vyhovující. Nejistota měření by šla ještě dále snížit při opakování pokusu s vhodnější volbou času ozařování a výkonu reaktoru.

Výsledné emise dvou neutronových zdrojů se přiblížily hodnotám naměřeným v ČMI s relativní odchylkou 7,83 % pro silnější zdroj a 1,55 % pro slabší zdroj. Kombinovaná nejistota měření byla ± 1 % pro silnější zdroj, resp. ± 2,4 % pro slabší zdroj. Vzhledem k výukovým účelům, ke kterým hlavně lázeň KRJ slouží, to lze považovat za uspokojivý výsledek. Bohužel roztok byl slabším zdrojem ozářen příliš málo na to, aby mohla být provedena analýza více vzorků, takže nebylo možné určit, zda je přesnější výsledek při měření slabšího zdroje neutronů reprodukovatelný. Menší ozáření také přispělo k větším nejistotám v hodnotách ploch píků a tedy i k větší kombinované nejistotě měření

Všechny změřené emise jsou nižší, než stanovená v ČMI, dalo by se tedy předpokládat, že je při všech měřeních přítomná systematická chyba. Možným zdrojem chyb mohou být nesprávné hodnoty korekčních faktorů, nebo nesprávná kalibrace spektrometrického systému.

Zajímavým faktem je také vyšší změřená hodnota emise pro v pořadí druhý odebraný vzorek, a to při obou měřeních emise silnějšího zdroje neutronů. Hodnoty naměřené při v pořadí druhém experimentu jsou také obě vyšší, než při prvním. Jedinými rozdíly v postupu mezi těmito dvěma experimenty bylo to, že při prvním provedeném experimentu byl po promíchání ozářené lázně a odběru vrácen zpět do nádoby pouze přibližně 0,5 l roztoku a další dva odebrané vzorky již byly analyzovány, zatímco při druhém experimentu bylo výpustným ventilem odebráno a následně vráceno do lázně přibližně 3 l roztoku, než bylo přikročeno k samotnému odběru vzorků pro analýzu. Zdá se tedy, že mezi množstvím roztoku, které prošlo před odběrem analyzovaných vzorků výpustným ventilem, a naměřenou emisí zdroje existuje korelace.

Závěr

Manganová lázeň byla na KJR je v několika ohledech ojedinělá. Průměrem nádoby 650 mm se řadí k lázním velice malého průměru, použití HPGe spektrometrického systému pro měření aktivity ^{56}Mn také není rozšířené. Pořízena byla hlavně pro výukové a vědecké účely, ne pro maximálně přesné stanovení emise zdroje neutronů, jaké je dosahováno v laboratořích vydávajících certifikáty o emisi. Největší nejistota ve výsledcích stanovení emise pomocí této manganové lázně byla v určení objemu – byl odhadován na

150 ± 20 l. Výsledky stanovení emise tak měly velice malou vypovídací hodnotu. V této práci byl objem nádoby manganové lázně přesně změřen a určen jako 165,3 ± 0,8 l. Použití ozářeného roztoku pro stanovení objemu nádoby je také neobvyklý postup. Praktická realizace ukázala, že jde o postup vyhovující a lze jím dostatečně přesně změřit objem nádoby. Odstraněním velké nejistoty v hodnotě objemu lázně mohla být provedena stanovení emise zdrojů neutronů a zjištěno, s jakou přesností je možné současným systémem měřit. Výsledky posledních měření se od skutečné emise odchylovaly o méně než 10 % (silnější zdroj) a v případě slabšího zdroje se dokonce v rámci nejistot měření shodovaly.

Případné zavedení externího okruhu s čerpadlem umožňující soustavné promíchávání roztoku po celou dobu ozařování zdrojem by pomohlo dále snížit nebo úplně odstranit systematickou chybu vzniklou nečistotami ve výpustném ventilu. Pozornost by zasloužilo i navržení centrální dutiny pro umístění zdroje do lázně, která patří k obvyklým komponentám manganových lázní.

Literatura

[1] Roberts, N., Moiseev, N., Králík, M: Radionuclide neutron source characterisation techniques, Metrologia, Vol.48, No.6, (2011) 1-15

[2] DDEP – The Decay Data Evaluation Project, online http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm, citace 2. 12. 2012

[3] Axton, E.J., Cross, P., Robertson, J.C.: Calibration of the NPL standard Ra-Be photoneutron sources by an improved manganese sulphate bath technique, J. Nucl. Energy A/B, Vol. 19 (1965), 409

[4] Axton, E.J.: Accuracies and corrections in neutron bath techniques, NBS SP 493 (1977) 237

[5] Axton, E.J., Bardell, A.G: Neutron yield from the spontaneous fission of ^{252}Cf, Metrologia, Vol. 21 (1985), 59-74

[6] Matějka, K. a kol. : Experimentální úlohy na školním reaktoru VR-1, skriptum ČVUT, Praha, 2004

SOUČASNÝ STAV VÝZKUMU V OBLASTI JADERNÉ ENERGETIKY NA ÚSTAVU ELEKTROENERGETIKY FEKT VUT V BRNĚ

Štěpán Foral, Karel Katovský
Vysoké učení technické v Brně
Fakulta elektrotechniky a komunikačních technologií
Ústav elekroenergetiky

Abstrakt

Příspěvek popisuje současný stav jaderného výzkumu a jaderného vzdělávání na Ústavu elektroenergetiky FEKT VUT v Brně. Jsou zde ve stručnosti představeny projekty, na kterých se UEEN podílí a také spolupracující instituce. Dále je zde představen výzkum zvyšování tepelné vodivosti jaderného paliva UO_2 jakožto jedno z témat, které je aktuálně řešeno v rámci doktorského studijního programu na UEEN v oblasti jaderné energetiky.

1. Historie jaderného výzkumu v Brně

Jaderný výzkum na Vysokém učení technickém v Brně je historicky spojen zejména s vědeckou skupinou prof. Dubčeka a prof. Matala, kteří se intenzivně věnovali vývoji sodíkových parogenerátorů na Katedře tepelných a jaderných energetických zařízení (dnešní Odbor energetického inženýrství) na Fakultě strojního inženýrství. Díky jejich snaze byl vyvinut nový druh oceli s obsahem molybdenu, který lépe odolával korozi v sodíkovém prostředí, a byl proto vhodný pro konstrukci sodíkových parogenerátorů. Významným úspěchem světového významu byl také vývoj nového, tzv. modulárního, konceptu sodíkového parogenerátoru, který byl úspěšně provozován na jaderném reaktoru BOR 60 v Dimitrovgradu. Tento typ se vyznačoval zejména vysokou provozní bezpečností a bezproblémovým provozem. Se jménem prof. Matala a jeho týmu je spojen také výzkum v oblasti transmutačních technologií a reaktorů s tekutým palivem. Je vhodné zmínit např. experimentální zařízení FLUORIDA sestavené pro výzkum chování fluoridových solí v solných reaktorech, které se nacházelo taktéž na Katedře tepelných a jaderných energetických zařízení.

Po dokončení jaderných elektráren Dukovany a Temelín ovšem zájem o studium jaderné energetiky všeobecně klesal a ve spojení s generační výměnou a ekonomickou transformací společnosti klesala i podpora jaderného výzkumu na VUT v Brně. Po roce 2005 se výzkum v oblasti jaderné energetiky minimalizoval na několik málo projektů, akreditace na jaderně-energetický obor taktéž nebyla obnovena. V souvislosti s obnovou personálu na Elektrárně Dukovany a plánem na výstavbu nových zdrojů v lokalitě Elektrárny Temelín se zvyšuje také zájem o studium jaderné energetiky na VUT v Brně. Pro zkvalitnění procesu vysokoškolské výuky se týmy na VUT také stále více zapojují do projektů základního a aplikované výzkumu v oblasti jaderné energetiky.

2. Řešené projekty

Skupina zabývající se jadernou energetikou na Ústavu elektroenergetiky FEKT VUT v Brně, soustředěná kolem Karla Katovského, Štěpána Forala a Jana Varmuži, navazuje na tradici výuky a výzkumu jaderné energetiky, kterou dlouhodobě na UEEN budovali docent Jiří Raček a docent Antonín Matoušek. Tato skupina se od roku 2011 snaží postupně zapojovat do vzdělávacích a výzkumných projektů, řešených v České republice a podává od roku 2012 vlastní návrhy grantů. Rozvoj těchto aktivit se opírá zejména o spolupráci s Energetickým ústavem Fakulty strojního inženýrství a skupinu Jiřího Martince a Huga Šena a spolupráci v rámci české sítě jaderného vzdělávání CENEN. Vzhledem k limitovaným možnostem skupin na UEEN i EÚ, absenci technického vybavení, docentů a profesorů, je vzájemná spolupráce jedinou možnou cestou k úspěšnému rozvoji výuky i výzkumu v jaderné oblasti na VUT. V rámci brněnského regionu byla navázána také spolupráce s Odborem povrchových úprav a Odborem keramických materiálů na FSI a s okruhem odborníků zabývajících se energetickou bezpečností na Masarykově univerzitě. Rozvoj se mimo

této spolupráce a sítě CENEN opírá také o mezinárodní kontakty s americkými univerzitami a mezinárodním ústavem SÚJV Dubna v Ruské federaci.

V současné době je týmem UEEN řešeno šest projektů souvisejících s jadernou energetikou a dva projekty se nacházejí v procesu hodnocení podaných návrhů. V rámci zapojení Ústavu elektroenergetiky FEKT do regionálního výzkumného centra CVVOZE – Centrum výzkumu a využití obnovitelných zdrojů energie se v odborné problematice tohoto centra začíná objevovat problematika jaderné energetiky a výzkum vztahů v soustavě s množství obnovitelných a jaderných zdrojů. V tomto ohledu se jedná pravděpodobně o první centrum zaměřené na obnovitelné zdroje, které se nevymezuje k jaderné energetice, ale naopak se snaží řešit problematiku spolupráce energetického mixu nízkouhlíkových zdrojů elektřiny a tepla.

Mimo projektů zmiňovaných níže se Ústav elektroenergetiky FEKT spolu s EÚ FSI podílí na řešení projektů podpořených ze strukturálního fondu OPVK, konkrétně CENEN-NET (Partnerství v jaderné energetice nové generace), který se snaží v rámcí sítě CENEN inovovat a spojovat jaderné vzdělávání v České republice a KISP (Komplexní inovace studijních programů na FEKT), v rámci kteréhož vzniká na UEEN výuková laboratoř jaderné energetiky. Od ledna 2013 bude týmem řešen doktorský projekt FRVŠ (Detekce a analýza přirozeného ionizujícího záření), v jeho rámci budou připraveny demonstrační pomůcky pro studium přirozeného ionizujícího záření (Wilsonova mlžná komora, Geiger-Müllerův čítač).

2.1. Výzkum a charakteristika materiálů s možnostmi akumulace tepla v kontejnmentech lehkovodních jaderných reaktorů při efektivním snižování vnitřního tlaku během havárií

Projekt se zabývá využitím materiálů na bázi PCM (Phase Changing Materials) v kontejnmentech jaderných reaktorů pro akumulovaci tepla vzniklého při havárii typu velká LOCA. V současné době je pro tyto účely v některých jaderných reaktorech udržován podchlazený led, což je ovšem energeticky velmi náročné a případná náhrada ledu za materiál, který by byl „snadněji udržitelný“ v pohotovostním režimu, by byla velmi žádoucí a finačně výhodná. Tento systém je též využitelný pro akumulaci tepla v bazénech použitého jaderného paliva. Projekt je řešen primárně na Odboru energetického inženýrství Energetického ústavu na FSI, ale skupina UEEN FEKT se na něm také částečně také podílí. Dalšími spoluřešiteli jsou Fakulta strojní ČVUT a Texas A&M university (viz kap. 3.1).

2.2. INEC - International Nuclear Engineering Course

Jedná se o vzdělávací projekt pro studenty, kteří mají zájem o jadernou energetiku, ale v rámci jejich bakalářského a magisterského studia neměli možnost se s ní hlouběji seznámit. Jedná se o návrh koncentrovaného tříměsíčního kurzu vyučovaného blokově v angličtině. Díky tomu by absolventi získali po obhájení svých prací během krátké doby hlubší přehled o široké problematice související s jadernou energetikou ve světovém jazyce. Díky tomu by se mohli výuky účastnit také zahraniční studenti, zejména z jaderně rozvojových zemí a případně i stážisté IAEA. V rámci kurzu se bude konat pět dvou týdenních kurzů (např. základy jaderné fyziky, reaktorové fyziky, palivového cyklu aj.) a dva týdny budou věnovány technickým návštěvám jaderných zařízení. Tento projekt je opět řešen ve spolupráci s FSI VUT, FS ČVUT a Texas A&M University.

2.3. CANUT - Centre for Advanced Nuclear Technologies

Centrum CANUT je konsorcium firem a institucí pro výzkum v oblasti jaderných technologií, jehož je FEKT součástí. Hlavním řešitelem tohoto projektu Technologické agentury České republiky je Západočeská univerzita v Plzni. Centrum si jednak klade za cíl spojení univerzit, výzkumných institucí a průmyslových podniků a realizaci dlouhodobého výzkumného záměru v oblasti nových pokročilých jaderných technologií pro stávající i nové jaderné energetické bloky a další jaderná zařízení. Centrum CANUT v rámci dlouhodobého záměru zaštiťuje sedm vědeckých projektů (pracovních balíčků), z nichž dva jsou řešeny i na UEEN FEKT VUT v Brně.

2.3.1. Inovace palivových cyklů a všech částí vnějšího palivového cyklu (projekt PB4)

Jedním z podtémat tohoto pracovního balíčku je výzkum v oblasti tepelné vodivosti jaderného paliva na bázi UO_2. Tento projekt je spojen mj. s disertační prací autora a jeho účastí v programu PhD Talent a jeho problematika bude blíže popsána v kapitole 4. Tento projekt je řešen ve spolupráci se Západočeskou univerzitou, Českým vysokým učením technickým v Praze, Centrem výzkumu Řež a ÚJV Řež, a.s.

2.3.2. Skladování a transport radioaktivních odpadů, zejména použitého jaderného paliva (projekt PB6)

V tomto pracovním balíčku se jedná o inovaci stávajícího i vývoj nového typu kontejneru na použité jaderné palivo. V rámci balíčku se řeší množství projekční, výpočtové i experimentální práce. Vysoké učení technické se podílí zejména na experimentálních činnostech spojených s povrchovou úpravou těles kontejneru. Projekt je řešen ve spolupráci s Fakultou strojního inženýrství VUT, Západočeskou univerzitou a firmami ŠKODA JS, a.s., UJV Řež, a.s., Centrem výzkumu Řež a firmou ZAT.

2.4. Podané projekty

Skupina zabývající se výzkumem v oblasti jaderné energetiky na UEEN se primárně snaží zabývat dvěmi oblastmi výzkumu – inovacím jaderného paliva (Foral, Katovský) a výzkumu v oblasti transmutačních a thoriových technologií a jadernému využití nanotechnologií (Varmuža, Skalička, Katovský). Druhá oblast je rozvíjena díky spolupráci s SUJV Dubna a s tímto ústavem spojenými partnery a v roce 2012 byly v rámci ní podány tyto projekty:

- *Výzkum neutronových účinných průřezů, reakčních rychlostí a radiačního poškození materiálů používaných v jaderných reaktorech s thoriovým palivem*
  Projekt byl podán do grantového programu KONTAKT-II a řešení je plánováno na mezinárodní úrovni s Indií a Ruskou federací, konkrétně s Indraprastha University New Delhi, University of Vadorada Baroda, University of Jaipur a Spojeným ústavem jaderných výzkumů v Dubně.
- *Výzkum jaderných reakcí uranu a thoria s neutrony vysokých energií pro elektrojaderné urychlovačem řízené transmutační systémy*
  Jedná se o postdoktorský projekt Grantové agentury ČR, ve kterém je naplánován experimentální spolupráce se Spojeným ústavem jaderných výzkumů v Dubně a Yerevan State University v Arménii.

3. Výzkumná spolupráce se zahraničními univerzitami

3.1. Texas A&M University, College Station, Texas, USA

Jedná se o jednu z předních vědeckých a vzdělávacích institucí v rámci jaderné energetiky. V rámci spojených států disponuje nejrozsáhlejším jaderně vzdělávacím programem, provozuje dva výzkumné reaktory a několik urychlovačů částic. Spolupráce s touto univerzitou byla navázána v rámci projektu CENEN-NET a díky mezivládní dohodě ČR a USA o spolupráci při mírovém využívání jaderné energie. Podepsaný Letter of Intent si klade za cíl navázat užší spolupráci mezi Texas A&M University a českými univerzitami v těchto oblastech a projektech: výměna pedagogických zkušeností a stáže akademických pracovníků a studentů; příprava International Nuclear Engineering Course (viz kap. 2.2), výzkum a charakteristika materiálů s možnostmi akumulace tepla (viz kap. 0), v oblasti vývoje jaderného paliva a experimentálního využití jaderných reaktorů, provozovaných na TAMU. V budoucnu se taktéž předpokládá, že doktorandi UEEN a EÚ VUT v Brně, absolvují na této univerzitě zahraniční stáž v rámci svého doktorského studia.

3.2. Spojený ústav jaderných výzkumů v Dubně u Moskvy, Ruská Federace

V roce 2012 byly podány projekty na výzkum uranu a thoria (kapitola 0), které zahrnují i plánované experimentální ověření teoretických výpočtů a simulací. Vzhledem k povaze fakulty FEKT, která nedisponuje potřebným vybavením, je uvažována spolupráce se Spojeným ústavem jaderných výzkumů, který je svou úrovní světovým výzkumným střediskem a má k dispozici unikální výzkumná zařízení, včetně pulsního jaderného reaktoru IBR-2, supravodivého urychlovače NUKLOTRON, zdroje rezonančních neutronů IREN, intenzivního zdroje vysokoenergetických protonů FAZOTRON, urychlovačem řízený podkritický soubor KVINTA apod.

4. První výsledky v oblasti výzkumu inovací jaderného paliva

V roce 2012 byly získány první výsledky výzkumu v oblasti zvyšování tepelné vodivosti inovací jaderného paliva. Tento výzkum byl zahájen na podzim roku 2011 v rámci disertační práce autora, jejíž téma uspělo v soutěži „Brno Ph.D. Talent“ a od ssrpna 2012 pokračuje také v rámci projektu CANUT (PB4).

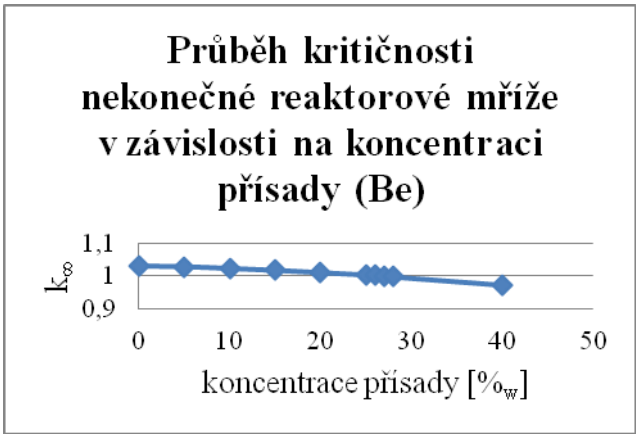
4.1. Úvod do řešené problematiky

Jaderné palivo UO_2, jakožto keramický materiál, je charakterizováno nízkou tepelnou vodivostí. Tento jev má za následek vysoce nevyrovnaný teplotní profil v peletě UO_2 a strmý teplotní gradient. V důsledku toho dochází k mnoha negativním jevům – jaderné palivo mechanicky degraduje, uvolňují se z něho plynné produkty štěpení a vzniká nebezpečí vzniku netěsnosti palivového proutku. Mimo jiné je také možné uvažovat ekonomické omezení v důsledku maximálního možného vyhoření paliva, které taktéž souvisí s mechanickou degradací materiálu.

Jedním z možných řešení, jak zvýšit tepelnou vodivost jaderného paliva, je vnést do matrice UO_2 další aditivum, které by se vyznačovalo velkou tepelnou vodivostí a nízkým účinným průřezem pro záchyt neutronů. Tímto způsobem je možno zvýšit odvod tepla z pelety jaderného paliva s minimálním ovlivněním neutronové bilance.

4.2. Způsob řešení dané problematiky

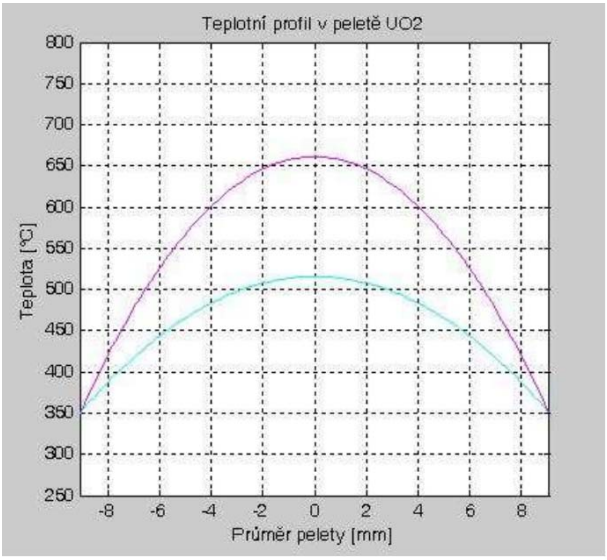
Pro účely výzkumu možných aditiv byla v programu MCNP navržena nekonečná reaktorová mříž s výrazným přebytkem reaktivity (pro obohacení 0,9 % w je $k\infty$=1,03). Nekonečná reaktorová mříž byla simulována na základě jednoho palivového proutku reaktoru VVER nastavením vhodných okrajových podmínek. Pomocí nekonečné reaktorové mříže je sledována kritická koncentrace přísady – do nekonečné reaktorové mříže je zaváženo palivo se zvyšujícím se obsahem přísady, dokud multiplikační koeficient neklesne těsně pod $k\infty = 1$. V tomto případě tedy mluvíme o tom, že bylo dosaženo kritické koncentrace přísady. Zatím byl proveden výzkum pouze u vybraných prvků periodické soustavy, přičemž u prvků bylo uvažováno přírodní isotopické složení. Na základě těchto výsledků budou dále voleny další sloučeniny, které se budou primárně sestávat z prvků, které mají maximální možnou kritickou koncentrací přísady (viz tab. 1).



Obr. 2 - Závislost k_∞ nekonečné reaktorové mříže na množství přísady (v tomto případě beryllium)

Tab. 1 - Tabulka kritické koncentrace přísady některých izotopů, při které klesne koeficient násobení reaktorové mříže pod k_∞=1

Izotop	C_{krit} [%w]
^{83}Bi	34
^{82}Pb	30
^{9}Be	27
^{40}Zr	21
^{39}Y	7,7
^{30}Zn	6,0
^{41}Nb	5,5
^{67}Ho	0,15
^{63}Eu	0,01



Obr. 3 - Snížení teplotního profilu v peletě UO_2 při přidání 5% BeO

K určení vlivu přísady na snížení teplotního profilu, byl vytvořen matematický model teplotního profilu v peletě. Tento model byl vytvořen na předpokladu, že tepelná vodivost pelety je přímo úměrná poměru koncentrací přísady a oxidu uraničitého ve vztahu k jejich tepelným vodivostem. Výsledek tohoto modelu je patrný na obr. 3. Skutečný teplotní profil kompozitního paliva bude ovšem poněkud vyšší, jelikož v praxi nedochází k plnému kontaktu mezi přísadou a matricí UO_2.

Výzkum se v současnosti nachází ve fázi, kdy je hledána vhodná materiálová knihovna, která by obsahovala závislost tepelné vodivosti maximálního počtu prvků a sloučenin na teplotě. Tyto údaje jsou nutné pro výpočet střední tepelné vodivosti daného prvku (sloučeniny) do matematického modelu teplotního profilu.

4.3. Činnosti plánované do budoucna

Snahou úspěšného pokračování projektu a dosažení hodnotných vědeckých výsledků, jsou do budoucna naplánovány např. tyto úkoly:

- spočítat kritickou koncentraci přísady i pro stavy paliva s izotopickým složením, které odpovídá různě ozářenému stavu v reaktoru,
- nalézt koeficienty tepelné roztažnosti přísad a porovnat je s tepelnou roztažností UO_2,
- zjistit, zda přísady vyhovují podmínkám slinovatelnosti – tj. zda je možné jejich kompaktní spojení s matricí,
- v případě nalezení vhodné přísady experimentálně ověřit její vlastnosti v laboratorních podmínkách.

5. Závěr

Ústav elektroenergetiky se od roku 2011 zapojuje do projektů základního výzkumu v oblasti jaderné energetiky. Do tohoto výzkumu se zapojují zejména studenti doktorského studijního programu a to v oblasti jaderného paliva a jaderně technických zařízení. V budoucnu se ale počítá i se zapojením studentů bakalářských a magisterských studijních programů. V oblasti zvyšovaná tepelné vodivosti jaderného paliva již bylo dosaženo prvních mezivýsledků.

Na ústavu již započala spolupráce s českými a zahraničními institucemi. Strategická je zejména spolupráce s Energetickým ústavem a Stavem materiálových věd a inženýrství na FSI, dále s Texas A&M University a Spojeným ústavem jaderných výzkumů v Dubně. Je zde také snaha o zavedení spolupráce s indickými univerzitami v oblasti využití thoria v jaderné energetice.

V neposlední řadě je nutno zmínit právě probíhající aktivity za účelem zřízení a vybavení výukové a experimentální laboratoře ionizujícího záření v nových prostorách FEKT.

Literatura

D. S. Li, H. Garmestani, J. Schwartz, *Modeling thermal conductivity in UO_2 with BeO additions as a function of microstructure*, Journal of Nuclear Materials, Volume 392, Issue 1, 2009, July 1, pp. 22-27, ISSN 0022-3115, 10.1016/j.jnucmat.2009.03.048.

Poděkování

Autoři děkují Technologické agentuře České republiky za podporu jejich výzkumu v rámci centra kompetence č. TE01020455 CANUT. Autoři také děkují statutárnímu městu Brno za finanční podporu doktorského studia jednoho z autorů, díky které mohl vzniknout tento příspěvek.

INDUKČNÍ TAVENÍ VE STUDENÉM KELÍMKU

Pavel Votava
Centrum výzkumu Řež s. r. o.

Abstrakt

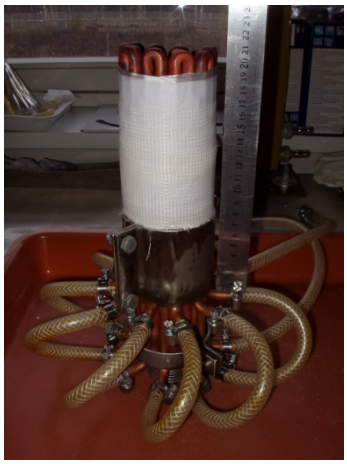
Práce je zaměřena na studený kelímek jakožto prostředek pro vysokofrekvenční indukční tavbu materiálu, popis funkce a princip činnosti. Dále je zmíněno aktuální využití studeného kelímku pro zpracování radioaktivního odpadu, simulaci těžkých havárií jaderných elektráren a dalších metalurgických procesů. Poslední část je věnována senzorickému systému.

1. Úvod

Studený kelímek je zařízení pro vysokofrekvenční indukční ohřev zaměřený na tavení materiálů. Princip kelímku spočívá v tom, že zdroj tepla je soustředěn přímo v ohřívaném materiálu a vlastní tavicí nádoba (studený kelímek, obrázek 1) je vnitřně chlazená vodou. Kelímek sestává z trubkovitých většinou měděných dílů, kolem kterých jsou umístěny závity induktoru. Proud procházející induktorem vytváří vysokofrekvenční elektromagnetické pole, které svými vířivými proudy ohřívá materiál umístěný uvnitř kelímku.

Indukční teplo vzniká vždy, pokud elektromagnetické vlnění dopadá na elektricky vodivou stěnu materiálu. Kde část vlnění se od stěny odrazí, část do ní vstoupí a vyvolá proud indukovaný v materiálu, jehož průchodem se materiál ohřívá. [1]

Indukční ohřev má oproti konvenčnímu ohřevu některé nesporné výhody. Jelikož teplo nevstupuje do ohřívaného materiálu jeho povrchem, ale vzniká přímo v materiálu, je samotný proces ohřevu velmi rychlý. Druhou výhodu je skutečnost, že volbou kmitočtu generátoru můžeme volit rozložení tepla v ohřívaném materiálu - vsázce.

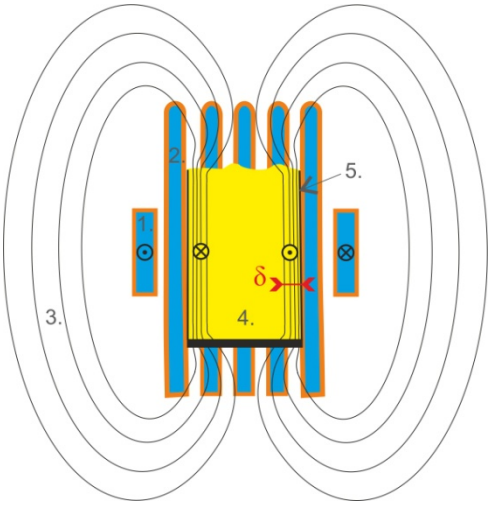


Obr. 1 - Studený kelímek

Stávající experimentální konstrukce studeného kelímku umístěného v Řeži umožňuje pracovat s teplotami v rozmezí cca od 1000°C do 3000°C, o objemu materiálu do 300ml, kmitočtem generátoru 4,5MHz a maximálním výkonem 60kW.

Princip celého systému indukčního ohřevu materiálu ve studeném kelímku je znázorněn na obrázku 2, kde jsou pod číslem 1 označeny závity induktoru, jehož elektromagnetické pole 3 ohřívá materiál 4, umístěný uvnitř studeného kelímku 2. Jak bylo již řečeno induktor i studený kelímek jsou zpravidla zhotoveny z mědi a jsou intenzivně chlazeny protékající vodou, aby nedošlo k poškození zařízení. Voda je na obrázku znázorněna modrou barvou uvnitř měděných dílů. Pod číslem 5 se skrývá tenká pevná krusta

vytvořená z ochlazeného taveného materiálu, která brání především, a hlavně, styku roztaveného materiálu s materiálem kelímku a také protečení roztaveného materiálu mezerami mezi svislými díly kelímku. Vznik krusty o tloušťce cca jednoho milimetru určuje intenzita ochlazování vnitřní stěny kelímku. Což představuje určitý paradox, neboť indukční ohřev má největší účinnost právě blízko povrchu ohřívaného materiálu ale v případě tavení ve studeném kelímku je povrch ohřívaného materiálu záměrně intenzivně ochlazován.



Obr. 2 - Princip ohřevu

Nejvyšší účinnost indukčního ohřevu blízko povrchu je dána fyzikálním dějem zvaným Skin efekt, při kterém dochází k vytlačování proudu k povrchu vodiče. Vířivé proudy indukované v materiálu vytvářejí sekundární magnetické pole, které působí proti primárnímu magnetickému poli indukční cívky směrem od středu. Tím je dáno výsledné rozložení proudové hustoty s největší intenzitou na povrchu materiálu a její slábnutí směrem do středu. Charakteristické rozložení proudové hustoty v materiálu je určeno především frekvencí indukční cívky f a vlastnostmi ohřívaného materiálu, kterými jsou jeho měrná elektrická vodivost σ a poměrná permeabilita vsázky μ. Toto rozložení proudové hustoty se kvantitativně popisuje jako elektromagnetická hloubka vniku δ, kde $\mu = 1$:

$$\delta = 503\sqrt{\frac{1}{f \cdot \sigma}} \qquad (1)$$

kterou rozumíme vzdálenost, na které se v daném materiálu amplituda veličin elektromagnetického pole utlumí e-krát. Přičemž hloubka vniku je klíčovou veličinou v oblasti indukčního ohřevu, jelikož je v této vrstvě, neboli hloubce, generováno přibližně 86% celkového tepla pojatého materiálem. Zbylých 14% je většinou exponenciálně rozloženo v hlubších vrstvách. Díky faktu, že elektromagnetická hloubka vniku závisí u každého materiálu, vzhledem k vnějším vlastnostem, pouze na frekvenci, může být tloušťka primárně ohřívané části materiálu regulována pouze změnou frekvence proudu na indukční cívce.

Pro optimální prohřátí materiálu s co možná největší efektivitou v krátkém čase, by měl být jeho válcový průměr 3,5x větší než samotná hloubka vniku. Pokud by byla hloubka vniku výrazně menší, než průměr materiálu, zvýší se tím sice elektrická účinnost celého procesu ohřevu, ale tepelný zdroj se soustředí do jedné vrstvy a tím se výrazně prodlouží čas potřebný pro prohřátí celého kusu materiálu (tvrzení platí pouze pro ohřev materiálu, nikoli pro tavbu). Opačný případ, kdy by byla hloubka vniku dokonce větší než poloměr samotného materiálu, je ještě horší, neboť obě elektromagnetická vlnění budou postupovat proti sobě, z obou stran se vzájemně zeslabovat a výsledný indukovaný proud bude velmi malý.

2. Aktuální využití

Studený kelímek je zařízení používané k tavení materiálů s vysokým bodem tání a následné řízené zonální krystalizaci. Dají se v něm tedy pěstovat monokrystaly například ZrO_2 FIANIT-Cubic Zirkonia,

které se používají jako náhrada přírodního diamantu. Tyto krystaly, nejen že mají mnohonásobně nižší cenu a dají se vyrobit takřka v jakémkoliv barevném odstínu, ale pro jejich jedinečné vlastnosti se využívají i v optice a elektrotechnice, a to i při vysokých provozních teplotách, jelikož zirkon má vysoký index lomu blížící se diamantu a disperze světla je dokonce vyšší.

Studený kelímek je využíván také pro simulaci nestandardních stavů, jakými mohou být např. těžké havárie jaderných reaktorů. Při tom jde o sledování fyzikálně chemických vlastností oxidických tavenin na bázi CORIA, které je právě produktem roztavených komponent primární zóny lehkovodních reaktorů. Tato směs se skládá z jen těžko tavitelných oxidických směsí UO_2, ZrO_2 a kovové nebo zoxidované oceli. Při těžké havárii může směs vytéci mimo reaktorovou nádobu a smíchat se s rozkladnými produkty záchytného materiálů (obecně oxidy SiO_2, Al_2O_3, CaO, Fe_2O_3). Cílem těchto simulací je nabytí nových vědomostí v oblasti hypotetických těžkých havárií, demonstrace bezpečnostních aspektů existujících jaderných elektráren, zejména s ohledem na prodloužení jejich životnosti a k získání poznatků pro stavby nových bezpečnějších jaderných reaktorů.

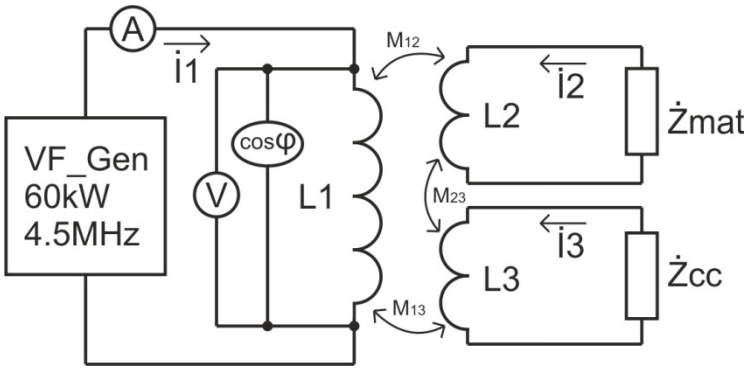
V souvislosti s jadernými elektrárnami je dalším využitím studeného kelímku vitrifikace radioaktivního odpadu, tedy jeho fixace do skelných nebo keramických matric, v nichž může být skladován v hlubinných úložištích po dobu až několik tisíc let. Vitrifikace je velmi náročná na proces regulace tavení ve studeném kelímku, teplota směsi se musí držet v přísně ohraničeném pásmu, jelikož při jejím překročení směrem nahoru se stává směs vysoce těkavou a směrem dolů pozbývá proces na účinnosti.

Konstrukce kelímku je bezvyzdívková, není to tedy nádoba v pravém slova smyslu, roztavený materiál se přímo nedotýká materiálu kelímku. Na rozhraní roztaveného materiálu a kelímku se vytvoří slabá krusta (chlazená kelímkem) a tím se dosahuje vysoké čistoty zpracovávaných materiálů ve všech fázích tavby i u vysoce korozivních materiálů a navíc se nepoškozují stěny kelímku. V klasické indukční kelímkové peci by byla výroba materiálu při velmi vysokých teplotách příliš nákladná a v mnohých případech i neproveditelná. Díky odolnosti a vysoké čistotě tavby se dají ve studeném kelímku zpracovávat i těžko tavitelné keramické materiály využitelné například v elektrotechnice a materiály s vysokou mechanickou čistotou používané v optice, například k tažení optických vláken.

3. Senzorický systém

Dosud nebyly ověřeny ani teoreticky zpracovány všechny jevy, které nastávají v materiálech právě při takto vysokých teplotách blížících se a převyšujících 3000°C. To je dalším úkolem materiálového výzkumu, který se provádí při pokusech ve studeném kelímku.

Materiál pro tavbu je nedílnou součástí i samotného elektrického obvodu, jelikož tvoří „sekundární vinutí“ díváme-li se na konstrukci jako na transformátor, kde primární vinutí tvoří induktor tvořený většinou třemi závity okolo studeného kelímku. Můj zjednodušený pohled na celý systém odpovídá obrázku 3, kde za materiál považuji proměnnou impedanci Zmat. Můžeme tedy říci, že materiál v různých fázích tavby má charakteristický vliv, či zpětnou vazbu na parametry generátoru, které jsou jím ovlivňovány. K těm markantnějším a snadno vysvětlitelným patří například pokles výkonu, přejde-li materiál z tuhé fáze do roztavené, stává se tedy s rostoucí teplotou méně vodivým a na parametrech generátoru lze situaci pozorovat menším odebraným výkonem. Toto je pouze jeden z mnoha jevů, které lze pozorovat již ne tak zřetelně jako pokles výkonu, který se pohybuje v řádech jednotek kW, ale vyžadují daleko přesnější měření a kladou vysoké nároky na senzorický systém.



Obr. 3 - Zjednodušené náhradní schéma

Jelikož každý materiál je jiný a má jinou permeabilitu, která spolu s frekvencí generátoru a tepelně závislým měrným elektrickým odporem přímo ovlivňuje účinnost celého procesu indukčního ohřevu, je dobré mírně upravovat frekvenci generátoru, dle aktuální fáze tavby. Účinnost a jednotlivé výkonové ztráty lze vypočítat pomocí kalorimetrické rovnice 2, známe-li množství vody, která se za daný časový úsek podílí na chlazení částí a její teplotní rozdíl před a za systémem:

$$P = \frac{m * C_p * (T2 - T1)}{t} \tag{2}$$

kde m je hmotnost vody, C_p je měrná tepelná kapacita vody = 4.19 J/g°C, T2 je teplota výstupní vody, T1 teplota vody vstupní a t je čas za který proteklo dané množství vody. Měření výkonu touto metodou má zpoždění vzhledem k reakční době termočlánků umístěných v chladícím systému, která je cca 3-6s v závislosti na daném provedení, ale je jednodušší a přesnější oproti elektrické metodě dle rovnice 3. Kde je poměrně složitou záležitostí měření proudu I a účiníku cosφ při tak vysokých proudech a frekvencích, jaké jsou používané při indukčním ohřevu.

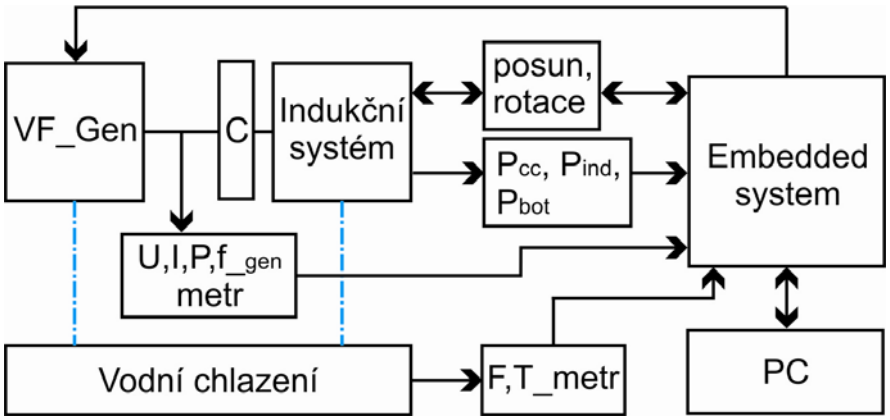
$$P = U \cdot I \cdot \cos\varphi \tag{3}$$

Součet všech tepelných ztrát by měl být roven výkonu dodávaného generátorem, kde ztráty samotného kelímku budou obsahovat i ztráty ohřívaného materiálu, který je jím na povrchu ochlazován. Součet tepelných ztrát je popsán v rovnici 4,

$$P_{gen} = P_{ind} + P_{cc} + P_{dno} + P_{víko} + P_{mat} \tag{4}$$

kde na levé straně je celkový výkon dodaný generátorem do indukčního systému P_{gen} a na straně pravé jsou ztráty v jednotlivých částech. P_{ind} jsou ztráty na induktoru, P_{cc} ve studeném kelímku, P_{dno} ve dně studeného kelímku, $P_{víko}$ ve víku pokud je použito a P_{mat} jsou ztráty v ohřívaném materiálu.

Tato a další měření si kladou vysoké nároky na přesný senzorický systém a číslicové zpracování signálu. Výsledný senzorický a řídicí systém pro automatizaci tavby by měl mít pro představu následující podobu (obrázek 4), kde jsou vykresleny pouze vybrané základní technologické bloky a senzory.



Obr. 4 - Blokové schéma základního senzorického systému

Vytvořený senzorický a řídicí systém by měl sloužit pro automatizaci indukčního ohřevu materiálu uvnitř studeného kelímku, jako univerzální jednotka schopná provozu s maximální účinností celého procesu ve všech fázích tavby a použitelná na více typech studených kelímků. Především by ale měl být přínosem ve výzkumu struktury a chování různých materiálů a jejich sloučenin při extrémně vysokých teplotách.

4. Závěr

V průběhu následujících 2 let by v našem výzkumném ústavu měli vyrůst dvě nové konstrukce studených kelímků s minimálně jednou vakuovou komorou umožňující tavbu materiálu v různých atmosférách a vzhledem k izolaci a intenzivnímu odsávání vznikajících aerosolů i tavbu radioaktivních materiálů. První konstrukce by měla být o výkonu 160kW a druhá s výkonem generátoru 300kW.

5. Literatura

[1] Langer, Emil; Kožený, Jiří., *Elektrotepelná zařízení indukční: základy teorie, výpočty a konstrukce. 1. vyd.*, Plzeň: VŠSE, 1982.
[2] Petrov Yu.B., *Induction melting of oxides*, Leningrad, Energoatomizdat, 1983.
[3] Pozniak I., Petchenkov A., *Special Tool for Investigation and Controlling of Induction Skull Melting Processes*, International Scientific Colloquium, Riga, May 17-18, 2001
[4] Baake, Egbert, *Principles of heating processes*, Heat processing, Issue 1, 2006

Poděkování – Prezentovaná práce je finančně podporována projektem SUSEN CZ.1.05/2.1.00/03.0108 realizovaného v rámci ERDF

OXIDACE V TAVENINĚ SOLI PRO ZNEŠKODŇOVÁNÍ ORGANICKÝCH RADIOAKTIVNÍCH A NEBEZPEČNÝCH ODPADŮ

Petr Kovařík
Centrum výzkumu Řež s. r. o.

Abstrakt

Oxidace v tavenině soli je bezplamenná oxidační technologie vhodná pro likvidaci organických radioaktivních a nebezpečných odpadů. Proces spočívá v dávkování kapalných nebo pevných odpadů pod hladinu taveniny soli (nejčastěji uhličitanů) při teplotách 750-900°C (v závislosti na vlastnostech zneškodňovaného odpadu). V tomto příspěvku jsou shrnuta základní teoretická fakta o této technologii, představena aparatura pro experimentální práce a dílčí výsledky pilotních experimentů.

1. Úvod

Principem zpracování odpadů při jejich likvidaci v technologii oxidace v tavenině soli (MSO) je jejich dávkování pod hladinu roztavené soli, obyčejně Na_2CO_3, při teplotách 750°C- 900°C při současném dávkování nadstechiometrického množství kyslíku. Pod hladinou roztavené soli v chemickém reaktoru dochází k bezplamenné oxidaci, přičemž jsou organické složky odpadu rozloženy, v ideálním případě, až na oxid uhličitý a vodu. Z výsledných odplynů, které z reaktoru odcházejí, jsou před jejich vypuštěním do komína odstraňovány všechny zbytky soli a provádí se také měření obsahu škodilivin tak, aby bylo zajištěno splnění emisních limitů. Reaktivní prvky, jako jsou např. fluor, chlor, brom, jód, síra, fosfor a arsen, původně obsažené ve zneškodňovaném odpadu, reagují se solí za tvorby odpovídajících neutrálních solí, jako NaF, NaCl, NaBr, NaI, Na_2SO_4, Na_3PO_4 a $NaAsO_2$ nebo Na_3AsO_4. Radioaktivní kovy reagují s roztavenou solí a vzduchem za vzniku odpovídajících solí nebo oxidů. Tyto oxidy kovů jsou běžně označovány za „popel“. Obsah popela v tavenině musí být udržován nad 20%hm., aby byla zajištěna její dobrá tekutost. Koncentrace solí sodíku, které se tvoří jako produkty neutralizačních reakcí, musí být omezena na max. 85%hm, aby nedošlo ke ztrátě schopnosti soli reagovat s reaktanty přítomnými v likvidovaném odpadu. Proto je zapotřebí pravidelně sůl vyměňovat a dále ji přepracovávat nebo ukládat.

Prvotní výzkum týkající se roztavených solí začal v USA v laboratořích Rockwell International pod záštitou americké Národní Komise pro Atomovou Energii již v padesátých letech 20. století. Výzkum byl původně zaměřen na studium vlastností a chemického chování roztavených solí, ale časem se rozšířil na konkrétní možnosti použití roztavených solí pro účely odstranění SO_2 z kouřových plynů a jejich použití jako katalyzátoru při zplyňování uhlí [1]. Během těchto experimentů bylo ale zjištěno, že v tavenině soli lze dosáhnout kompletní oxidace organických látek. Proto byly zahájeny experimentální práce na aparatuře s prosazením 0,9 kg/h zaměřené na zneškodňování řady organických odpadů s obsahem chlordanů a polychlorovaných bifenylů (PCB). Další experimenty na aparaturách s prosazením od 72-900 kg/h byly zaměřeny na zneškodňování odpadních plynů a řady organických látek včetně směsných radioaktivních odpadů [2-8].

V roce 1997 byla v Lawrence Livermoore National Laboratory (LLNL) v USA sestavena poloprovozní aparatura (prosazení 5-8 kg/h) – jednalo se o komplexní aparaturu, na níž byly také studovány možnosti čištění odplynů a přepracování použité soli, včetně přípravy pevných konečných forem – pelet [9]. V LLNL bylo demonstrováno, že technologii MSO lze použít pro účinný rozklad výbušnin a výbušninami kontaminovaných materiálů a jiných látek – tyto experimenty byly provedeny jednak na čtvrtprovozní aparatuře s prosazením 0,72 kg/h a také na výše uvedené aparatuře s prosazením 5-8 kg/h [10]. V roce 1999 byla technologie MSO používána v Los Alamos National Laboratory pro odstraňování ^{238}Pu z radioaktivních odpadů kontaminovaných transurany (TRU), aby mohly být splněny podmínky přijatelnosti do úložiště Waste Isolation Pilot Plant (WIPP) [11]. MSO byla také používána v poloprovozním měřítku pro přepracování 170 litrů halogenovaných směsných radioaktivních odpadů, které obsahovaly většinou methylchloroform [12]. V Brazílii byl proces MSO vyvíjen pro zneškodňování organických forem odpadů

kontaminovaných plutoniem a uranem [13]. V Koreji začal vývoj MSO v roce 2002 s cílem použití pro likvidaci chlorovaných odpadů z přepracování vyhořelého jaderného paliva a pro likvidaci kontaminovaných iontoměničů [14].

Centrum výzkumu Řež s.r.o., ÚJV Řež a.s., ČVUT v Praze a Hazen Research, Inc. se zajímají o vývoj MSO pro likvidaci organických radioaktivních odpadů (kontaminovaných iontoměničů a olejů), izolace uranu z hnědého uhlí a také pro jiné účely (zneškodňování PCB, gumy, atd.). Ačkoliv pomocí technologie MSO byo v posledních třech dekádách zlikvidována řada odpadů, používanější technologií bylo vždy konvenční spalování. Spalování již však není preferovanou technologií a to zejména kvůli vyšším emisím a v případě radioaktivních odpadů také kvůli akceptovatelnosti této technologie veřejností. MSO se tak v současné době zdá jako velmi vhodná technologie pro livkidaci organických odpadů. Jejími hlavními výhodami jsou kompletní rozklad poly-aromatických sloučenin (dokonce i komplexních polyaromátů, jež je velmi komplikované rozložit jinými způsoby), provoz za mnohem nižších teplot než vitrifikace, plasma, nebo konvenční spalování, vznik zanedbatelného množství dioxinů a furanů v odplynech, a zachytávání radioaktivních prvků v soli, v němž jsou také zachytávány kyselé plyny.

2. Laboratorní aparatura

Laboratorní aparatura pro experimenty s likvidací radioaktivních a nebezpečných odpadů v tavenině soli bude sloužit pro provádění laboratorních experimentů v různých konfiguracích. Aparatura musí umožňovat:

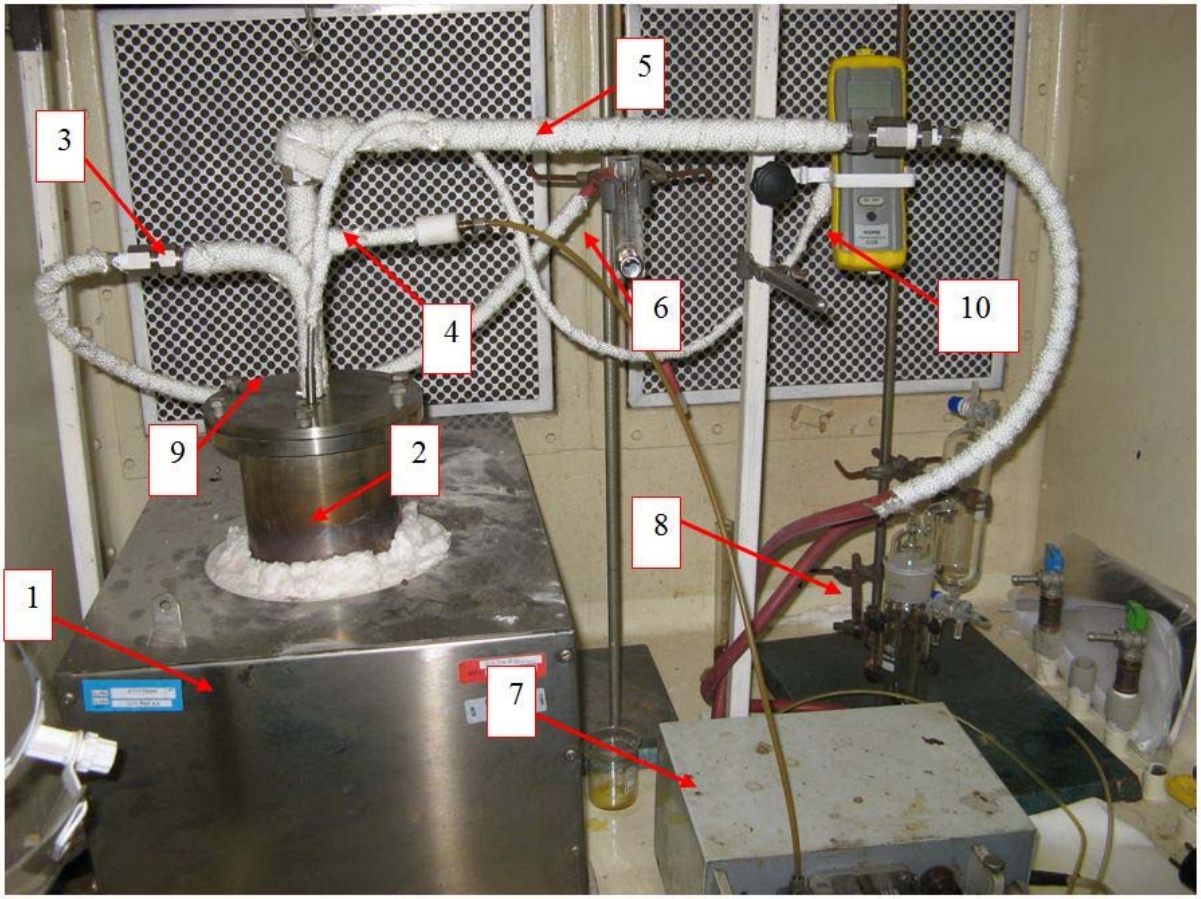
- použití různých solí a jejich směsí (Na2CO3, Na2CO3 + Li2CO3 + K2CO3, apod.),
- musí být schopna zpracovat jak kapalné, tak pevné organické odpady,
- musí umožňovat odběry vzorků odplynů a soli v průběhu experimentů i po jeho skončení,
- musí mít nastavitelný průtok okysličovadla (vzduch, kyslík),
- musí mít možnost měření teploty v tavenině soli,
- musí umožňovat nastavení teploty na požadovanou hodnotu,

Konstrukce experimentální aparatury vychází ze zkušeností s podobným typem zařízení provozovaným ve čtvrt nebo poloprovozním měřítku v různých vědecko-výzkumných institucích na světě (zejména potom ze zkušeností v Lawrence Livermoore National Laboratory a Oak Ridge v USA).

V průběhu roku 2012 byla sestavena experimentální aparatura pro laboratorní testování procesu MSO jak pro likvidaci pevných tak kapalných odpadů. Tato aparatura se skládá z následujcích hlavních částí:

- Elektrická pec
- Keramický kelímek
- Chemický reaktor s víkem (nerezová ocel) a systémem trubic:
    - Nucený vstup RAO (materiál: Inconel 550)
    - Nucený vstup vzduchu/kyslíku (materiál: Inconel 550)
    - Výstup zplodin materiál: Inconel 550)
    - Uzavřená trubice pro teplotní čidlo (materiál: Inconel 550)
- Teplotní čidlo s vyhodnocovací jednotkou
- Systém pro dopravu kapalných / pevných organických vzorků pod hladinu soli
- Tlaková lahev s okysličovadlem (vzduch, kyslík) a rotametr pro nastavení průtoku okysličovadla
- Peristaltické čerpadlo / motor pro pohon šnekového dopravníku
- Část pro kontinuální odběr plynných vzorků

Přehledový obrázek s popisem jednotlivých částí aparatury je uveden na následujícím obrázku.



Obr. 1 - Laboratorní aparatura MSO v digestoři
(se systémem pro dopravu kapalných vzorků)

Popis obrázku:

1 – elektrická pec, 2 – chemický reaktor s keramickým kelímkem uvnitř, 3 – vstup okysličovadla (vzduch, kyslík), 4 – vstup kapalných organických vzorků určených k likvidaci

5 – výstup plynných zplodin, 6 – rotametr pro nastavování rychlosti okysličovadla

7 – peristaltické čerpadlo, 8 – systém pro čištění a odběry vzorků plynných zplodin

9 – termočlánek, 10 – měřicí přístroj k termočlánku (měření teploty)

3. Dávkovací zařízení

Kapalné vzorky jsou pod hladinu taveniny dávkovány pomocí peristaltického čerpadla s maximální rychlostí dávkování 10 ml/min. Kapalina prochází trubkou z Inconeli až na dno reaktoru, kde je z konce trubičky strhávána okysličovadlem a následně dochází k jejímu kontaktu s taveninou soli. Strhávání je dosaženo tím, že trubička přívodu kapalných vzorků je umístěna uvnitř trubičky, kterou se do reaktoru vhání okysličovadlo (trubka v trubce), přičemž trubička s kapalným vzorkem je asi o 5 mm kratší, než vnější trubička, v níž je přiváděno okysličovadlo.

V případě dávkování kapalin se jedná o vcelku jednoduchou záležitostí, avšak pro dávkování pevných látek je to komplikovanější. Systém pro dopravu pevných vzorků byl poněkud problematičtější, než v případě kapalných vzorků. Testovány byly 3 technologické typy dopravníků, z nichž nejlepším se ukázal být šnekový dopravník s utěsněným zásobníkem (viz obrázeky 2).

Obr. 2 - Aparatura MSO s nainstalovaným víkem s dopravníkem pro pevné vzorky – konečná verze (1 – zásobník s pevnými vzorky, 2 – „vrták“ – šroubový dopravník, 3 – vstup okysličovadla)

Pro dávkování kapalných vzorků je používán systém soustředných trubiček, z nichž ve vnitřní proudí pomocí peristaltického čerpadla poháněný kapalný odpad a ve vnější proudí vzduch, jenž na konci strhává kapalinu s sebou do roztavené soli a působí zde jako okysličovadlo.

4. Výsledky pilotních experimentů s lignitem

Experimentální práce s lignitem zahrnovaly následující:

- Chování lignitu v tavenině soli
- Testování různých typů dávkovacích zařízení pro dávkování pevných částic
- Laboratorní zkoušky rozpustnosti solné taveniny po jejím ochlazení
- Izolace uranu z roztavené soli a její recyklace

Pro dávkování pevných částic lignitu byly použity tři typy dávkovacích systémů: typu nálevky, typu nálevky s proudem vzduchu a šnekový dopravník s těsně uzavřeným zásobníkem. Nejlépe fungoval třetí typ, tj. s uzavřeným zásobníkem (viz obr. 3). Jednalo se o nerezovou trubičku o vnějším průměru 0,6 cm, která byla napojena na šnekový dopravník, jenž měl uvnitř dlouhý vrták. Experimenty probíhaly na aparatuře umístěné v laboratořích Hazen Research, Inc.

První experiment s lignitem obsahujícím 0,1%hm U_3O_8 byl prvoeden za následujících podmínek: šnekový dopravník byl poháněn motorem s otáčkami 60 rpm, průtok vzudchu byl nastaven na 4 l/min a dávkování lignitu probíhalo rychlostí 20 g/hod. Celkové množství lignitu, které bylo do taveniny nadávkováno, odhadujeme na asi 30 gramů. Během experimentu však bohužel došlo k prasknutí vnějšího kelímku z Al_2O_3, čímž došlo ke ztrátě části objemu soli. Prasknutí bylo způsobeno tím, že se sůl vlivem vysokého průtoku vdzchu rozstříkávala nad kelímek a dostala se do mezery mezi vnitřním a vnějším kelímkem. Z toho plyne, že musí být velmi opatrně volena rychlost dávkování okysličovadla a hladina v kelímku musí být snížena. Další a preferovanou variantou je použití vnějšího kelímku vyrobeného z Inconeli, přičemž vnitřní kelímek musí být zakryt víkem.

Ačkoliv kelímek prasknul, určitá část soli zůstala ve vnitřním kelímku zachována, díky čemuž jsme mohli získat určité výsledky. Jelikož dávkování lignitu bylo ukončeno okamžitě po zjištění praskliny v

kelímku pomocí kamery, lze považovat zbývající část soli (44 gramů z 223 gramů) za sůl stejného složení, jako sůl, která z kelímku unikla. Důvodem je to, že do ní nebyl nadávkován žádný další lignit a současně byla sůl míchána pomocí bublání vzduchem. Sůl byla poté rozpuštěna ve vodě a z roztoku byly odfiltrovány pevné nerozpustné částice. Filtrát a filtrační koláč byly poté zanalyzovány – výsledky jsou uvedeny v tabulce 1. Z celkového původního množství 33,9 mg uranu (průměrný obsah uranu v lignitu byl 0,1%hm.), odpovídá 6,78 mg poměru 44:223 (viz výše). Z tohoto množství uranu bylo 4,1 mg (60%) nalezeno v roztoku po rozpuštění soli a zbytek v pevných podílech. Když však byly pevné podíly podruhé promyty 0,1 M Na_2CO_3, obsah uranu v nich poklesl od 50%, tj. na pouhých 20%. Plynné zplodiny z tohoto experimentu obsahovaly 0,9%obj. CO a 8,4%obj. CO_2. Z toho je zřejmé, že oxidační reakce neproběhla kompletně – to lze zdůvodnit tím, že částice lignitu neměly dostatečně dlouhý kontakt se solí, tj. hladina soli by měla být vyšší.

	U	Ni	Fe	Cr	Co	Al	Si	Na
Filtrát (mg/L)	4.1	<1	<1	0.9	0	6.7	5.58	
Filtrační koláč - FK (wt%)	0.25	2.66	31.07	na	na	na	na	7.54
FK po 2. promytí (wt%)	0,14	2,73	35,36	na	na	na	na	5,94

Tabulka 1 - Analýza filtračního koláče a filtrátu po zpracování lignitu s obsahem uranu technologií MSO

5. Výsledky pilotních experimentů s oleji

Ve výše popsané aparatuře proběhl první pilotní experiment, jehož cílem bylo ověřit zejména funkčnost aparatury. Dávkován byl kapalný vzorek – olej TB 46 (neradioaktivní).

Do kelímku bylo odváženo 1250 g soli Na2CO3, což v roztaveném stavu činilo asi 1/3 jeho objemu. Poté byl kelímek vložen do ocelového reaktoru a společně byly vloženy do pece. Pec byla spuštěna a teplota nastavena na 1000°C. Po roztavení soli bylo víko reaktoru uzavřeno.

Poté byl otevřen ventil tlakové lahve se vzduchem a na rotametru nastaven průtok 5 l/min. Téměř v zápětí bylo spuštěno peristaltické čerpadlo a započalo dávkování oleje rychlostí 5 ml/min. Jakmile se olej dostal do taveniny, došlo k vývoji žlutých spalin a po asi 5 sekundách začaly již z reaktoru unikat černé spaliny (plné sazí).

Okamžitě byly zjištěny následující problémy s aparaturou:

- je nutné uzavřít natěsno víko aparatury (není možné je nechat nezašroubované, jelikož plynné zplodiny si najdou cestu nejmenšího odporu, což je právě styčná plocha mezi víkem a reaktorem),
- odběry plynných vzorků nejsou tak jednoduché, jak se zdálo – je nutné těsně propojit pytlík na odběr vzorků s hadičkou (není možné mít rozdílný vnitřní průměr hadičky a vnější průměr ventilu na pytlíku a snažit se odebírat vzorek ručním stisknutím hadičky palcem a ukazovákem),
- okysličovadla bylo velmi málo, což se následně projevilo vznikem strusky na povrchu soli – pro každý organický vzorek je potřeba předem vypočítat množství okysličovadla, které stechiometricky povede ke kompletní oxidaci přítomných organických složek ve vzorku.

Pozitivní bylo, že v průběhu experimentu nedocházelo k ucpávání trubek, kterými byl do taveniny dávkován kapalný vzorek a okysličovadlo.

Po ukončení experimentu byl odebrán vzorek strusky a byla provedena jeho analýza kompletním spálením, aby bylo zjištěno, kolik obsahuje popele. Vzorek měl před spálením hmotnost 0,808 g a po spálení 0,360 (hmotnost popele – 44,57% hm. původního vzorku). Tento výsledek ukazuje na velké množství organické hmoty ve strusce, což je důkazem nedokonalého procesu spalování organického oleje.

Po vychladnutí aparatury bylo zjištěno, že došlo k ucpání přívodních trubek vzorku a okysličovadla směsí strusky a zatuhnuté soli (obr. 18). Tomuto je možné předcházet například tím, že při odstraňování víka reaktoru budou ještě „za tepla“ obě trubičky profukovány vzduchem.

6. Závěry

Předchozí studie ukazují, že technologii MSO lze používat pro účinné zneškodňování organických radioaktivních a nebezpečných odpadů. Systém pro dávkování pevných látek byl odzkoušen pro dávkování lignitu a bude dále využíván pro dávkování iontoměničů. Výsledky experimentů s lignity naznačují, že lze technologií MSO efektivně rozložit a zplynit uhlíkaté sloučniny, z nichž se lignity skládají, a uran přitom zkoncentrovat do soli. Oxidace ovšem neprobíhala kompletně za podmínek, které byly experimenty nastaveny. Uran lze poté snadno ze soli extrahovat pomocí rozpuštění soli ve vodě, odfiltrování pevných podílů z roztoku a extrakcí iontoměniči, kterými dojde k izolaci a vyčištění uranu z vodného roztoku. Eluát z iontoměniče lze poté odpařit a sůl opětovně použít.

Na nově zkonstruované aparatuře byl také proveden pilotní experiment, který ukázal na některé nedostatky, jež jsou již vyřešeny a aparatura může být použita k dalším expeimentům. Jednalo se zejména o toto:

- Důkladně vždy spočítat množství okysličovadla potřebné pro úplnou stechiometrickou oxidaci organických složek v zneškodňovaném vzorku
- Těsně uzavírat víko reaktoru (všemi šrouby)
- Těsně napojit pytlík pro odběr plynných vzorků
- Při vysunování trubiček z taveniny soli při ukončování experimentu je profukovat dostatečným množstvím vzduchu, aby se neucpávaly

Do budoucna je v plánu provést optimalizaci parametrů (dávkování okysličovadla, dávkování organických odpadů) pro účinnou likvidaci radioaktivně kontaminovaných iontoměničů a olejů. Současně se experimenty zaměří na účinné zneškodnění nebezpečných kapalných organických látek jako je PCB, TCE.

7. Literatura

[1] S. J. Yosim and K. M. Barclay; The Gasification of Various Coals in Molten Salts, Energy Systems Group, Rockwell International. Document from the archives of the Argonne National Laboratory. http://www.anl.gov/pcs/acsfuel/ preprint%20archive/files/25_4_san%20francisco_08-80_0001.pdf

[2] R.L. Gay, J.D. Navratil, and A.E. Stewart; Treatment of Propellant and Explosive Wastes Using Molten Salt Oxidation, in *Proceedings of Symposium on Emerging Technologies for Hazardous Waste Management*, American Chemical Society, Washington, DC (1992).

[3] J.D. Navratil, C.D. Newman, and R.L. Gay; Processing of Salt From the Molten Salt Oxidation of Mixed Wastes in *Proc. Global 93*, ANS, La Grange Park, Il, 1 **(**1993).

[4] A.J. Darnell, R.L. Gay, J.D. Navratil, and J.C. Newcomb; Molten Salt Oxidation of Radioactive Hydraulic Oil Waste, in *Proceedings of the Second International Symposium on Mixed Waste*, American Society of Mechanical Engineers, Baltimore, MD (1993).

[5] R.L. Gay, J.D. Navratil, and C. Newman; Molten Salt Oxidation of Mixed Wastes, in *Proceedings of the 1993 International Conference on Nuclear Waste Management and Environmental Remediation*, American Society of Mechanical Engineers (1993).

[6] J.D. Navratil, C. D. Newman, and R. L. Gay; Processing of Salt From the Molten Salt Oxidation of Mixed Wastes, in *Proceedings of TMS Annual Meeting*, San Francisco, CA (1994).

[7] J.D. Navratil, M.J. Wolters, J.R. Rolfs, and A.E. Stewart; Update on Molten Salt Oxidation of Mixed Wastes, in *Proceedings of Third Biennial Mixed Waste Symposium*, Baltimore, MD (1995).

[8] J.D. Navratil and A.E. Stewart; Waste Treatment Using Molten Salt Oxidation, Nukleonika, **41**, 57–71 (1996).

[9] P.C.Hsu and M.G. Adamson; FY98 Final Report for the Expedited Technology Demonstration Project: Demonstration Tests Results for the Integrated MSO Waste Treatment System, Report No. UCRL-ID-133534, LLNL (1998).

[10] P. C. Hsu, B. Watkins, C. Pruneda, and S. Kwak; Molten Salt Oxidation: A Thermal Technology for Waste Treatment and Demilitarization, 19th Joint Army Navy NASA Air Force, 30th Propellant Development & Characterization and 19th Safety & Environment Meeting, Colorado Springs, CO, September 24–28, 2001.

[11] Jay Stimmel, Roger Wishau, Kevin B. Ramsey, Andrew Montoya, and Jason Brock; Treatment of Plutonium Process Residues by Molten Salt Oxidation, in *WM'99 Conference*, February 28–March 4, 1999. http://www.wmsym.org/ archives/1999/from/ProcsTue.htm

[12] William Smith and Fred Feizollahi; Thermal Destruction of Highly Chlorinated Mixed Wastes without Generating Corrosive Off-gases Using Molten Salt Oxidation (1,2), in *WM'02 Conference*, Tucson, AZ, February 24–28, 2002. http: //www.wmsym.org/archives/2002/Proceedings/11/344.pdf

[13] Paulo E. O. Lainetti and Alcídio Abrão; Thermal Decomposition of Contaminated Organic Solutions Using Molten Salt Oxidation – Preliminary Developments, in *2007 International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2007*, Santos, SP, Brazil, September 30–October 5, 2007. http://www.ipen.br/biblioteca/2007/inac/12024.pdf

[14] Hee-Chul Yang, Yong-Jun Cho, Jong-Sung Yun, and Joon-Hyung Kim; Destruction of Halogenated Plastics in a Molten Salt Oxidation Reactor, The Canadian Journal of Chemical Engineering **81** (3-4), p 713–718, (2003).

Poděkování – Prezentovaná práce je finančně podporována projektem SUSEN CZ.1.05/2.1.00/03.0108 realizovaného v rámci ERDF.

RADIAČNÍ REDUKCE NEPTUNIA(VI) V ROZTOCÍCH KYSELINY DUSIČNÉ

Martin Přeček[1], Alena Paulenová[2], Bruce J. Mincher[3]
1 - Fyzikální ústav AV ČR, v. v. i., Praha
2 - Oregon State University, Corvallis, USA
3 - Idaho National Laboratory, Idaho Falls, USA

Abstrakt

Spolehlivost separace neptunia z rozpuštěného jaderného paliva je podmíněna zaručením přítomnosti preferovaného oxidačního stavu neptunia. Nicméně, nezávisle na jeho počáteční redoxní speciaci, posloupnost několika chemických reakcí v kyselině dusičné vede nakonec v tvorbě směsi oxidačních stavů Np(V), Np(VI), a někdy i Np(IV). Další komplikací systému spočívá v tom, že radiolýza silně radioaktivních roztoků použitého paliva vede k tvorbě reaktivních přechodných a dlouhodobých produktů, jež mohou být jak oxidující, tak redukující. Lze tedy očekávat, že ozařování bude mít vliv na redoxní rovnováhu neptunia.

V rámci této práce byly ozářeny roztoky neptunia gama zářením v ozařovači s Co-60 a výsledné radiolytické změny redoxní rovnováhy neptunia a koncentrace kyseliny dusité (HNO_2) byly pozorovány metodou UV-Vis-NIR absorpční spektrometrie. Bylo zjištěno, že v 4 mol/l kyselině dusičné při nízkých dávkách dochází k oxidaci Np(V) na Np(VI) oxidujícími radikály. V průběhu dalšího ozařování však vzrostla koncentrace kyseliny dusité na úroveň dostatečnou pro redukci většiny šestimocného neptunia zpět do pětimocného stavu, při vysokých dávkách pak došlo k ustanovení přechodné rovnováhy mezi oběma oxidačními stavy. Počáteční koncentrace jednotlivých oxidačních stavů neptunia neovlivnily výsledné rovnovážné koncentrace Np(V) a Np(VI), čtyřmocné Np nebylo při žádném z experimentů detegováno.

1. Úvod

V kyselině dusičné může neptunium existovat ve formě Np(V), Np(IV) a/nebo Np(VI). Efektivní náboj Np(V) (z = +2,2 [1]) v jeho monovalentní dioxo-kationtové formě je nejmenší mezi aktinoidy a způsobuje nejnižší separační výtěžky mezi extrakcemi typu kapalina/kapalina i pevná fáze/kapalina, zatímco významně vyšší efektivní náboj Np(VI) i Np(IV) poskytuje významně vyšší separační výtěžky. Úspěšnost vybraných separačních metod závisí na schopnosti udržovat neptunium ve vhodném oxidačním stavu.

Nezávisle na počátečním oxidačním stavu neptunia, sled redoxních reakcí vede k tvorbě směsného mocenství. Oxidační stav neptunia ve vodných roztocích kyseliny dusičné je popisován jako závislý na koncentrace kyseliny dusité, a podle rovnice 1 by měla kyselina dusitá redukovat Np(VI) za tvorby Np(V)[2]:

$$2NpO_2^+ + 3H^+ + NO_3^- \leftrightharpoons 2NpO_2^{2+} + HNO_2 + H_2O \qquad (1)$$

Přebytek dusitanu byl používán k nastavení oxidačního stavu Np(V) [3, 4]. Na druhé straně, HNO_2 se zdánlivě chová jako katalyzátor, zvyšujíc rychlost oxidace většinových relativních množství Np(V) kyselinou dusičnou. Se smíšených úspěchem byl tento jev průmyslově využit během separace neptunia procesem PUREX [5]. Vysvětlení tohoto paradoxního jevu navrhli Tochiyama et al. [6], kteří se domnívali, že katalytický efekt kyseliny dusité je zprostředkován radikálem $^{\bullet}NO_2$ vznikajícím z N_2O_4, který je tvořen synproporcionací kyseliny dusičné a kyseliny dusité:

$$^{\bullet}NO_2 + {}^{\bullet}NO_2 + H_2O \leftrightharpoons N_2O_4 + H_2O \leftrightharpoons HNO_2 + H^+ + NO_3^- \quad (2)$$

Teprve radikál $^{\bullet}NO_2$ poté hraje roli skutečného oxidačního činidla:

$$NpO_2^+ + {}^{\bullet}NO_2 \rightarrow NpO_2^{2+} + NO_2^- \quad (3)$$

a oxidace Np(VI) v přítomnosti nízkých koncentrací HNO_2 je spíše důsledkem reakce Np(V) s radikálem oxidu dusičitého ($^{\bullet}NO_2$), spíše než reakcí se samotnou HNO_2 [7].

Speciace neptunia v roztocích kyseliny dusičné tudíž zcela jasně závisí na koncentraci HNO_2. Kyselina dusitá se tvoří během zpracování použitého jaderného paliva několika různými zdroji, primárně však během rozpouštění použitého oxidického paliva a radiolýzou jak vodných, tak i organických roztoků kyseliny dusičné [8]. HNO_2 je slabou kyselinou s nízkou disociační konstantou (pK_a = 3,3 at 25°C, [9]), který vede k téměř kompletní protonaci dusitanového aniontu v roztocích s vyšší koncentrací kyseliny dusičné, jež jsou používány v procesech přepracování použitého jaderného paliva. Jakmile je kyselina dusitá v roztoku v neutrální molekulární formě, stává se snadnou extrahovatelnou tributylfosfátem do organické fáze [10], kde následně také ovlivňuje chemii extrahovaného neptunia [11].

Tato studie byla provedena za účelem analýzy vlivy gama záření na redoxní speciaci neptunia ve vodných roztocích kyseliny dusičné, primárně však za účelem identifikace významu radiolytické tvorby kyseliny dusité.

2. Experimentální část

Roztoky ^{237}Np v kyselině dusičné byly připraveny z před-připravených zásobních roztoků, které byly k dispozici v Národní laboratoři Idaho (Idaho National Laboratory, INL) a na Oregonské státní univerzitě (Oregon State University, OSU). Koncentrace přípravných roztoků kyseliny dusičné byla stanovena titrací roztokem NaOH, který byl standardizován kyselým ftalátem sodným. Koncentrace ^{237}Np byla potvrzena nezávisle spektrofotometrií a gama-spektrometrií na vysoce čistém germaniovém detektoru (HPGe). Připravené roztoky byly ozářeny v „semi-mikro“ kyvetách opatřených závitovým uzávěrem s 1-cm optickou délkou a šířkou 0,4 cm (od dodavatelů Hellma USA v INL a od Starna Cells, Inc. na OSU), které mají optická okénka z vysoce čistého taveného křemenu, jež vlivem γ-záření nezabarvují.

Počáteční oxidační stav Np byl elektrochemicky upraven na potenciostatu BASi Epsilon E2 s využitím proudového amplifikátoru PWR-3.Elektrolýza byla provedena v na zakázku vyrobené H-cele, jež měla oxidující a redukující prostor oddělený skleněnou fritou. Pracovní elektrodou byla spirála z platinového drátu, která byla vložena do kontinuálně magneticky míchaného roztoku Np v kyselině dusičné, zatímco platinová proti-elektroda a referenční elektroda typu Ag/AgCl byly umístěny v druhé komůrce obsahující čistou kyselinu dusičnou. Šestimocné neptunium – Np(VI) – bylo připraveno aplikací potenciálu +1250 mV na pracovní elektrodu, příprava Np(V) byla provedena nastavením potenciálu pracovní elektrody na +700mV vzhledem k referenční elektrodě [12].

Ozáření bylo provedeno s využitím ^{60}Co zdroje gama záření (Nordion GammaCell 220), jenž byl k dispozici jak v INL (s dávkovou rychlostí 7 kGy/h) tak i na OSU (s dávkovou rychlostí 0,38 kGy/h). Dávkové rychlosti obou ozařovačů byly stanoveny s použitím standardní Frickeho dozimetru a absorbované dávky byly stanoveny na základě doby trvání ozařovacího kroku.

Koncentrace HNO_2, Np(V) and Np(VI) přítomné v roztocích po jejich ozáření byly nedestruktivně stanoveny UV/Vis/nIR absorpční spektroskopií na zařízeních Cary 6000i (v INL) a OLIS RSM 1000 a OceanOptics QE6500 (na OSU). Absorbance Np(V) byla změřena s využitím jeho ostrého absorpčního maxima na 981 nm, zatímco koncentrace Np(VI) byla stanovena podle velikosti maxima absorbance jeho

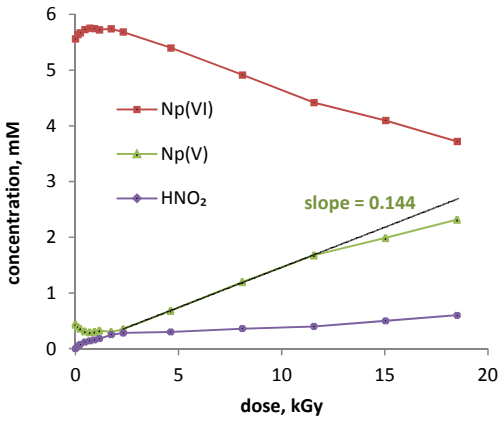
širokého absorpčním píku na 1225 nm. Molární absorpční koeficienty byly stanoveny nezávisle pro každé zařízení. Vodná spektra dusitanového aniontu a kyseliny dusité jsou dobře známa[13]: široký absorpční pás aniontu NO_2^- mezi 300-400 nm se transformuje v multiplet několik výrazných píků při jeho protonaci do formy molekulární HNO_2.

3. Výsledky a diskuse

3.1. Vlivy gama ozáření na roztoky neptunia (VI) ve 4M HNO_3

Roztok pětimocného neptunia ve 4 M (mol/l) HNO_3 byl nejprve elektrolyticky oxidován do převážně šestimocného stavu, s výsledným molárním zlomkem Np(VI) dosahujícím hodnoty až 94% a Np(V) hodnoty 6% ve 4 M HNO_3. Alikvoty těchto roztoků byly ozářeny dávkovou rychlostí 7,0 kGy/h; jeden alikvot byl dán stranou, aby sloužil jako referenční vzorek. Výsledek ozařování roztoku 6 mM Np je ukázán na Obrázku 1. Čtyřmocné neptunium nebylo ani jednou detegováno v absorpčních spektrech ozářených vzorků, takže úspěšná látková bilance byla vždy vypočtena ze součtu koncentrací Np(V) a Np(VI). Nebyly pozorovány žádné změny v redoxní speciaci neptunia v neozářených vzorcích.

Na začátku ozařování, v oblasti nízkých dávek, byla pozorovatelná oxidace přítomného malého množství Np(V) na Np(VI). Tento jev lze nejspíše vysvětlit účinkem oxidujících radikálů $\bullet NO_3$ a $\bullet NO_2$, které byly vytvořeny radiolýzou kyseliny dusičné, v kombinaci s oxidujícím účinkem radikálu •OH vznikajícího radiolýzou vody. Nicméně, při dávce na úrovni asi ~ 1 kGy se oxidace Np(V) ukončila, a započala redukce Np(VI) na Np(V) v důsledku radiolyticky vytvořené HNO_2 a pokračovala až do celkové dávky 18,5 kGy, kdy byl experiment ukončen.



Obr. 1 - Koncentrace Np(V), Np(VI) a HNO_2 vzhledem k absorbované dávce 6 mM původně ~ 93% Np(VI) ve 4 M HNO_3, dávková rychlost 7,0 kGy/h

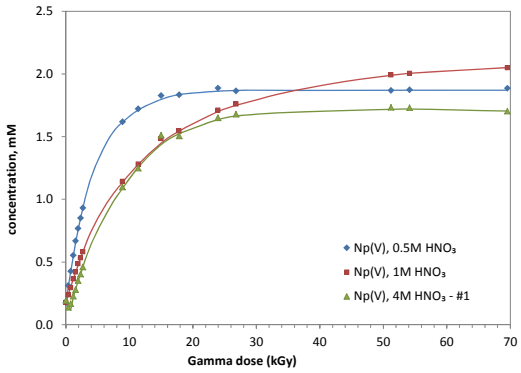
Lineární část dat získaných mezi dávkami 2,7 až 11,6 kGy na obrázku 1 dovoluje kalkulaci hodnoty radiolytického výtěžku Np(V) $G_{Np(V)}$ = 0,144 µmol/J. Tato hodnota se zdá být téměř dvojnásobkem radiolytického výtěžku HNO_2 o hodnotě 0,076 µmol/J, který může být predikován ve 4M HNO_3 z údajů o výtěžcích HNO_2 stanovených, které zjistili Burger a Money [8]. Jak lze očekávat z redoxní rovnováhy podle rovnice 1, měla by přibližně platit rovnost $G_{Np(V)} \approx 2 \times G_{HNO2}$.

Na obrázku 1 lze také vypozorovat, že koncentrace radiolyticky vytvořené HNO_2 roste kontinuálně s rostoucí absorbovanou dávkou v ozářených roztocách; nicméně počáteční rychlý nárůst se zpomalí po dávce asi 1 kGy, kdy koncentrace HNO_2 dosáhla 0.16 mM. Tento zlom ve sklonu nárůstu koncentrace HNO_2 lze nejlépe vysvětlit její spotřebou reakcí s Np(VI), která snižuje efektivní výtěžek HNO_2 oproti ozařování HNO_3 v nepřítomnosti neptunia [8].

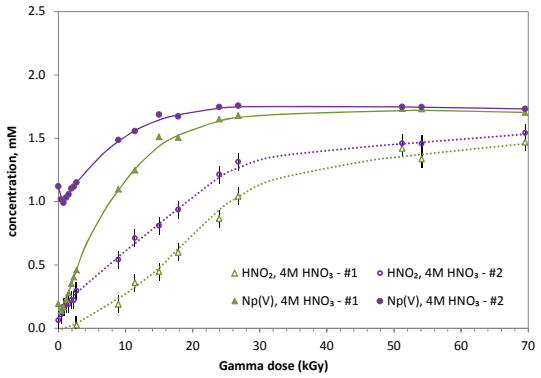
3.2. Vliv koncentrace kyseliny dusičné

Čtyři odlišné vzorky 2,5 mM neptunia byly připraveny v uzavřených kyvetách. Tři vzorky měly sice stejný molární poměr Np(VI):Np(V) roven 93:7, ale byly připraveny ve třech odlišných koncentracích kyseliny dusičné (0,5; 1,0 a 4,0 M HNO_3). Vzorky se vyznačovaly dlouhodobou redoxní stabilitou a vzorek obsahující 4M HNO_3 byl označen jako #1. Druhý vzorek neptunia ve 4M HNO_3 (#2) byl připraven redukcí původně 96% Np(VI) substechiometrickým množstvím peroxidu vodíku tak, aby byl poměr Np(V):Np(VI) blízky 1:1 [14]. Redoxní reakce s peroxidem vodíku byla ukončena během 2 hodin.

Ozařování uzavřených kyvet bylo provedeno při nižší dávkové rychlosti (vzhledem k předchozímu experimentu) o hodnotě 0,38 kGy/h. Ozáření bylo téměř kontinuální s asi 30-minutovou přestávkou na spektrofotometrická měření Koncentrace HNO_2 v ozářených vzorcích byla stanovena dekonvolucí známého spektra HNO_2 od intenzívního absorpčního ramene Np(VI) v UV oblasti mezi 350 a 400 nanometry. Chyba stanovení koncentrace HNO_2 touto metodou byla odhadnuta na ±0.05mM. Výsledky experimentu jsou uvedeny na obrázcích 2a a 2b:



Obr. 2a - Ozáření při dávkové rychlosti 0.38 kGy/h: Závislosti koncentrace Np(V) na dávce absorbované v roztocích o různé koncentraci HNO_3. Koncentrace Np(VI) není vynesena a lze ji považovat jako komplementární k Np(V), doplňujíc celkovou 2.5 mM koncentraci neptunia.



Obr. 2b - Ozáření při dávkové rychlosti 0.38 kGy/h: Závislosti koncentrace Np(V) a HNO_2 vzhledem k absorbované dávce ve dvou vzorcích Np ve 4M HNO_3. Vzorky #1 a #2 se lišily v jejich počátečním zastoupení Np(V) v celkovém Np: #1 = 7%, #2 = 45%.

Vliv ozáření na oxidační stav neptunia byl stejný pro všechny 3 odlišné koncentrace kyseliny dusičné (obrázek 2a) – způsoboval redukci Np(VI) na Np(V), a to tak, že byl na konci experimentu dosažen většinově pětimocný stav. Nicméně, ve vzorcích se 4M HNO_3 (Obrázek 2b) byla pozorována počáteční oxidace Np(V) na Np(VI) do dosažení asi 1kGy dávky, podobně jako v předchozích experimentech s vyšším dávkovým příkonem (obrázek 1). Ani tato počáteční oxidace Np(V), ani tvorba měřitelných množství HNO_2 nebyly pozorovány ve vzorcích s nižší koncentrací kyseliny dusičné.

V oblasti malých dávek mezi 0,4 až 2,5 kGy měly pozorované radiační výtěžky Np(V) v 0,5; 1,0 a 4,0 M kyselině dusičné u vzorků s počátečním 93%-obsahem Np(VI) hodnoty 0,27; 0,151 a 0,146 µmol/J, v uvedeném pořadí. Výtěžek Np(V) o hodnotě 0,146 µmol/J ve 4 M HNO_3 je ve shodě s radiolytickým výtěžkem stanoveným v předchozím experimentu, kde byla použita 18-krát vyšší dávková rychlost (viz obrázek 1).

Pokles ve výtěžku Np(V) s rostoucí koncentrací HNO_3 naznačuje, že redukující účinek radiolýzy vodných roztoků kyseliny dusičné nemůže být primárně připisován vlivu radiolyticky tvořené HNO_2, přinejmenším ne v oblasti nižších koncentrací HNO_3. Redukující radiolytické species, jako jsou H_2O_2 a H_2 jsou dalšími možnými kandidáty na klíčová redukující činidla, protože jejich radiační výtěžky významně rostou ve směru poklesu koncentrace HNO_3 [15].

Pouze vzorky se 4M HNO_3 se vyznačovaly koncentracemi HNO_2 nad 0,05mM. Absolutní rozdíly mezi hodnotami koncentrací HNO_2 stanovených ve dvou vzorcích 4M HNO_3 (tečkované čáry na obrázku 2b) mohou být vysvětleny vlivem spontánní oxidace Np(V) kyselinou dusičnou (rovnice 1), která vedla k tvorbě dodatečného množství HNO_2 ve vzorku #2 (v němž měl počáteční poměr Np(V):(Np(VI) hodnotu 45:55).

Během ozařování, oba vzorky se 4M HNO_3 se přibližovaly ke společnému stacionárnímu stavu redoxní speciace s přibližným poměrem Np(V):Np(VI) = 70:30, kterého bylo dosaženo v oblasti 30kGy absorbované dávky. V tomto bodě zároveň došlo k výraznému zpomalení růstu koncentrace HNO_2, taktéž dosahujíc stacionárního stavu. Pozorovaný sklon počátečního růstu HNO_2 v obou vzorcích se 4M HNO_3 byl ~0,04 mM HNO_2/kGy, což je přibližně o 50% nižší hodnota, nežli u výtěžku pozorovaného 4M HNO_3 bez přítomnosti neptunia [8].

Náhlý pokles růstu HNO_2 v oblasti dávky 30kGy může naznačovat ztrátu HNO_2 do plynné fáze soustavy, protože pouze 0,6 ml z 2,6 mL objemu kyvety cuvette bylo zaplněno kapalnou fází. Kyselina dusiá je známá tím, že se v průběhu několika hodin rozkládá do plynného prostoru nad roztokem [16].

Je zajímavé podotknout, že integrální výtěžek Np(V) v ozářené 1M HNO_3 (obrázek 2a) je vyšší nežli výtěžky v 0,5 M i ve 4M HNO_3. Lze tedy navrhnout, že růst stacionární koncentrace Np(V) mezi 0,5 a 1M HNO_3 lze vysvětlit poklesem stacionární koncentrace •OH radikálů, které jsou primárně odpovědné za reoxidaci Np(V) zpět do Np(VI), v důsledku reakce těchto radikálů s nedisociovanou molekulární formou kyseliny dusičné. Rychlostní konstanty reakce hydroxylových radikálů •OH s molekulární HNO_3 ($k = 1.4\times10^8$ $M^{-1}s^{-1}$)[17] a s Np(V) ($k = 4.3\times10^8$ $M^{-1}s^{-1}$)[18] jsou srovnatelného řádu. Vzhledem k neúplné disociaci HNO_3 [19], je koncentrace molekulární HNO_3 v 0.5M a v 1M kyselině dusičné přibližně 4-krát vyšší, 7,4 mM and 27 mM, v uvedeném pořadí. Lze tedy očekávat pokles stacionární koncentrace radikálu •OH (asi o 60%) jako důsledek zvýšeného vychytání hydroxylového radikálu molekulární HNO_3, a následně tedy i k přibližně 2,5-násobnému snížení absolutní hodnoty rychlosti oxidace 2mM Np(V) radikálem •OH.

Radikál •NO_3 se také chová jako oxidační činidlo vůči Np(V); nicméně rychlostní konstanta této reakce ($k = 1\times10^5$ $M^{-1}s^{-1}$)[7] je o tři řády nižší v porovnání s rychlostí oxidace Np(V) hydroxylovým radikálem. Další nárůst koncentrace kyseliny dusičně z 1 do 4 mol/l vede k významnému nárůstu výtěžků oxidujících radikálů •NO_3 and •NO_2 (rovnice 2), které způsobí snížení stacionární koncentrace Np(V).

4. Závěr

Během ozařování roztoků neptunia v kyselině dusičné představuje kyselina dusitá významné radiolyticky produkované species. Ve 4M HNO_3 je vzrůst koncentrace HNO_2 následován redukcí Np(VI) do převážně pětimocného stavu, nicméně v roztocích neptunia v 1 a 0,5M HNO_3 není redukce Np(VI) doprovázena kvantitativním nárůstem koncentrace HNO_2. Při kontinuálním ozařování je vytvořen stacionární stav mezi Np(V) a Np(VI), jehož složení je nezávislé na počátečních relativních koncentrací obou oxidačních stavů.

Počáteční produkce oxidujících radikálů během ozařování 4M HNO_3 odlišnými dávkovými rychlostmi vedla k oxidaci Np(V), ale vzrůst koncentrace HNO_2 v průběhu dalšího ozařování vede k zintenzívnění redukce Np(VI) a pětimocný stav neptunia se stane dominantní. Nižší stupeň redukce Np(VI) byl pozorován ve 4M HNO_3 oproti roztokům 1 a 0,5M HNO_3, což je spojeno s nižším výtěžkem radikálových produktů v těchto systémech.

Porovnání dvou odlišných experiment s ozařováním neptunia ve 4M HNO_3 ukazuje, že radiolytický výtěžek Np(V) není ovlivněn ani dávkovou rychlostí ani celkovou koncentrací neptunia.

5. Literatura

[1] Choppin GR, Jensen MP. Actinides in Solution: Complexation and Kinetics. In: Morss LR, Edelstein NM, Fuger J, editors. *The Chemistry of the Actinide and Transactinide Elements* 3rd 2006. Dordrecht: Springer Netherlands; 2524-2621

[2] Siddal TH, Dukes EK. Kinetics of HNO2 Catalyzed Oxidation of Neptunium(V) by Aqueous Solutions of Nitric Acid. *J. Am. Chem. Soc.* 1959;**81**(4):790-794.

[3] Yoshida Z, Johnson SG, Kimura T, Krsul JR. Neptunium. In: Morss LR, Edelstein NM, Fuger J, editors. *The chemistry of the actinide and transactinide elements* 3rd 2011. Dordrecht: Springer Netherlands; 699-812

[4] Drake VA. Extraction chemistry of neptunium. In: Schulz WW, Burger LL, Navratil JD, Bender KP, editors. *Science and Technology of Tributyl Phosphate, Volume III* 1990. Boca Raton, Florida: CRC Press Inc; 123-145

[5] Benedict M, Pigford T, Levi H. *Nuclear Chemical Engineering*. 2nd ed. McGraw-Hill; 1981.

[6] Tochiyama O, Nakamura Y, Hirota M, Inoue Y. Kinetics of nitrous acid-catalyzed oxidation of neptunium in nitric acid-TBP extraction system. *Journal of Nuclear Science and Technology* 1995;**32**(2):118–124.

[7] Vladimirova M. Mathematical Modeling of the Radiation-chemical Behavior of Neptunium in Nitric acid. Equilibrium States. *Radiochemistry* 1995;**37**(5):410-416.

[8] Burger LL, Money MD. *Nitrous Acid Behavior in PUREX Systems*. US DOE Report HW-60278, General Electric Co. Hanford Atomic Products Operation, Richland, Wash.; 1959.

[9] Stedman G. Reaction mechanisms of inorganic nitrogen compounds. *Adv. Inorg. Chem. Radiochem* 1979;**22**:113–170.

[10] Fletcher JM, Scargill D, Woodhead JL. The Nitrous Acid-Tributyl Phosphate Complex. *Journal of the Chemical Society (Resumed)* 1961;(4):1705.

[11] Marchenko VI, Koltunov VS, Dvoeglazov KN. Kinetics and mechanisms of redox reactions of U, Pu, and Np in tributyl phosphate solutions. *Radiochemistry* 2010;**52**(2):111-126.

[12] Cohen D, Hindman JC. Oxidation Potentials of the Neptunium(III)-(IV) and the Neptunium(V)-(VI) Couples in Perchloric Acid. *Journal of the American Chemical Society* 1952;**74**(18):4679-4682.

[13] Chlistunoff J, Ziegler KJ, Lasdon L, Johnston KP. Nitric/Nitrous Acid Equilibria in Supercritical Water. *The Journal of Physical Chemistry A* 1999;**103**(11):1678-1688.

[14] Zielen A, Sullivan J, Cohen D, Hindman J. A Kinetic Study of the Reduction of Neptunium(VI) by Hydrogen Peroxide. *Journal of the American Chemical Society* 1958;**80**(21):5632–5635.

[15] Nagaishi R, Jiang P-yun, Katsumura Y, Ishigure K. Primary Yields of Water Radiolysis in Concentrated Nitric Acid Solutions. *Journal of the Chemical Society, Faraday Transactions* 1994;**90**(4):591-595.

[16] Taylor TWJ, Wignall EW, Cowley JF. The decomposition of nitrous acid in aqueous solution. *Journal of the Chemical Society (Resumed)* 1927;**1927**(2):1923.

[17] Katsumura Y, Jiang PY, Nagaishi R, Oishi T, Ishigure K, Yoshida Y. Pulse radiolysis study of aqueous nitric acid solutions: formation mechanism, yield, and reactivity of NO3 radical. *The Journal of Physical Chemistry* 1991;**95**(11):4435-4439.

[18] Pikaev AK, Shilov VP, Gogolev AV. Radiation chemistry of aqueous solutions of actinides. *Russian Chemical Reviews* 1997;**66**(9):763-788.

[19] Davis W, Bruin HJ De. New activity coefficients of 0–100 per cent aqueous nitric acid. *Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry* 1964;**26**(6):1069-1083.

PERSPEKTÍVNE OCELE PRE NOVÚ GENERÁCIU JADROVÝCH REAKTOROV

Iveta Bartošová
Slovenská technická univerzita Bratislava
Ústav jadrového a fyzikálneho inžinierstva, Fakulta elektrotechniky a informatiky

Abstrakt

Článok je zameraný na použitie nedeštruktívnych techník pre výskum materiálov novej generácie jadrových reaktorov. Tieto nové reaktory sú stále vo fáze výskumu, no napriek tomu existuje predpoklad, že v budúcnosti budú jedným z hlavných zdrojov pre výrobu elektrickej energie.

S novou generáciou reaktorov musia napredovať aj materiály, ktoré by dokázali udržať vysoký štandard vlastností požadovaných pre využitie v jadrovej technológii. Medzi takéto vlastnosti patrí odolnosť konštrukčných materiálov voči vysokým teplotám, radiácii a iným nepriaznivým vplyvom. Konštrukčné materiály by mali pritom zachovávať svoje mechanické vlastnosti počas celej svojej životnosti. V článku sa zameriam sa na feritická ocele s temperovaným martenzitom, ocele spevnené disperznými (ODS) časticami a na austenitické ocele.

Vybrané ocele boli skúmané pozitrónovou anihilačnou spektroskopiou (PAS) a metódou Barkhausenovho šumu (BŠ).

1. Úvod

Šesť konceptov nových jadrových reaktorov bolo vybraných medzinárodným výskumným programom GEN IV spomedzi ostatných na ďalšie skúmanie a rozvoj. Medzi hlavné ciele GEN IV patrí zvýšená bezpečnosť, zamedzenie zneužitia jadrového paliva na výrobu zbraní, minimalizovanie rádioaktívneho odpadu a využitie prírodných zdrojov, rovnako ako zníženie nákladov na výstavbu a prevádzku jadrových elektrárni.

Zatiaľ najväčším problémom pri vývoji GEN IV reaktorov sú konštrukčné materiály. Spoločným úsilím vedcov, ktorí skúmajú materiály nielen pre štvrtú generáciu jadrových reaktorov ale aj pre fúzne technológie je nájsť optimálne technické a ekonomické riešenie a zaručiť vysokú spoľahlivosť požadovaných konštrukčných materiálov.

2. Degradačné vplyvy

Najzávažnejším nežiadúcim vplyvom na konštrukčné materiály je radiácia. Najčastejšie je radiačné poškodenie spôsobené neutrónovým tokom. Neutróny sa pri interakcii s látkou nielen rozptyľujú, ale pri vyšších energiách môžu aj odovzdať jadrám mriežky dostatočnú energiu na to, aby ich vyrazili z normálnych mriežkových polôh a tak vytvárali dislokácie a vakancie. Neutróny môžu spôsobiť aj transmutáciu materiálu, a tak zmeniť jadrovo-fyzikálne, chemické ale aj mechanické vlastnosti látky.

Neutróny spôsobujú aj iné poškodenia štruktúry ako vyrážanie atómov. Jadrové reakcie typu (n, p) vytvárajú vodík, ktorý znižuje pružnosť a zvýrazňuje krehkosť materiálu pri nízkych teplotách. Reakcie (n, α) produkujú hélium, ktoré sa hromadí vo forme bubliniek znižujúcich mechanickú celistvosť materiálov a

na povrchu materiálu spôsobujú škvrnitosť s následne pravdepodobnejším krehkým lomom. Preto je dôležité vyvinúť kvalitný materiál s čo najmenším počtom defektov už pri výrobe.

3. Skúmané ocele

Skúmali sme austenitickú oceľ NF709, feritomartenzitickú (FM) oceľ EUROFER97 a dve ocele spevnené disperznými časticami ODS EUROFER a MA956. V článku si priblížime ich základné vlastnosti a chemické zloženie.

Materiál NF709 je vyrábaný firmou Nippon Steel (Tokyo, Japonsko). Je považovaný za jednu z najlepších austenitických ocelí kvôli jej odolnosti voči tečeniu a korózii pri vysokých teplotách. Chemické zloženie materiálu je zhrnuté v tabuľke 1.

Prvok	***Cr***	***Ni***	***Mn***	***Mo***	***Si***	***Nb***	***Ti***	***N***	***C***	***B***	***P***
Obsah (%hm.)	20,3	24,95	1	1,5	0,41	0,26	0,05	0,167	0,06	0,005	0,006

Tab. 1 - Chemické zloženie NF709 (% hmot.) [1]

Niektoré FM ocele po dlhodobom umiestnení v rádioaktívnom prostredí sú charakterizované nižšou hladinou aktivity. Takéto ocele sa nazývajú FM ocele so zníženým stupňom aktivovania (RAFM). Výskum v Európskej únii dospel k oceli EUROFER97 [2] ako k najperspektívnejšiemu materiálu s krátkou dobou aktivity hlavne pre fúzny reaktor. EUROFER97 má potenciál sa stať konštrukčným materiálom pre európsky DEMO blanket. Chemické zloženie tohto materiálu je v tabuľke 2.

Prvok	***Cr***	***W***	***Mn***	***Ta***	***V***	***S***	***Si***	***N***	***C***	***Co***	***P***
Obsah (%hm.)	9,25	1,1	0,4	0,07	0,2	0,005	0,04	0,06	0,105	0,006	0,005

Tab. 2 - Chemické zloženie EUROFER97 (% hmot.)

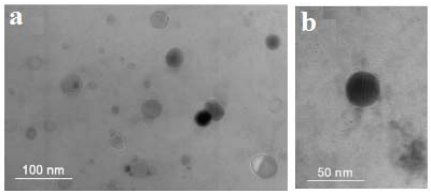
Feritické ocele sú známe svojou vynikajúcou odolnosťou voči radiácii. Avšak ich odolnosť voči vysokým teplotám je nízka v porovnaní s tradičnými austenitickými nerezovými oceliami, čím ich použitie je limitované do 600 °C. Túto nevýhodu však môžme eliminovať implementovaním tepelne stabilných disperzii do feritickej/FM matrice. Takýmto spôsobom vznikajú ODS zliatiny, rovnako aj ODS EUROFER z EUROFER97. ODS EUROFER je obohatený časticami ytria a prídavkom titánu. Prídavok titánu zmenšuje veľkosť ytriovej častice a tým zabezpečuje rovnomernejšiu distribúciu v materiále [3].

Spevňovanie disperznými časticami zvyšuje pevnosť FM ocelí pri vysokých teplotách ako aj odolnosť voči radiácii. ODS FM ocele s 0,3 % hmot. ytria vykazujú lepšie mechanické správanie, čo sa týka kritickej hodnoty napätosti, ako základný FM material do 500 °C a udržujú si priemerné vlastnosti až do 700°C [4–6].

Oceľ MA956 je disperznými časticami spevnená feritická nehrdzavejúca oceľ vyrábaná pomocou práškovej metalurgie. Je kandidátnym materiálom pre komponenty plynných turbín, ktoré musia odolávať vysokým teplotám. Vysoký podiel hliníka (≈ 5%) umožňuje vytvorenie priliehavého hliníkového povlaku pri vysokých teplotách a tým sa oceľ stáva vysoko odolná voči agresívnemu plynnému prostrediu [7]. Oxidy sú oveľa menej náchylné na zoskupovanie než precipitácie [8-10] a zostávajú diskrétnymi až k teplotám blízkym teploty tavenia matrice. Chemické zloženie je v tabuľke 3 a mikroštruktúra na obrázku 1.

Prvok	***Cr***	***Ni***	***Mn***	***Ti***	***Al***	***S***	***S***	***N***	***C***	***Cu***	***P***	***Y_2O_3***
Obsah (%hm.)	19,4	0,05	0,1	0,38	4,8	0,008	0,04	0,022	0,02	0,02	0,01	0,51

Tab. 3 - Chemické zloženie MA956 (% hmot.)



Obr. 1 - a) Mikroštruktúra MA956, b) disperzná častica

4. Mechanické a fyzikálne vlastnosti

V tabuľke 4 sú uvedené rôzne vlastnosti skúmaných materiálov. Niektoré parametre materiálu NF709 neboli dostupné a tak boli nahradené parametrami príbuznej 20Cr25Ni ocele (NAS255NM).

	EUROFER97	*ODS E*	*MA956*	*NF709*
Hustota [g/cm^3]	7.79	7.76	7.25	7.89
Tep. vodivosť [W/mK]	28	25.9	10.9	14
Tepl.tavenia [°C]	1450	2500	1482	1430
Mer.tep.kap. [J/kg.K]	450	449	469	452
Elek.resistivita [μΩm]	0.5	0.5	1.31	0.97
Modul pružn. [GPa]	213.4	206	269	190
Koef.tep.rozť. [10^{-6} 1/K]	12.7	10.4	11.3	14.9
HV	245-430	330	250-300	178

Tab. 4 - Mechanické a fyzikálne vlastnosti skúmaných ocelí [11]

5. Vplyv hélia na skúmané materiály

Pre reaktory, ktoré budú využívať hélium ako chladivo, je dôležité skúmať vplyv He na materiály. V experimentoch sme implantovali He do skúmaných vzoriek. Implantácia bola vykonaná v Laboratóriu iónových zväzkov FEI STU. Kinetická energia iónov dosahovala 500 keV, čo značí hĺbku implantácie do 1 μm od povrchu. Implantáciou sa dosiahlo radiačné poškodenie približne do 10dpa, zodpovedajúce úrovni implantácie 0,1C/cm^2. Predpokladáme spevnenie štruktúry materiálov ako výsledok radiačného poškodenia. Pri implantovaní He do materiálu vznikajú plastické defekty. He sa usadzuje v týchto defektoch, najčastejšie v dislokáciach a hraniciach zŕn. He atóm je veľký, a to spôsobuje nehybnosť obsadených dislokácii [12]. Pôsobí spevňujúco na materiál, ale veľkosť vytvrdzovania závisí od teploty. Čím je implantačná teplota nižšia, tým je väčšie spevnenie. Avšak pružnosť je znížená. Po ožiarení materiálu He, klesá medza pevností s poklesom teploty. To znamená, že pri dostatočne veľkej koncentrácie He a malej teplote môže nastať až pretrhnutie materiálu [13].

Našimi predpokladmi sú:

- FM ocele budú vykazovať menšie spevnenie v porovnaní s austenitickými nerezovými oceľami. He má teda väčší vplyv na austenitické ocele.
- ODS ocele budú vykazovať vysokú odolnosť voči He.

6. Metódy testovania

PAS využíva proces anihilácie pozitrónu s elektrónom v študovanom materiále na analýzu lokálnej elektrónovej hustoty. Defekty spojené s voľným objemom ako dislokácie, vakancie, zhluky vakancií, klastre a hranice zŕn predstavujú pre pozitrón potenciálovú jamu, a preto môže dôjsť k záchytu. PAS sa využíva pri pozorovaní technológie prípravy rôznych materiálov a tiež pri sledovaní vplyvu prostredia, technológie, teploty a radiácie na únavu a starnutie materiálov.

Princípom Barkhausenovho efektu je náhla zmena vo veľkosti a orientácii feromagnetických domén, alebo mikroskopického súboru usporiadaných atómových magnetov (spinov), ktorá sa objavuje pri opakovanom procese magnetizovania a demagnetizovania. Množstvo Barkhausenovho šumu (BŠ) v danom materiály je spätý s množstvom nečistôt a kryštalických defektov charakterizujúcich reziduálne napätie štruktúry, a preto je vhodným indikátorom mechanických vlastností. To je dôvod prečo sa BŠ môže využívať pri skúmaní degradácie mechanických vlastností v magnetických materiáloch vystavených mechanickému napätiu alebo silnému žiareniu. BŠ možno využiť na vyšetrovanie veľkosti zŕn, pnutia, tvrdosti a tepelného spracovania. Výsledkom z merania touto metódou je elektromagnetický signál - šum, ktorý možno popísať tzv. obálkou.

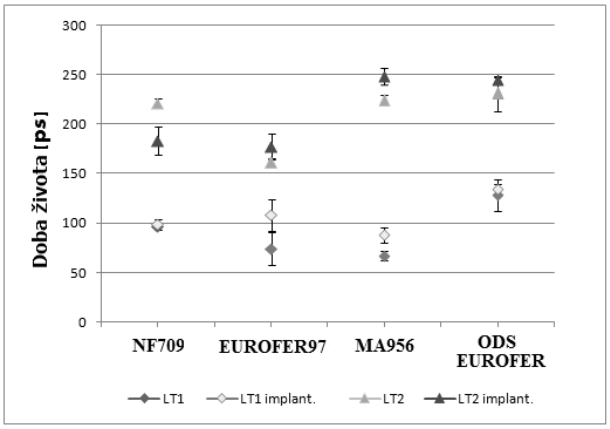
Na základe veľkosti a tvaru obálky možno porovnávať reziduálne napätie vo viacerých materiáloch prípadne vzorkách. Platí, čím je daná obálka väčšia, tým je menšie reziduálne napätie.

7. Výsledky

Meranie PAS LT sa vykonalo na Ústave jadrového a fyzikálneho inžinierstva na FEI STU v Bratislave. Bola použitá štandardná aparatúra s použitím BaF_2 detektorov vo fast-fast zapojení. Meranie sa vykonalo s parametrom FWHM do 220 ps, ktorý popisuje citlivosť/presnosť merania. Každý materiál je popísaný dvoma dobami života (LT). Parameter LT1 nám popisuje anihiláciu pozitrónov v bezdefektnej štruktúre a LT2 anihiláciu pozitrónov v defektoch. Nás bude najmä zaujímať údaj LT2 pre vzorky v základnom stave ako aj po implantácii. Teoretické hodnoty známych typov defektov (Tab. 5) porovnáme s nameranými LT2 pozitrónov (Obr. 7). Koncentrácia daného typu defektu je tým vyššia, čím je väčšia intenzita (I) výskytu pozitrónov s danou LT (Obr. 8).

>280 ps	Vakančné klastre
262-280 ps	4-vakancie
232-262 ps	3-vakancie
197-232 ps	Di-vakancie
175-197 ps	Vakancie
160-180 ps	Dislokácie
110-160 ps	Bulk
0-110 ps	Nečistoty

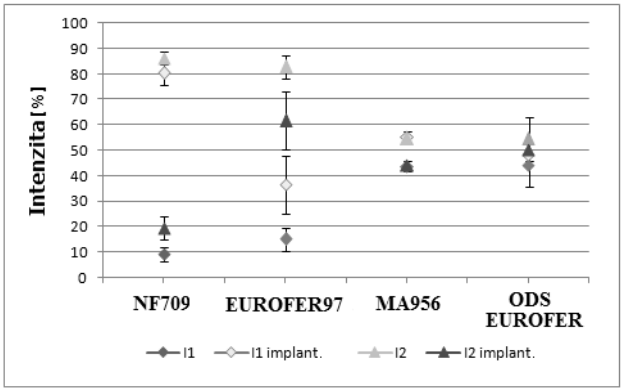
Tab. 5 - Teoretické hodnoty doby života pozitrónov v defektoch [14]



Obr. 7 - Doby života pozitrónov

Z obrázka 7 môžeme usúdiť, že v NF709 sa nachádzajú defekty s LT okolo 220 ps čo je podľa teoretických hodnôt defekt typu di-vakancia. Podľa rovnakého princípu vidíme, že EUROFER97 obsahuje dislokácie, MA956 di-vakancie až tri-vakancie a ODS EUROFER taktiež di-vakancie až tri-vakancie.

Po implantácií héliom sa LT pozitrónov v defektoch mierne zvýšila okrem materiálu NF709. V ňom naopak sa znížila na približne 183±14 ps, čo by podľa teoretických hodnôt boli vakancie, dislokácie alebo di-vakancie. V ostatných prípadoch mierne zvýšenie LT nespôsobilo vznik iných typov defektov ako v základnom stave.



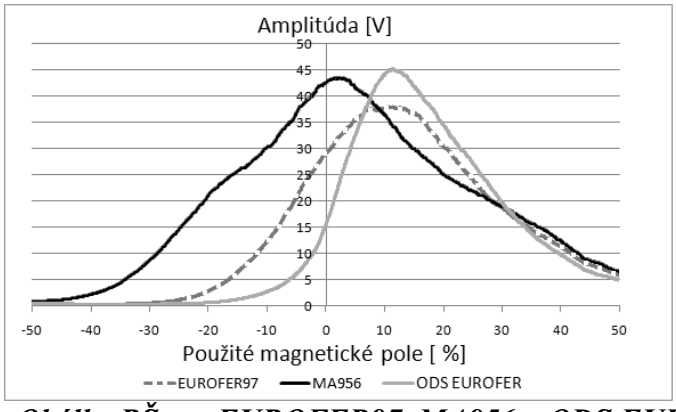
Obr. 8 - Intenzity pozitrónov

Obr. 8 nám ukazuje intenzity defektov v jednotlivých vzorkách. Intenzita I1 referuje o výskyte pozitrónov s dobou života LT1 a I2 o výskyte pozitrónov s dobou života LT2. V materiály NF709 zanihilovalo 86% pozitrónov v defektoch, V EUROFER97 82% a v ODS oceliach približne 54%. Po implantácii materiálu NF709 môžeme vidieť rapídne zníženie intenzity pozitrónov zanihilovaných v defektoch. V EUROFER97 sa taktiež znížila na 61±11%. V ODS oceliach sa zmena intenzity neprejavila signifikantne.

Ďalšie meranie bolo vykonané metódou BŠ. Na meranie sa využil komerčný merací systém Stresstech AST µScan 500. Aplikovaná magnetizačná frekvencia dosahovala 50 Hz a magnetizačné napätie do 3V. Vzorkovacia frekvencia bola nadstavená na 1 MHz.

Touto metódou mohli byť zmerané jedine magnetické materiály. Z tohto dôvodu nebola metóda BŠ aplikovaná na austenitickú oceľ NF709.

Ako už bolo spomínané, materiál, ktorý je popísaný najväčšou obálkou obsahuje najmenšie množstvo reziduálneho napätia. Podľa obrázku 9 najmenej reziduálneho napätia obsahujú disperznými časticami spevnené ocele ODS EUROFER a MA956 a nasleduje FM oceľ EUROFER97.



Obr. 9 - Obálky BŠ pre EUROFER97, MA956 a ODS EUROFER

8. Zhodnotenie a záver

Teoretický predpoklad o vplyve He na rôzne typy ocelí sa potvrdil meraniami pomocou PAS LT. Na austenitickú oceľ mal He veľký vplyv, ktorý sa prejavil spevnením materiálu a tak znížením intenzity pozitrónov zanihilovaných v defektoch. Na FM oceľ mala implantácia menší spevňujúci účinok. Častice

hélia len veľmi málo spevňujú alebo inak ovplyvňujú štruktúru ODS ocelí. Táto vlastnosť je pravdepodobne spôsobená zachytením He na časticiach oxidov rozptýlených v matrici a nie v dislokáciach a hraniciach zŕn. V základnom aj implantovanom stave mala oceľ EUROFER97 najmenšie defekty. Za ňou nasleduje NF709 a ODS ocele. Najmenšie množstvo defektov v základnom stave mali ODS ocele. V implantovanom austenitická oceľ.

Metóda BŠ preukázala ODS ocele za materiály s menším množstvom reziduálneho napätia ako FM oceľ EUROFER97.

Každá zo skúmaných ocelí má perspektívu uplatniť sa ako konštrukčný materiál pre komponenty štvrtej generácie jadrových reaktorov ako aj pre fúzny reaktor. Každá z nich má svoje výnimočné vlastnosti a parametre. ODS ocele dokážu vystáť teploty blízke 1100°C, EUROFER97 je charakterizovaný nízkou hladinou aktivity a NF709 je odolná voči tečeniu a korózii pri vysokých teplotách.

9. Literatura

[1] T. Sourmail, H.K.D.H. Bhadeshia, Microstructural Evolution in Two Variants of NF709 at 1023 and 1073 K, Metallurgical and materials transactions A, Vol. 36a, 2005.

[2] A. Lopatkin, V. Muratov, Activation analysis of ITER blanket first wall, Fusion Engineering and Design, Vol. 42, pp.349-358, 1998.

[3] S. Ukai, M. Harada, J. Nucl. Mater., Alloying Design of Oxide Dispersion Strengthened Ferritic Steel for Long Life FBRs Core Materials, Vol. 204, pp. 65–73, 1993.

[4] D.K. Mukhopadhyay, F.H. Froes, D.S. Gelles, Development of oxide dispersion strengthened ferritic steels for fusion, J. Nucl. Mater. B, Vol. 258–263, pp. 1209–1215, 1998.

[5] G. R. Romanoski, L.L. Snead, R.L. Klueh, D.T. Hoelzer, Development of an oxide dispersion strengthened, reduced-activation steel for fusion energy**,** J. Nucl. Mater. A, Vol. 283–287, pp. 642–646, 2000.

[6] R. Schaeublin, T. Leguey, P. Spätig, N. Baluc, M. Victoria, Microstructure and mechanical properties of two ODS ferritic/martensitic steels, J. Nucl. Mater., Vol. 307–311, pp. 778–782, 2002.

[7] A.Czyrska-Filemonowicz, D.Clemens, W.J.Quadakkers, The effect of high temperature exposure on the structure and oxidation behaviour of mechanically alloyed ferritic ODS alloys, J. Mater. Process. Technol., Vol.53, pp. 93-100, 1995.

[8] B. Dubiel, M. Wrobel, W. Osuch, A. Zielifiska-Lipiec, P.J. Ennis, D. Schwarze, A. Czyrska-Filemonowicz, Proc. of VIII Conference on Electron Microscopy of Solid State, Wroclaw-Szklarska Poreba, Poland, S.Gorczyca et al (eds), 255, April 1993.

[9] P.Krautwasser, A.Czyrska-Filemonowicz, M.Widera, F.Carsughi, Thermal stability of dispersoids in ferritic oxide-dispersion-strengthened alloys, Materials Science and Engineering A, Vol. 177, pp.199-208, 1994.

[10] H. Cama, T.A. Hughes; Proc. of VIII Conference on Electron Microscopy of Solid State, Wroclaw-Szklarska Poreba, Poland, S.Gorczyca et al (eds), 276, April 1993.

[11] I. Bartošová, Research methods applied on materials for the new generation of nuclear reactors, Diplomová práca, 2012

[12] R. Lindau, A. Möslang, D. Preininger, M. Rieth, Influence of helium on impact properties of reducedactivation ferritic/martensitic Cr-steels, J. Nucl. Mater., Vol.271-272, pp.450-454, 1999.

[13] R. L. KIueh, D. J. Alexander, Neutron irradiation effect on the ductile-brittle transition of ferritic - martensitic steel, Metals and Ceramics Division, Oak Ridge National Laboratory, 2003.

[14] K. Natesan, et al., Preliminary Materials Selection Issues for the New Generation Nuclear Plant Reactor Pressure Vessel. Laboratory report. Chicago: Argonne national laboratory,ANL/EXT-06/45, 2006

URČOVANIE RADIAČNÝCH PARAMETROV PRI LIKVIDÁCII JADROVÝCH REAKTOROV

Amine Bouhaddane
Ústav jadrového a fyzikálneho inžinierstva, FEI, STU, Bratislava

Abstrakt

Príspevok popisuje problematiku stanovovania inventáru rádioaktívnych izotopov likvidovaných jadrových reaktorov. Súčasťou obsahu je rozbor výpočtových metód použitých vo svete. Osobitná časť sa venuje popisu výpočtu za pomoci transportného kódu MCNP5. Na túto kapitolu nadväzuje konkrétny príklad a to výpočet indukovanej aktivity tieniacich kaziet reaktora VVER-440/V230 jadrovej elektrárne (JE) V1 v Jaslovských Bohuniciach.

1. Úvod

Od fukušimských udalostí sa vo svete kladie mimoriadne vysoký dôraz na bezpečnosť jadrovej energetiky. V rámci jadrovej bezpečnosti je nutné uvažovať nielen o dizajne nových jadrových zdrojov a o prevádzke súčasných jadrových blokov, ale aj o vhodnej stratégii záverečnej časti mierového využívania jadrovej energie. Jej optimálna realizácia by mala viesť k bezpečnej a efektívnej likvidácii jadrových elektrární, ktoré sú alebo budú vyraďované. Na Slovensku sú vo fáze vyraďovania jadrové elektrárne A1 a V1 v lokalite Jaslovské Bohunice. Vyraďovanie JE A1 je špecifické vzhľadom na odstavenie reaktora kvôli havárii v primárnom okruhu. Aj preto sa budem venovať bližšie stanovovaniu radiačných parametrov pri likvidácii reaktora typu VVER-440/V230 (JE V1).

2. Inventár rádioaktívnych izotopov v odstavenej jadrovej elektrárni

V priebehu prevádzky jadrového reaktora vznikajú tri základné kategórie rádionuklidov, ktoré pochádzajú z rôznych fyzikálnych procesov:

1. **Štiepne produkty**, ktoré vznikajú štiepením jadier paliva neutrónmi, sú to vysokoaktívne nuklidy a ich polčas premeny je od niekoľkých sekúnd až po tisícky rokov.
2. **Transurány**, najmä plutónium a vyššie aktinoidy (Am, Cm), ktoré vznikajú postupným záchytom neutrónov jadrami paliva a ich následnými premenami, pričom najčastejším východiskovým nuklidom je ^{238}U.
3. **Produkty aktivácie** (označované ako indukovaná aktivita) t.j. rádionuklidy, ktoré vznikajú interakciou neutrónov s neaktívnymi nuklidmi chladiva, moderátora a konštrukčných materiálov reaktora. Väčšinou ide o jadrové reakcie typu (n, γ), (n, 2n), (n, p) a (n, α). Produkty aktivácie sa následne premieňajú na stabilné nuklidy premenou beta, ktorá je často sprevádzaná aj žiarením gama [1].

Po ukončení prevádzky reaktora a vytiahnutí paliva prispievajú k inventáru aktivity dve kategórie rádionuklidov: aktivačné produkty viazané v konštrukčných materiáloch reaktora a rádionuklidy z kontaminácie materiálov, ktoré predstavujú aktivované korózne a erózne produkty unášané chladivom, rozptýlené častice paliva a štiepne produkty unikajúce cez netesnosti pokrytia paliva usadzujúce sa na povrchu komponentov primárneho okruhu.

Rádiologická charakteristika jadrového zariadenia je výsledkom procesu kontaminácie a aktivácie materiálov. Pre reaktory, v ktorých sa počas ich prevádzky nevyskytla žiadna havária, je principiálnou zložkou inventáru rádioaktivity z hľadiska vyraďovania reaktora aktivácia jeho konštrukčných materiálov. Táto rádioaktivita sa označuje aj ako indukovaná aktivita. Produkty aktivácie sú lokalizované a viazané v materiáloch nachádzajúcich sa v oblasti aktívnej zóny reaktora a jej okolia ožiareného neutrónmi.

Materiály aktivované neutrónmi sú teda konštrukčné materiály vo vnútri tlakovej nádoby reaktora, ale aj v oblastiach tepelného tienenia nádoby a biologickej ochrany reaktora tvorenej železobetónovou vrstvou. Zo štúdia aktivácie konštrukčných materiálov reaktora možno odvodiť nasledujúce hlavné aktivačné produkty:

- ocele: Fe-55, Ni-59, Co-60, Ni-63, Mo-93, Nb-94, Ag-108m,
- betón: Cl-36, Ca-41, Fe-55, Ni-59, Co-60, Ni-63, Eu-152, Eu-154, Eu-155 [1].

3. Postup pri výpočte indukovanej aktivity

Štandardným postupom je najprv uskutočniť výpočet hustoty toku neutrónov a následne výpočet indukovanej aktivity. Takto získané výsledky sa overujú meraniami dávkového príkonu a aktivačnou analýzou vzoriek konštrukčných materiálov reaktora. Prvotnými vstupnými údajmi pre výpočtové stanovenie indukovanej aktivity reaktora sú: prevádzková história reaktora (dĺžka trvania kampaní a odstávok, kartogramy zavážok), geometrické a materiálové usporiadanie a chemické zloženie použitých konštrukčných materiálov. Geometriu a rozmery pre vytvorenie modelu je potrebné vyhľadať v technickej dokumentácii daného reaktora. Prevádzková história reaktora je súčasťou archivovanej dokumentácie jadrovej elektrárne (vyhodnotenia prevádzkových charakteristík AZ reaktora pre každý blok a kampaň). Zadávanie chemického zloženia materiálov je najkomplikovanejšie pri palive a moderátore. Pre palivo je nutné uvážiť obohatenie použitých palivových článkov, mieru vyhorenia (a s tým súvisiace rádionuklidové zloženie paliva), výkonovú hladinu, ale hlavne citlivosť výpočtu na rozloženie uvedených parametrov po prútikoch, kazetách alebo možnosť použitia stredných hodnôt. V moderátore sa podľa prevádzkových charakteristík určuje koncentrácia kyseliny boritej a na základe teploty a tlaku sa zadáva príslušná hodnota hustoty chladiva (moderátora).

Na základe znalosti týchto údajov sa pomocou špeciálnych výpočtových kódov určuje priestorové a energetické rozloženie hustoty toku neutrónov. Pre uvedené výpočty sa používajú deterministické (ANISN - jednorozmerný, DOT/DORT - dvojrozmerný alebo TORT - trojrozmerný) alebo stochastické kódy (Monte Carlo - MCBEND, MORSE, KENO, MCNP a TRIPOLI). Výsledky spektier hustoty toku neutrónov potom vstupujú do kódov pre výpočet aktivácie materiálov reaktora (napr. modul ORIGEN v rámci SCALE) vo vybraných oblastiach, resp. konštrukčných materiáloch. Koncovým výstupom výpočtu je celková indukovaná aktivita jednotlivých konštrukčných častí reaktora závislá od hmotnosti danej časti a koncentrácie rodičovských prvkov, ktoré sa počas prevádzky reaktora aktivujú.

Základnou rovnicou pre výpočet hmotnostnej indukovanej aktivity *i*-teho rádionuklidu je:

$$A_i = (1 - e^{-\lambda_i \tau}) n_i \int_0^{\infty} \varphi(E) \sigma_i(E) dE . e^{-\lambda_i t} \qquad (1)$$

kde λ_i je konštanta premeny *i*-teho rádionuklidu, τ je doba aktivácie, t doba počas, ktorej dochádza k rádioaktívnej premene, n_i je počet jadier absorbátora v jednotke hmotnosti, $\varphi(E)dE$ udáva hustotu toku neutrónov o energii v intervale $(E,E+dE)$ a $\sigma_i(E)$ je účinný prierez aktivácie daného nuklidu neutrónmi s energiou E. V nasledujúcej tabuľke je uvedený prehľad výpočtových kódov a ich aplikácie vo svete.

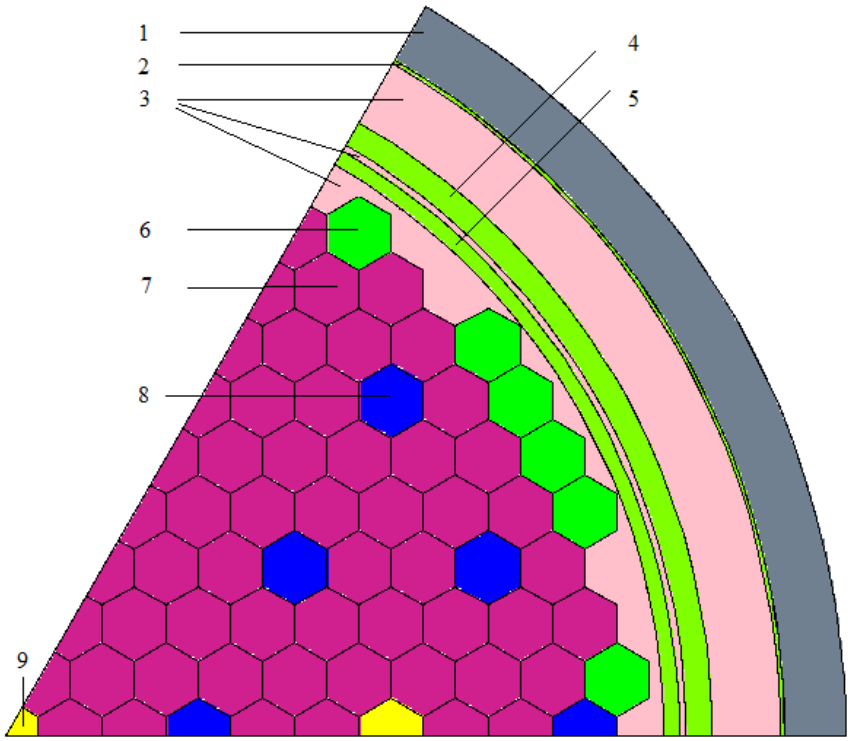
Krajina	**Reaktor – typ, elektrický výkon MW**	**Výpočtový kód**	**Využitie**
Arménsko	Metsamor – VVER 440	AKTIVACIA - 1	Výpočet indukovanej aktivity reaktora pomocou ANISN kódu a knižníc DLC – 23 / CASK
Belgicko	BR3 – PWR 10	DORT	Modelovania neutrónového toku a aktivácie vnútroreaktorových častí
		TRIPOLI 3.2	Výpočet aktivácie biologickej ochrany reaktora
Česká republika	Dukovany - VVER 440	ANISN	1-D hodnotenie neutrónového toku
		EASY-99 (FISPACT)	Výpočty aktivácie materiálov reaktora

Fínsko	Loviisa - VVER 440 Olkiluoto – BWR 735	ANISN, DORT	1-D a 2-D hodnotenie neutrónového toku
		ORIGEN-S	Výpočet indukovanej aktivity
Francúzsko	Marcoule G2, G3 – GCR 40	ANISN, APOLLO (1-D), TRIPOLI (2-D), DOTSYN (3-D)	Modelovanie neutrónového toku vnútroreaktorových častí
		EVOMAJ	Tvorba rádionuklidov v reaktoroch GCR
		DARWIN/PEPIN	Výpočtový kód aktivity indukovanej štiepnymi, fúznymi a spalačnými reakciami
Holandsko	Dodewaard – BWR 55	MCNP4A, KENO-Va	Výpočet transportu neutrónov na báze Monte Carlo
Japonsko	JPDR – BWR 15	ANISN, DORT	1-D a 2-D hodnotenie neutrónového toku
		ACTIV	Výpočet indukovanej aktivity
Južná Kórea	Kori 4 – PWR 900	DOT 4.3	2-D hodnotenie neutrónového toku
Kanada	NPD – CANDU 22	ANISN, WIMS	Rozloženie neutrónového toku
		ORIGEN	Rozloženie indukovanej aktivity
Ruská federácia	Mayak 156 – AV 1200	AKTIVACIA – 1	Výpočet indukovanej aktivity reaktora pomocou ANISN kódu a knižníc DLC – 23 / CASK
Slovenská republika	Jaslovské Bohunice - VVER 440	ORIGEN	Rozloženie indukovanej aktivity v reaktore
SRN	Obrigheim – PWR 357	TORT (3-D)	Rozloženie neutrónového toku
	Biblis A – PWR 1200	ANISN, DOT	Hodnotenie neutrónového toku
Švedsko	Oskarshmamn 2 – BWR 600	DORT	2-D modelovanie rozloženia neutrónového toku
Taliansko	Garigliano – BWR 160 Caorso – BWR 840 Latina – Magnox 260 Trino – PWR 270	DOT 3.5	2-D hodnotenie neutrónového toku v okolí AZ
		XSDRNPM	1-D hodnotenie neutrónového toku v oblastiach vzdialených od AZ
		ORIGEN-S v rámci kódu SCALE	Výpočty indukovanej aktivity reaktorov
USA	Trojan – PWR 1095 Rancho Seco – PWR 913 WNP-2 – BWR 1155 Yankee – PWR 167	ANISN, DORT	Rozloženie neutrónového toku
		ORIGEN2	Výpočet aktivácie
	Shippingport – PWR 72	MCNP	Výpočet transportu neutrónov na báze Monte Carlo
		REAC	Výpočet aktivácie
Veľká Británia	Berkeley – Magnox 140	MCBEND	Výpočet transportu neutrónov na báze Monte Carlo
	WAGR – AGR 40	ANISN	Výpočet neutrónového toku
		FISPIN	Výpočet aktivačných produktov

Tab. 1 - Prehľad výpočtových kódov a ich aplikácie vo svete **[1]-[5]**

4. Výpočtový kód MCNP5

Pre svoje výpočty som využíval kód MNCP5. MCNP (General Monte Carlo N-Particle Transport Code) je progresívny viacúčelový výpočtový kód, slúžiaci na výpočet transportu častíc (neutrónov, fotónov, elektrónov alebo ich kombinácií) stochastickou metódou Monte Carlo, vrátane možnosti výpočtu parametrov pre kritickosť systémov. MCNP5 (verzia 5 je z roku 2003) predstavuje všeobecný kód využívajúci spojité účinnoprierezné knižnice (na báze napr.: ENDF/B-VII, JENDL alebo JEFF), t.j. počítajúci s kontinuálnou energiou. Ďalšou výhodou je možnosť trojrozmerného modelovania zložitých geometrií za použitia korektných zjednodušení. V prípade symetrie modelovanej geometrie je možné dosiahnuť zjednodušenie výpočtu modelovaním len jednej symetrickej časti s využitím reflexných plôch. Celý kód je prepracovaný do ANSI štandardu Fortran 90. Obsahuje pridanú funkciu fyziky fotonukleárnych kolízii, počítanie v medzičasoch, vylepšenie grafov a iné. Je to časovo závislý transportný kód [6].



Obr. 1 - Horizontálny rez šestinou aktívnej zóny modelu reaktora VVER-440/V230 v programe MCNP5. 1 – tlaková nádoba reaktora (TNR), 2 – austenitický a silový návar výstelky TNR, 3 – chladivo, 4 – šachta reaktora, 5 – kôš aktívnej zóny, 6 – tieniaca kazeta (TK), 7 – palivová kazeta, 8 – kazeta automatickej ochrany, regulovania a kompenzácii (ARK), 9 – ARK 6. skupiny

Pre prácu s kódom MCNP je potrebné aby užívateľ vytvoril vstupný súbor, ktorý presne špecifikuje problém ako aj požadované výstupy. Tento súbor je následne čítaný a spracovávaný kódom MCNP. Potrebné špecifikácie problému vo vstupnom súbore:

- špecifikácia geometrie zadania,
- popis materiálov a výber knižníc účinných prierezov,
- umiestnenie a vlastnosti neutrónov, fotónov, elektrónov a ich zdroj,
- typ požadovaných výsledkov a rôzne techniky na zlepšenie presnosti [6].

Kód MCNP sa používa ako referenčný, t.j. slúži na verifikáciu výsledkov dosiahnutých za pomoci iných výpočtových kódov. Pomocou tohto výpočtového prostriedku možno počítať veličiny ako napr.: efektívny multiplikačný koeficient (k_{eff}), hustota toku neutrónov (φ) alebo reakčná rýchlosť (RR). Všetky hľadané veličiny sú normalizované (vztiahnuté) na jednu počiatočnú časticu (neutrón) okrem režimu KCODE, ktorý počíta na jeden štiepny neutrón.

5. Výpočet pre tieniace kazety

Tieniace kazety boli do reaktora JE V1 nainštalované (v roku 1985 na 2. bloku a 1992 na 1. bloku) za účelom ochrany tlakovej nádoby reaktora voči znižovaniu odolnosti proti krehkému lomu. Vonkajším tvarom sú zhodné s palivovými kazetami. Vykonal som výpočet pre prvý blok pre prvú kampaň po zavedení do reaktora. Sledoval som výťažky reakcií pre izotopy chrómu (50, 52, 53 a 54), mangánu (55), železa (54,56,57,58), kobaltu (59), niklu (58, 60, 61, 62, 64) a molybdénu (92, 94, 95, 96, 97, 98 a 100). Práve tieto nuklidy obsiahnuté v konštrukčnej oceli 08Ch18N10T sa najväčšou mierou podieľajú na vzniku hlavných aktivačných produktov, ktorými sú pre ocele: Fe-55, Ni-59, Co-60, Ni-63, Mo-93, Nb-94 a Ag-108m [5]. Zvolil som výťažky tých reakcií, ktoré sú pri energiách neutrónov v tlakovodnom reaktore najpravdepodobnejšie, akými sú: (n,γ), (n,p), (n,d), (n,t) a (n,α), naopak výpočet nezahŕňa reakcie napr.: (n,2n) alebo (n,n´p).

Výsledná merná aktivita na konci kampane trvajúcej 268,1 efektívnych dní bola stanovená na približne $3{,}9 \times 10^8$ GBq/t. Na tejto aktivite sa do značnej miery podieľajú krátkožijúce rádionuklidy. Pre účely vyraďovania má však zmysel zaoberať sa hlavne dlhožijúcimi rádionuklidmi. Vypočítané výsledky som porovnával s dostupnými kalkuláciami pre fínsku JE v Loviise [7] a ruskú JE Kola [8]. Išlo o prvý komplexný výpočtový odhad inventáru rádionuklidov nachádzajúcich sa v RAO pri vyraďovaní reaktora VVER-440. Bol uskutočnený v rokoch 1988 až 1989 vo výskumnom centre VTT energy (Nuclear Engineering Laboratory of the Technical Research Center of Finland) [7].

^{51}Cr ($T_{1/2}$ = 27,7025 dní) je významný počas prvých mesiacov po odstavení reaktora. Tento rádionuklid vzniká najmä neutrónovým záchytom na stabilnom izotope ^{50}Cr, ale aj reakciou (n,α) na ^{54}Fe avšak s o tri rády nižším výťažkom. Podlieha rádioaktívnej premene v podobe záchytu elektrónu a mení sa na stabilný ^{51}V. Vypočítaná hodnota mernej aktivity $A_{Cr51}^{*} = 1{,}29 \times 10^8$ GBq/t sa blíži hodnote z výpočtov pre JE v Loviise, v ktorej je pre strednú špecifickú aktivitu ^{51}Cr v tieniacich kazetách uvedená hodnota 1,95E+07 GBq/t.

Ďalším dôležitým rádionuklidom v mojom výpočte je ^{55}Fe ($T_{1/2}$ = 2,73 r) nasledovaný ^{58}Co ($T_{1/2}$ = 70,86 d) s mernou hmotnostnou aktivitou rádovo 10^7 resp. 10^6 GBq/t. Tieto hodnoty sú opäť v dobrej zhode s údajmi z [7]. **^{55}Fe** je rádionuklid produkovaný najčastejšie reakciou ^{54}Fe(n,γ)^{55}Fe s účinným prierezom interakcie 2,25b ($2{,}25 \times 10^{-24}$ cm^2). Rozpadá sa elektrónovým záchytom (slabá emisia röntgenového žiarenia) na stabilný ^{55}Mn. ^{55}Fe je hlavným krátkožijúcim komponentom inventáru rádioaktivity po odstavení reaktora. Ide však o ťažko detekovateľný rádionuklid, ktorého meranie sa môže prekrývať s ľahko nameratelným ^{60}Co. Je možné ho merať v laboratórnych podmienkach RTG spektrometriou po chemickej separácii [9]. Z ďalších rádionuklidov sa vypočítané hodnoty približovali predpokladaným aj pre ^{58}Co (70,86 d), ^{59}Fe (44,503 d), ^{54}Mn (312,3 d), ^{60}Co (5,2714 r) a ^{63}Ni (100,1 r). Z dlhodobejšieho hľadiska budú mať značný vplyv na nakladanie s TK ^{60}Co ($T_{1/2}$ = 5,2714 r) v horizonte 10 až 50 rokov a dlhožijúci ^{63}Ni (100,1 r) počas celého vyraďovania.

Izotop	**Loviisa** A^* [GBq/t]	**JE V-1** A^* [GBq/t]
^{51}Cr	1,95E+07	1,29E+08
^{55}Fe	1,00E+07	1,63E+07
^{58}Co	2,69E+06	4,10E+06
^{59}Fe	4,68E+05	2,69E+06
^{54}Mn	1,55E+06	1,73E+06
^{60}Co	1,53E+06	1,36E+06
^{63}Ni	2,50E+05	2,97E+05

Tab. 2 - Porovnanie vypočítaných merných aktivít vybraných rádionuklidov

6. Záver

V príspevku som sa zaoberal určovaním radiačných parametrov materiálov likvidovaných jadrových reaktorov. Nachádzajú sa tu kapitoly popisujúce výpočtové metodiky vo svete, ako aj výpočet pomocou kódu MCNP5 uskutočnený na Ústave jadrového a fyzikálneho inžinierstva FEI STU v Bratislave. Ako príklad uvádzam výpočet indukovanej aktivity tieniacich kaziet reaktora VVER-440/V230 v JE V1 v Jaslovských Bohuniciach. Spracoval som údaje z 13. kampane 1. bloku, t.j. prvej kampane s nainštalovanými tieniacimi kazetami. Na základe literatúry publikovanej v danej problematike som sledoval rádionuklidy, ktoré majú najväčší význam pri vyraďovaní jadrových elektrární. Výstupmi z MCNP5 výpočtu boli výťažky neutrónových reakcií s nuklidmi konštrukčnej ocele 08Ch18N10T, z ktorej sú tieniace kazety vyhotovené. Za pomoci prevádzkových charakteristík som určil mernú hmotnostnú aktivitu jednotlivých rádionuklidov s ohľadom na definované okrajové podmienky. Výsledky výpočtu sú uvedené v tabuľkách a grafoch. Pre analýzu výsledkov som použil údaje z podobných výpočtov vo Fínsku (JE Loviisa, [7]) a v Rusku (JE Kola, [8]). Väčšina vypočítaných hodnôt sa rádovo zhoduje. Rozdiely sú spôsobené predovšetkým rozdielnymi okrajovými podmienkami výpočtu.

V súčasnosti rastie dôležitosť podobných analýz s ohľadom na veľké množstvo JE vo svete, ktoré sa blížia k hranici svojej životnosti a budú postupne odstavované a vyraďované. Použitá metóda sa javí ako vhodný nástroj pre výpočet indukovanej aktivity. Avšak je nutné verifikovať získané výsledky pomocou rôznych výpočtových prostriedkov a validovať ich priamym meraním.

7. Bibliografia

[1] ATOYAN V.A., BOLBEROV A.A., BRAGIN G.A. Kompleksnoe obsledovanie 1-vo energobloka Armyanskoj AES posle preskraščenia ekspluatacii. *Atomnaja Energia*, 1992, vol. 72, no.4, pp.345-353.

[2] EZURE H. Survey of estimation methods for radioactive inventory in nuclear reactors to be decommissioned. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 1998, vol.35, no.5, pp. 379-391.

[3] *NEA NSC Document: Computing radiation dose to reactor pressure vessel and internals – State of the art report*. [online]. Paris: Nuclear Energy Agency, 1996. [cit. 2005-07-08]. Dostupné na internete: http://www.nea.fr/html/science/docs/1996/nsc-doc96-05.pdf

[4] *Radiological characterization of shut down nuclear reactors for decommissioning purpose*s *: IAEA Technical Report Series No.389*. Vienna: International Atomic Energy Agency, 1998. 184 s. ISBN 92-0-103198-X.

[5] DECONTA, a.s. Plán II. etapy vyraďovania JE A-1. Trnava, 2007.

[6] X-5 Monte Carlo Team. *MCNP – A General N – Particle Transport Code, Version 5 – Volume II: User´s Guide.* Los Alamos, USA : Los Alamos National Laboratory, April 24, 2003 (Revised 10/3/05). LA-CP-03-0245.

[7] ANTILLA, M. et al. *Activity Inventory of the Activated Decommissioning Waste of the Loviisa Nuclear Power Plant, Rep. YJT-89-02.* s.l. : Nuclear Waste Commission of Finnish Power Companies, 1989.

[8] ENGELMANN, H.J. and MELNIKOV, N.N. *Decommissioning Plans of Nuclear Facilities in the Regions of Murmansk and Archangelsk in Northwest Russia.* s.l. : Kontec Gesellschaft für Technische Kommunikation mbH, 1997.

[9] IAEA. *Radiological Characterization of Shut Down Nuclear Reactors for Decommissioning Purposes.* Vienna : s.n., October 1998. ISBN 92–0–103198–X.

STRUČNÝ PREHĽAD PROBLEMATIKY DEMONTÁŽE VEĽKÝCH KOMPONENTOV V PROCESE VYRAĎOVANIA JADROVÝCH ELEKTRÁRNÍ Z PREVÁDZKY

Martin Hornáček, Vladimír Nečas
Ústav jadrového a fyzikálneho inžinierstva FEI STU Bratislava

Abstrakt

Proces vyraďovania jadrových elektrární (JE) z prevádzky je vzhľadom na veľkosť a zložitosť vyraďovaných zariadení náročný po viacerých stránkach (ekonomická, personálna, technická, materiálová). Zároveň dôsledkom realizácie vyraďovacích činností dochádza k tvorbe takých materiálov, ktoré sa pri bežnej prevádzke JE nevyskytujú, pričom zvláštnu skupinu predstavujú zariadenia značných objemov a hmotností, ktorých úroveň aktivity v dôsledku kontaminácie alebo aktivácie vysoko prevyšuje úroveň prírodného pozadia. V prípade štandardnej prevádzky JE ide predovšetkým o zariadenia primárneho okruhu, t.j. teleso tlakovej nádoby reaktora, vnútroreaktorové časti, potrubie primárneho okruhu a parogenerátory. Cieľom príspevku je poskytnutie základného prehľadu o problematike demontáže týchto komponentov.

1. Úvod

Problematika vyraďovania JE z prevádzky v posledných rokoch narastá na významnosti, a to z dôvodu, že značné množstvo prevádzkovaných reaktorov dosahuje svoju projektovanú životnosť, prípadne ju už dosiahlo (najviac v súčasnosti prevádzkovaných reaktorov má vek v rozmedzí od 25 do 40 rokov). Úspešné zvládnutie procesu vyraďovania si vyžaduje zvládnutie všetkých cieľov stanovených etáp, a to za súčasného dodržania princípu ALARA. Jednu z najťažších a najzložitejších úloh v tomto procese predstavuje demontáž veľkých komponentov, kde okrem ich značnej hmotnosti a objemu treba prihliadať aj na ich zvýšenú úroveň aktivity. Príspevok sa zameriava na proces demontáže tlakovej nádoby reaktora (TNR) a prístupu jednotlivých štátov.

2. Súčasný stav problematiky

V súčasnosti je vo svete v rôznych etapách procesu vyraďovania niekoľko desiatok energetických reaktorov. Z dôvodu prehľadnosti boli vybrané len tlakovodné reaktory (typ PWR) s celkovým elektrickým výkonom 150 MW a vyšším. Podľa [1] je v štádiu vyraďovania 29 takýchto reaktorov, ktoré sú v nasledujúcej tabuľke uvedené spolu s plánovanými, resp. realizovanými stratégiami demontáže TNR.
Vo všeobecnosti možno spôsoby demontáže TNR rozdeliť na 2 skupiny:

- fragmentácia na jednotlivé časti, ktoré sú následne predmetom ďalšieho nakladania,
- demontáž ako 1 kus („one-piece removal“) a následný transport do príslušného skladovacieho, resp. úložného systému.

Voľba príslušnej stratégie demontáže závisí od množstva faktorov, ako napr. typ a výkon reaktora, dĺžka prevádzky, materiálové zloženie TNR, dostupnosť skladovacích, resp. úložných kapacít, dostupnosť príslušných fragmentačných technológií, dostupnosť technológií spracovania a úpravy RAO (zvlášť pri fragmentácii dochádza k tvorbe sekundárnych RAO rôzneho druhu a množstva, s ktorými je potrebné ďalej nakladať), možnosti transportu veľkých komponentov či ekonomické hľadisko. Je teda zrejmé, že voľba spôsobu demontáže TNR vo významnej miere závisí od daných miestnych pomerov. Uvedené skutočnosti sú zrejmé aj z Tab. 1, kde je viditeľná aplikácia rôznych prístupov k problematike demontáže, a to aj v rámci daného štátu.

Štát	Názov	Výkon [MWe]	Prevádzka	Stratégia demontáže TNR	Stav realizácie	Poznámka
Arménsko	Metsamor	408	1976-1989	fragmentácia	plánovaná	
Bulharsko	Kozloduj-1	440	1974-2002	neuvedené		odložená demontáž
	Kozloduj-2	440	1975-2002	neuvedené		odložená demontáž
	Kozloduj-3	440	1981-2006	neuvedené		odložená demontáž
	Kozloduj-4	440	1982-2006	neuvedené		odložená demontáž
Francúzsko	Chooz-A	320	1967-1991	fragmentácia	plán do 2013	
Nemecko	Greifswald-1	440	1973-1990	demontáž ako 1 kus	realizované 2007	
	Greifswald-2	440	1974-1990	demontáž ako 1 kus	realizované 2007	
	Greifswald-3	440	1977-1990	demontáž ako 1 kus	realizované 2009	
	Greifswald-4	440	1979-1990	demontáž ako 1 kus	realizované 2009	
	Greifswald-5	440	1989-1989	demontáž ako 1 kus	realizované 2003	
	Mülheim-Kärlich	1302	1986-1988	fragmentácia	plán do 2021	seizmicita podkladu
	Obrigheim	357	1969-2005	fragmentácia	realizuje sa	
	Stade	672	1972-2003	fragmentácia	realizované 2010	
Rusko	Novovoronež-1	210	1964-1988	neuvedené		odložená demontáž
	Novovoronež-2	365	1969-1990	neuvedené		odložená demontáž
Slovenská republika	Bohunice-1	440	1978-2006	demontáž ako 1 kus	plán do 2025	
	Bohunice-2	440	1980-2008	demontáž ako 1 kus	plán do 2025	
Španielsko	José Cabrera	150	1969-2006	fragmentácia	plán do 2016	
Taliansko	Enrico Fermi (Trino)	270	1965-1990	fragmentácia	plánovaná	dekontaminácia PO

USA	Indian Point-1	277	1962-1974	fragmentáci a	začiatok 2008	
	San Onofre-1	456	1967-1992	demontáž ako 1 kus	realizovan é 2002	
	Haddam Neck	603	1967-1996	demontáž ako 1 kus	realizovan é 2003	
	Yankee NPS	180	1960-1991	demontáž ako 1 kus	realizovan é 1997	transport 1100 míľ
	Zion -1	1085	1973-1998	fragmentáci a	plán do 2014	
	Zion -2	1085	1973-1998	fragmentáci a	plán do 2014	
	Maine Yankee	900	1972-1997	demontáž ako 1 kus	realizovan é 2002	
	Rancho Seco-1	917	1974-1989	fragmentáci a	ukončené 2008/2009	
	Three Mile Island-2	959	1978-1979			po havárii
	Trojan	1155	1975-1992	demontáž ako 1 kus	realizovan é 1999	

Tab. 1 - Vyraďované bloky a stratégia demontáže TNR – celkový prehľad [1] - [29]

Pri plánovaných projektoch demontáže sú údaje prevzaté z koncepčných plánov, resp. stratégií, je preto možné, že pri samotnej realizácii môže dôjsť k určitým zmenám.

3. Možnosti realizácie demontáže pre reaktory typu VVER 440

Vzhľadom na situáciu vo svete možno skonštatovať, že projekt kompletnej demontáže TNR a vnútroreaktorových častí (šachta reaktora, blok ochranných rúr, kôš aktívnej zóny a dno šachty) bol z pohľadu vyraďovania JE s reaktormi typu VVER 440 úspešne zrealizovaný v rámci vyraďovania JE Greifswald, Nemecko. Bloky 1-4 obsahovali reaktory typu VVER 440/230, 5. blok obsahoval reaktor typu VVER 440/213 (podobne ako bloky 6-8, ktoré boli vo výstavbe). Použitie uvedených typov je charakteristické pre región strednej a východnej Európy, analýza poznatkov získaných pri vyraďovaní JE Greifswald je preto kľúčová na zvládnutie „vlastných“ projektov vyraďovania. Dôkazom toho je aj spoluúčasť spoločnosti EWN (Energiewerke Nord) na vypracovaní koncepčného plánu vyraďovania JE V1 [15]. V nasledujúcej časti bude preto v stručnosti popísaný projekt vyraďovania JE Greifswald. Zároveň bude pre ilustráciu uvedený aj druhý prístup k demontáži – fragmentácia, a to na príklade JE Stade, Nemecko (typ PWR, 672 MWe).

3.1. Demontáž tlakovej nádoby reaktora a vnútroreaktorových častí - JE Greifswald

Po vyhodnotení uskutočnenej rádiologickej charakterizácie sa pristúpilo k analýze alternatívy demontáže TNR ako 1 kus, resp. k jej fragmentácii. Vyhodnotenie a porovnanie modelových variantov demontáže TNR a vnútroreaktorových častí (5. blok – menej ako 1 rok prevádzky) prinieslo nasledovné výsledky (vztiahnuté k jednotlivým činnostiam variantu fragmentácie všetkých komponentov – hodnota 1) [9]:

- dĺžka trvania projekčnej etapy
  - inžinierska činnosť 0,45-0,65
  - príprava 0,35- 0,55
  - realizácia 0,08-0,12
- nakladanie s odpadmi (potrebné skladovacie kapacity) 0,5-0,7

- kolektívna dávková záťaž 0,15-0,2
- náklady 0,4-0,55.

Na základe uvedených skutočností bolo rozhodnuté realizovať variant demontáže TNR ako 1 kus, a to najskôr pre 5. blok (najkratšia doba prevádzky a teda aj najnižšia miera aktivácie v porovnaní s blokmi 1-4). Uvedená stratégia zahrňovala vybratie vnútroreaktorových častí a ich umiestnenie do špeciálnych skladovacích kontajnerov, demontáž potrubí primárneho okruhu z TNR, uzatvorenie nátrubkov a pokrytie TNR ochranným náterom, následný transport TNR v rámci reaktorovej sály a upevnenie oceľového tieniaceho valca v mieste aktívnej zóny, náklon a umiestnenie TNR na transportné zariadenie, transport do dočasného skladu vybudovaného v lokalite (Zwischenlager Nord – ZLN). Skúsenosti, získané z analýzy variantov i samotnej realizácie boli aplikované v prípade demontáže TNR blokov 1-4 a modifikované na jednotlivé bloky nasledovne [9]:

Bloky 3 a 4:
- umiestnenie bloku ochranných rúr a koša aktívnej zóny do príslušných skladovacích kontajnerov a ich transport do ZLN
- činnosti s TNR podobné ako v prípade 5. bloku,
- umiestnenie šachty reaktora a dna šachty do TNR a jej následné uzatvorenie
- transport do ZLN.

Bloky 1 a 2:
- fragmentácia všetkých vnútrotreaktorových častí a ich transport v kontajneroch do ZLN
    - kôš aktívnej zóny, blok ochranných rúr, dno šachty fragmentované pod vodou – realizované 10/1999 – 10/2002
    - šachta reaktora fragmentovaná na vzduchu – realizované 10/1999 – 10/2002.
- ostatné činnosti s TNR analogické ako v predošlých prípadoch.

Je potrebné zdôrazniť, že v rámci princípu ALARA boli činnosti realizované v čo najväčšej miere diaľkovo, príp. s najmenšou dobou pobytu pracovníkov.

3.2. Demontáž tlakovej nádoby reaktora – JE Stade

V prípade vyraďovania JE Stade bol uskutočnený odlišný variant – fragmentácia TNR, ktorej realizácia je v nasledujúcej podkapitole v stručnosti popísaná [10], [25].

Projekt bol vykonaný konzorciom spoločností Siempelkamp NIS Ingenieurgesellschaft GmbH a E.ON Anlagenservice GmbH.

Pri plánovaní samotnej demontáže sa uvažovalo s fragmentáciou TNR na 172 častí, pričom každú z nich bolo potrebné charakterizovať po rádiologickej stránke. Ďalej bolo rozhodnuté, že fragmentované časti z okolia aktívnej zóny budú umiestňované do oceľových skladovacích kontajnerov (MOSAIK), ostatné časti budú ukladané do oceľových kontajnerov s prídavným betónovým tienením (KONRAD) určených do úložiska.

Pred začiatkom fragmentácie TNR bolo potrebné odstrániť prírubu a priľahlé časti, aby bolo možné pomocou žeriavu premiestniť TNR zo šachty do bývalého bazénu skladovania vyhoreného jadrového paliva, kde sa pristúpilo k samotnej fragmentácii. Odstránenie príruby a priľahlých častí, ako aj fragmentácia TNR, bolo realizované najmä tepelnými deliacimi technológiami a metódami mechanickej demontáže, a to na vzduchu.

Podobne ako v prípade JE Greifswald boli i tu jednotlivé činnosti realizované v čo najväčšej miere diaľkovo, resp. s limitovanou dobou pobytu pracovníkov.

Reaktor pre JE Stade je typu PWR západnej koncepcie, teda s dizajnom mierne odlišným od typu VVER. Realizácia uvedeného projektu a získané skúsenosti však demonštrujú aplikovateľnosť tejto stratégie aj pre reaktory typu VVER po príslušných modifikáciách.

4. Záver

Predmetom príspevku bolo poskytnutie základného prehľadu o súčasnom stave problematiky demontáže veľkých komponentov v procese vyraďovania JE z prevádzky. Je zrejmé, že jednotlivé stratégie demontáže už boli v praxi úspešne realizované, čo poukazuje na ich aplikovateľnosť v prípade prebiehajúcich alebo budúcich projektov vyraďovania. Príspevok tiež v stručnosti opísal uskutočnené postupy demontáže TNR, pričom bol dôraz kladený na vyraďovanie JE s reaktormi typu VVER 440, ktoré sa nachádzajú v SR, kde sa podľa Koncepčného plánu vyraďovania JE V1 z prevádzky uvažuje s aplikáciou stratégie ako v prípade JE Greifswald. Realizácia uvedenej stratégie si však vyžaduje vybudovanie Integrálneho skladu rádioaktívnych odpadov, ktorý je v súčasnosti v štádiu príprav.

5. Poďakovanie

Tento projekt bol čiastočne podporený Vedeckou grantovou agentúrou MŠVVaŠ a SAV grantom VEGA 1/0685/09 a MŠVVaŠ Slovenskej republiky nariadením číslo CD-2009-36909/39460-1:11 v rámci projektu CONRELMAT.

6. Literatúra

[1] Nuclear Power Reactors in the World. Reference Data Series No. 2. Vienna : IAEA, 2012. ISBN 978-92-0-132310-1.

[2] Decommissioning costs of WWER-440 nuclear power plants. IAEA-TECDOC-1322. Vienna: IAEA, 2002. ISBN 92-0-117802-6.

[3] GHAZARYAN, K.: PROGRESS IN PLANNING OF ARMENIAN NPP DECOMMISSIONING. The 5th Annual Forum for Regulators and Operators in the Field of Decommissioning, IAEA, Vienna 1-3 November 2011.

[4] Armenian Power Sector 2006 Least Cost Generation Plan. [online]. [cit. 19.11.2012]. Dostupné na: <http://pdf.usaid.gov/pdf_docs/PDACR508.pdf>

[5] IAEA Power Reactor Information System [online]. [cit. 20.11.2012]. Dostupné na: < http://www.iaea.org/PRIS/CountryStatistics/CountryStatisticsLandingPage.aspx>

[6] Bulgaria Can't Afford to Dismantle Shut Nuclear Reactors. [online]. [cit.: 19.11.2012]. Dostupné na: <http://www.novinite.com/view_news.php?id=126091>

[7] Chooz A Dismantling project. IAEA 23rd March 2011. [online]. [cit.: 20.11.2012]. Dostupné na : <http://www.iaea.org/OurWork/ST/NE/NEFW/WTS-Networks/IDN/idnfiles/ChoozA-DismantlingProject.pdf>

[8] ACKERMANN, L.: Overview on decommissioning of nuclear facilities in Germany. In *Annual Forum for Regulators and Operators in the Field of Decommmissioning: International Decommissioning Network (IDN) and other Major Decommissioning Initiatives (IAEA's Headquaters in Vienna, November 01-03, 2011)*

[9] BORCHARDT, R.: Dismantling of the Reactors on the Greifswald Nuclear Power Plant (KGR) Site. [online]. [cit.: 21.11.2012]. Dostupné na: <http://www.iaea.org/OurWork/ST/NE/NEFW/WTS-Networks/IDN/idnfiles/CuttingTechniqueWkp-Germany2011/EWN_Dismantling_of_the_reactors_on_the_Greifswald_Nuclear_Power_Plant_site.pdf>

[10] LOEB, A., STANKE, D., KEMP, L.: Decommissioning of the reactor pressure vessel and its peripheral facilities of the Nuclear Power Plant in Stade, Germany – 11100. In *WM2011 Conference, February 27-March 3, 2011, Phoenix, AZ.*

[11] KINZINGER, J.: Reaktordruckbehälter wird zerlegt. [online]. [cit.: 21.11.2012]. Dostupné na: <http://www.stimme.de/heilbronn/nachrichten/region/Reaktordruckbehaelter-wird-zerlegt;art16305,2522667>
[12] Mülheim-Kärlich: AKW-Abbau dauert bis 2021 - oder länger. [online]. [cit. 21.11.2012]. Dostupné na: <http://www.rhein-zeitung.de/regionales_artikel,-Muelheim-Kaerlich-AKW-Abbau-dauert-bis-2021-oder-laenger-_arid,487658.html>
[13] FILATOV, A.: COMPONENTS DISMANTLING AT NOVOVORONEZH UNITS 1, 2 SHUT DOWN FOR DECOMMISSIONING. [online]. [cit.:21.11.2012]. Dostupné na: <http://www.dysnai.org/Reports/2006/3.pdf>
[14] Stratégia záverečnej časti mierového využívania jadrovej energie v SR. Schválená PV MH SR, 25.10.2012.
[15] POLÁK, V., et al.: Koncepčný plán vyraďovania JE V1 z prevádzky. Projekt BIDSF B6.1. EWN, STM-Power, Trnava, 2006.
[16] MARTÍN, N., RODRÍGUEZ, M. Update on José Cabrera NPP Decommissioning. In *Proceedings of the ASME 2011 14th International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management ICEM2011 September 25-29, 2011, Reims, France.*
[17] SILVA, M. R.: JOSÉ CABRERA NPP DISMANTLING AND DECOMMISSIONING PROJECT. [online]. [cit.: 20.11.2012]. Dostupné na: <http://www.iaea.org/OurWork/ST/NE/NEFW/WTS-Networks/IDN/idnfiles/IDN_AnnFor2011/Seg_and_Cond_JoseCabreraNPP-RODRIGUEZ.pdf>
[18] RADIOACTIVE WASTE MANAGEMENT PROGRAMMES IN OECD/NEA MEMBER COUNTRIES - ITALY 2011. NATIONAL NUCLEAR ENERGY CONTEXT [online]. [cit. 20.11.2012]. Dostupné na: < http://www.oecd-nea.org/rwm/profiles/Italy_profile_web.pdf>
[19] BRUSA, L., et. al.: THE DECOMMISSIONING OF THE TRINO NUCLEAR POWER PLANT. In *WM'02 Conference, February 24-28, 2002, Tucson, AZ.*
[20] Entergy letter NL-08-147 to NRC, "Notification of Delay of Submittal for Unit 1 & 2 Program for Maintenance of Irradiated Fuel and Preliminary Program for Maintenance of Irradiated Fuel and Preliminary Decommissioning Cost Analysis in accordance with 10 CFR 50.54 (bb) and 10 CFR 50.75(f)(3)," dated September 29, 2008.
[21] VARLEY, G., RUSH, C.: Research on Decommissioning Cost for Nuclear Power Plants. Swedish Radiation Safety Authority. Report No. 2011:03. ISSN 2000-0456.
[22] Bigge - SAN ONOFRE NUCLEAR POWER PLANT UNIT 1 DECOMMISSIONING [online]. [cit.: 20.11.2012]. Dostupné na: <http://www.bigge.com/pdf/reactor/Songs_Unit1_decommissioning.pdf>
[23] BUCKLEY, B.: Status of the Decommissioning Program 2006. Annual Report. NUREG-1814, Rev. 1.
[24] Reactor Vessel Shipment Completed - Safe From Start To Finish [online]. [cit. 20.11.2012]. Dostupné na: <http://southern.railfan.net/flat/cars/capx/kelly.htm>
[25] GLŰCKS, M.: Dismantling of the Zion NPP: Double record for Siempelkamp. [online]. [cit.: 20.11.2012]. Dostupné na: <http://www.siempelkamp.com/fileadmin/media/Englisch/Nukleartechnik/dienstleistungen/19_Dismantling_of_the_Zion_NPP_Double_record_for_Siempelkamp.pdf>
[26] NUCLEAR TECHNOLOGY REVIEW 2010. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY VIENNA, 2010. IAEA/NTR/2010
[27] HICKMAN, J.: Rancho Seco Biennial Report. May 24, 2006. MPC&D 06-054.
[28] FEIGENBAUM, T.: Maine Yankee Reactor Vessel Removal & Barge Transport. [online]. [cit. 21.11.2012]. Dostupné na: <http://www.em.doe.gov/TECWGPages/sites/default/files/pdfs/2005-Apr/Plenary%20II/PlenaryII_Feigenbaum.pdf>
[29] CADE, M.S., SHAFFNER, J.A.: DISPOSAL OF THE PGE TROJAN REACTOR VESSEL-SWEATING THE DETAILS. In *WM'00 Conference, February 27 – March 2, 2000, Tucson, AZ*

RECYKLÁCIA KOVOVÝCH RÁDIOAKTÍVNYCH MATERIÁLOV Z VYRAĎOVANÝCH JADROVÝCH ZARIADENÍ POMOCOU PRETAVBY – SÚČASNÝ STAV, PERSPEKTÍVY A MOŽNOSTI VYUŽITIA

Andrej Slimák, Vladimír Nečas
Slovenská technická univerzita Bratislava
Ústav jadrového a fyzikálneho inžinierstva
Fakulta elektrotechniky a informatiky

Abstrakt

Neoddeliteľnou súčasťou každého jadrového zariadenia je jeho vyraďovanie z prevádzky. V súčasnosti je v procese vyraďovania veľké množstvo jadrových zariadení, pričom z každého zariadenia vznikne významné množstvo kovových rádioaktívnych odpadov. Pre zníženie množstva týchto odpadov bolo vyvinutých viacero metód, pričom medzi všeobecne najmodernejšie metódy úpravy, respektíve dekontaminácie kovových rádioaktívnych odpadov (RAO) patrí pretavba. Príspevok sa zaoberá všeobecným popisom procesu pretavby, ako aj možností jej využitia. V príspevku je taktiež zhrnutý súčasný stav procesu pretavby vo svete.

1. Úvod

Vyraďovanie jadrových elektrární (JE) ako aj iných jadrových zariadení (JZ) z prevádzky vedie k produkcii významného množstva kovových materiálov, z ktorých veľké množstvo je iba mierne kontaminovaných. Ide najmä o uhlíkovú oceľ, nehrdzavejúcu oceľ a iné farebné kovy. Veľká časť týchto kovových materiálov môže byť priamo uvoľnená do životného prostredia na neobmedzené použitie. Ďalšia významná časť materiálov môže byť uvoľnená po aplikácii dekontaminačných technológií, ako je napríklad pretavba.

Podľa OECD/NEA bude do roku 2050 v procese vyraďovania približne 400 JE, z ktorých vznikne viac ako 5 miliónov ton kovového šrotu [1]. Ak sa do úvahy zoberú aj ostatné jadrové zariadenia, ktoré budú musieť byť v budúcnosti vyraďované, tak množstvo kovového šrotu sa odhaduje na približne 30 miliónov ton [2]. V súčasnosti prevádzkované úložiská rádioaktívnych odpadov nie sú schopné uložiť takéto množstva odpadov, či už je to z finančných alebo kapacitných dôvodov. Preto je snaha v súčasnosti znižovať objem kovových RAO ako aj RAO všeobecne v čo najväčšej miere.

2. Popis procesu přetavby

Pretavba kovových materiálov, respektíve kovových RAO predstavuje termálny desorpčný proces, ktorý [3]:

- minimalizuje množstvo kovov, ktoré je potrebné uložiť ako RAO,
- homogenizuje kovový šrot,
- inkorporuje aktivitu do kovu,
- zjednodušuje a zvyšuje presnosť merania aktivity výsledného produktu,
- umožňuje výslednému ingotu nepodmienené alebo podmienené uvoľnenie do životného prostredia.

Všeobecne je pretavba z technického hľadiska jednoduchým procesom, kde je kovový komponent zahriaty až na teplotu prevyšujúcu jeho teplotu topenia a tým komponent prechádza do kvapalného skupenstva. Roztavený kov je naliaty do formy a následne schladený do pevného skupenstva.

Počas procesu pretavby nastáva redistribúcia rádionuklidov prítomných ako kontaminanty, pričom v tavenine zostávajú rádionuklidy prvkov podobných železu (^{60}Co, ^{54}Mn, ^{57}Co) a ostatné prechádzajú do trosky (napr. transuräny). Prchavé kontaminanty (^{137}Cs, ^{90}Sr) zostávajú taktiež v troske alebo prechádzajú do pecných plynov.

Pretavba kompletne mení geometriu komponentov a ako dekontaminačná metóda je veľmi účinná pre prchavé kontaminanty, alebo pre kontaminanty, ktoré prechádzajú do trosky. Dekontaminačná účinnosť, resp. dekontaminačný faktor preto veľmi závisí od rádioizotopu, ktorý je v kove prítomný ako kontaminant. Pretavba všeobecne poskytuje maximálne možnú hranicu objemovej redukcie (objemový redukčný faktor 80 - 90) a spomínaná dekontaminačná účinnosť dosahuje hodnoty $10^3 – 10^4$ [4]. Finálna matrica – kovový ingot sa vyznačuje výbornými vlastnosťami týkajúcimi sa pevného viazania inkorporovaných rádionuklidov v kovovej mriežke a dlhodobej fyzikálnej aj chemickej stability. Tým sa vytvára predpoklad pre dlhodobé a bezpečné uloženie, respektíve opätovné využitie ingotu.

Jednou z veľkých výhod pretavby rádioaktívneho kovového šrotu je, že vo výslednom ingote sú inkorporované takmer iba prvky podobné železu, ktoré sú prevažne krátkožijúce. Dominantným rádioizotopom (pre väčšinu šrotu pochádzajúceho z vyraďovania JZ obsahujúcich jadrový reaktor) je ^{60}Co, ktorý má dobu polpremeny 5,27 roka. Takmer všetky ostatné rádionuklidy inkorporované v ingote majú kratšiu dobu polpremeny (^{55}Fe – 2,73 roka, ^{54}Mn – 312 dní, ^{57}Co – 272 dní) [5].

Proces pretavby pozostáva z nasledovných krokov [5]:

- triedenie, segmentácia a dekontaminácia (ak sa vyžaduje),
- pretavba,
- odber vzoriek a analýza,
- spracovanie a úprava sekundárnych odpadov
- recyklácia, dočasné skladovanie pokiaľ nepoklesne úroveň aktivity na prijateľnú úroveň alebo uloženie finálneho kovového produktu ako RAO.

Každé pretavovacie zariadenie by okrem samotnej pece malo obsahovať aj skladovaciu halu rádioaktívneho šrotu, resp. ingotov, segmentačnú linku, dekontaminačnú linku a iné pomocné prevádzky. Pred samotnou pretavbou je potrebné kovový šrot roztriediť a odseparovať od seba jednotlivé druhy kovov, pretože rozličné kovy nemôžu byť pretavované spoločne vzhľadom na rozličný bod tavenia jednotlivých kovov, respektíve zliatin (nerezová oceľ 1510 °C, uhlíková oceľ 1425 – 1540 °C, hliník 660 °C, hliníkové zliatiny 463 – 671 °C, meď 1084 °C, mosadz 930 – 1000 °C, olovo 327,5 °C) [6]. Ak je kovový šrot kontaminovaný povrchovo, tak je výhodné použiť dekontamináciu a znížiť tak aktivitu kovu už pred samotnou pretavbou, čím sa zníži ako množstvo kovového RAO, tak aj dávkové zaťaženie pracovníkov. V závislosti od veľkosti pretavovacej pece je potrebné kovový šrot pred samotnou pretavbou nafragmentovať.

Počas samotnej pretavby sa do pece môžu pridávať rôzne taviace činidlá, ktoré zlepšujú separáciu trosky, ako aj zachytávanie niektorých rádionuklidov v troske. Po pretavbe sa z pece odstráni troska, odoberú sa vzorky taveniny na meranie zvyškovej aktivity a nakoniec je tavenina naliata do formy. Tvar foriem závisí od požiadaviek ďalšieho účelu kovu. Roztavený kov môže byť naliaty do formy ingotu, alebo sa z neho môžu vyrábať tieniace bloky rôznych tvarov, ako aj kontajnery pre RAO.

Kovové ingoty, respektíve kovové komponenty môžu byť po pretavbe uvoľnené do životného prostredia, ak spĺňajú kritéria pre uvoľnenie. Ak je aktivita týchto kovov nad úrovňou umožňujúcou ich uvoľnenie, môžu byť uvoľnené podmienene, skladované niekoľko rokov pokiaľ neklesne ich aktivita alebo môžu byť využité v rámci jadrového priemyslu.

V súčasnosti je najbežnejším typom pece na pretavbu rádioaktívneho kovového šrotu z vyraďovania jadrových zariadení elektrická indukčná pec.

Počas celého procesu pretavby rádioaktívneho kovového šrotu sú produkované sekundárne RAO, jako napríklad troska, použité filtre, prevádzkový odpad z pece, zvyšky z dekontaminácie (ak bola vykonaná) a ďalšie. Sekundárne RAO následne vyžadujú spracovanie, úpravu a uloženie v úložisku RAO.

3. Súčasný stav procesu pretavby vo svete

Malé množstvá železného šrotu z jadrových zariadení boli v minulosti uvoľnené a pretavené v komerčných pretavovacích závodoch. Tieto množstvá, ako aj limity rádioaktivity sa v jednotlivých krajinách líšili. Za posledných 20 rokov sa pretavovanie kovového rádioaktívneho šrotu vyvinulo ako nové priemyselné odvetvie, pričom pre minimalizáciu množstva kontaminovaného železa sa používajú overené technológie a metódy. V súčasnosti je vo svete niekoľko závodov na recykláciu kovového RAO pomocou pretavby [3], [5]:

- STUDSVIK. Švédsko (1987),
- CARLA, Siempelkamp, Nemecko (1989),
- INFANTE, Francúzsko (1992),
- SEG, Oak Ridge, USA (1992),
- CAPENHURST, Veľká Británia (1994),
- CENTRACO, Francúzsko (1999),
- ECOMET-S, Ruská Federácia (2002).

STUDSVIK, Švédsko

Prvé komerčné zariadenie na pretavbu kovového rádioaktívneho šrotu z vyraďovania jadrových zariadení bolo uvedené do prevádzky v roku 1987 v Studsviku vo Švédsku. Zariadenie pozostáva z viacerých komponentov ako sú dve pece, skladovacia hala kovového šrotu, triediaca linka, segmentačná linka a iné pomocné prevádzky. Na pretavbu ocele sa používa indukčná pec s kapacitou zavážky 3 t a pretavovacou kapacitou 1,5 t za hodinu. Neželezné kovy ako napríklad hliník sú pretavované v tzv. téglikovej peci („crucible furnace“) so zavážkou 600 kg a pretavovacou kapacitou 250 kg hliníka za hodinu [7].

Do roku 2005 bolo v tomto zariadení pretavených približne 12 000 ton kovového šrotu, pričom približne polovica bola uvoľnená pre opätovné využitie [5]. Kovový ingot je uvoľnený, ak spĺňa uvoľňovacie úrovne pre neobmedzené využitie, čo predstavuje 0,5 Bq/g (z čoho nesmie byť viac ako 0,1 Bq/g alfa žiaričov) alebo 1 Bq/g s určitým obmedzením zo strany dozorných orgánov. Ak kovový ingot nespĺňa kritéria pre uvoľnenie, tak je buď skladovaný, ak do 20 rokov poklesne jeho aktivita na podlimitnú hodnotu, alebo je vrátený späť majiteľovi. Kovový ingot je po uvoľnení pretavený v oceliarňach, kde je zmiešaný s neaktívnym kovovým šrotom [7].

CARLA, Nemecko

Pretavovacie zariadenie CARLA (Central Anlage zum Recyclieren Leichtaktiver Abfälle) zastáva významnú rolu v oblasti recyklácie kovových RAO v Nemecku už 23 rokov. Za svoju 20-ročnú prevádzku (do roku 2009) zariadenie pretavilo približne 25 000 t kovového rádioaktívneho šrotu, z čoho 9 000 t bolo uvoľnených, 14 500 t recyklovaných v rámci jadrového priemyslu na výrobu železných kontajnerov alebo kontajnerov z ťažkého betónu a 1 500 t bolo vrátených producentom ako kovový RAO [8].

Zariadenie obsahuje indukčnú pec stredných frekvencií s kapacitou zavážky 3,2 t a pretavovacou kapacitou 2 t za hodinu. Podľa federálneho zákonu o kontrole emisií je možné pretaviť až 4 000 t šrotu ročne, avšak v súčasnosti sa pretaví v priemere cca. 1 250 ton ročne. Zariadenie je vhodné na pretavbu železa rôznej kvality ako aj na pretavbu ocele ako je liatina, mäkká oceľ, nehrdzavejúca oceľ, pozinkovaná oceľ, atď. Pec je taktiež vhodná na pretavbu neželezných kovových materiálov ako hliník, meď, mosadz a olovo. Limitná hodnota pre prijatie kovového šrotu na pretavbu je 1 000 Bq/g pre celkovú aktivitu (α, β, γ), prípadne 10 000 Bq/g pre β žiariče ako ^{55}Fe, ^{63}Ni, ^{14}C a ^{3}H. Pre štiepiteľné produkty ako ^{233}U, ^{235}U, ^{239}Pu, ^{241}Pu je limit 15 g na 100 kg kovového šrotu [8].

INFANTE, Francúzsko

V roku 1992 bolo uvedené do prevádzky zariadenie na pretavbu rádioaktívnych kovov INFANTE v areáli Marcoule pre potreby minimalizácie kovového RAO z prevádzky a vyraďovania francúzskych jadrových zariadení (najmä reaktorov G2 a G3 nachádzajúcich sa v spomínanom areáli Marcoule). Ide o pec využívajúcu elektrický oblúk s výkonom 8 000 kW a množstvom zavážky 15 t. Do pece je možné priamo

vkladať komponenty, respektíve potrubia s priemerom až do 1,6 m, čím sa čiastočne ušetria náklady spojené s fragmentáciou. Do roku 2005 bolo v tomto zariadení pretavených 5 000 t [3] kovových rádioaktívnych materiálov, pričom pretavený materiál bol využitý v jadrovom priemysle na výrobu tieniacich blokov alebo kontajnerov. Limitná hodnota pre prijatie kovového šrotu na pretavbu je 250 Bq/g pre ^{60}Co [9]. V súčasnosti zariadenie už nie je v prevádzke.

SEG, Oak Ridge, Spojené štáty americké

V roku 1992 bolo uvedené do prevádzky zariadenie na spracovanie a úpravu kovových rádioaktívnych materiálov v Oak Ridge v USA. Zariadenie s pretavovacou kapacitou 5 – 6 t/h (kapacita zavážky až do 20 t) pretavilo do roku 2005 viac ako 53 000 ton kovového RAO, pričom pretavený kov bol využitý prevažne na výrobu tieniacich blokov a kontajnerov využívaných v jadrovom priemysle. Zariadenie obsahuje indukčnú pec s výkonom 7 200 kW.

Zariadenie SEG je projektované na príjem, fragmentáciu, dekontamináciu, pretavbu a odlievanie nízkoaktívnych kovových materiálov pre obmedzené využitie. Ak je kovový komponent iba povrchovo kontaminovaný, tak môže byť po dekontaminácií uvoľnený pre neobmedzené využitie.

CAPENHURST, Veľká Británia

V roku 1994 bola v anglickom areáli Capenhurst uvedená do prevádzky indukčná pec (s kapacitou zavážky 4 t) na pretavbu kovových RAO vzniknutých počas vyraďovania JZ, najmä z vyraďovania obohacovacieho závodu v spomínanom areáli. Cieľom pretavby je produkcia ingotov, ktorých úroveň aktivity je dostatočne nízka pre ich neobmedzené využitie, ktoré sa dosiahne okrem samotnej pretavby aj pomocou dekontaminácie pred samotnou pretavbou. Zariadenie je vhodné na recykláciu hliníka, medi, bronzu, železných liatin, ocele a niklu [10].

CENTRACO, Francúzsko

V poradí druhé zariadenie na recykláciu kovových RAO pomocou pretavby bolo vo Francúzsku uvedené do prevádzky v roku 1999. Ide o elektrickú indukčnú pec s kapacitou zavážky 4 t. Zariadenie je navrhnuté pretaviť 1 500 t kovového šrotu ročne, pričom kapacita môže byť zvýšená až na 4 500 t/rok v prípade nepretržitej prevádzky. Pred samotnou pretavbou je kovový šrot roztriedený podľa rádioaktivity a kvality, respektíve druhu kovu (uhlíková oceľ, nehrdzavejúca oceľ a neželezné kovy) a následne vysušený. Prevádzková teplota pece je 1 600 °C a výsledná tavenina je nalievaná do odlievacích foriem zahriatych na 850 °C. Finálnym produktom pretavby je ingot alebo rúra využívaná ako tienenie [11]. Limitná hodnota pre prijatie kovového šrotu na pretavbu je 20 000 Bq/g pre beta/gama a 370 Bq/g pre alfa žiariče.

ECOMET-S, Ruská federácia

V roku 2002 bolo v Rusku uvedené do prevádzky zariadenie na recykláciu kovových rádioaktívnych materiálov ECOMET-S. Zariadenie je určené na dekontamináciu nízkoaktívnych kovov (nehrdzavejúca nikel-chrómová a uhlíková oceľ, meď a jej zliatiny, hliník a jeho zliatiny) pomocou otryskávania a pretavby. Na pretavbu kovového šrotu sa využíva indukčná pec s výkonom 1 500 kW, kapacitou zavážky 2,5 t a pretavovacou kapacitou cca. 5 000 t/rok. Výsledný produkt, kovový ingot, je po pretavbe uvoľnený do oceliarní na neobmedzené použitie. Limitná hodnota pre prijatie kovového šrotu na pretavbu je 100 Bq/g [12].

4. Možnosti využitia recyklácie kovových rádioaktívnych materiálov pomocou pretavby v podmienkach Slovenskej republiky

V súčasnosti sú v procese vyraďovania v Slovenskej republike štyri JZ (JE A1, JE V1, experimentálna bitúmenačná linka a experimentálna cementačná linka). Počas vyraďovania JE vznikne veľké množstvo kovového šrotu, z ktorého bude možné časť uvoľniť priamo na neobmedzené použitie. Ďalšia významná časť bude iba veľmi nízkoaktívna a po aplikácii dekontaminačných techník, ako napr. pretavba, by bolo možné uvoľniť nezanedbateľné množstvo kovového šrotu, ktoré by ináč muselo byť uložené ako RAO. Týmto by sa ušetrilo veľa finančných prostriedkov súvisiacich so spracovaním, úpravou,

skladovaním a ukladaním týchto RAO. Avšak na druhej strane je potrebné brať do úvahy aj náklady spojené s pretavbou (investičné a prevádzkové náklady).

Odhaduje sa, že pre dvojblok JE s reaktorom typu VVER 440 vznikne počas vyraďovania približne 16 000 t potenciálne rádioaktívneho kovového šrotu, teda šrotu vzniknutého vyraďovaním technologických zariadení v kontrolovanom pásme.

5. Zhodnotenie

Príspevok sa detailne zaoberá procesom pretavby ako výhodnou technológiou pre recykláciu kovov, respektíve pre zníženie množstva kovových RAO vzniknutých najmä počas vyraďovania JZ z prevádzky. Prvá časť príspevku sa venuje všeobecnému popisu procesu pretavby kovových rádioaktívnych materiálov. Druhá časť je zhrnutím doterajších praktík a skúseností súvisiacich s pretavbou kovových RAO vo svete, kde sú stručne popísané jednotlivé pretavovacie zariadenia. Tretia časť príspevku sa stručne zaoberá možnosťou využitia pretavby v podmienkach Slovenskej republiky, kde sa v blízkej budúcnosti predpokladá vznik značného množstva kovových RAO.

6. Poďakovanie

Tento projekt bol čiastočne podporený Vedeckou grantovou agentúrou MŠVVaŠ a SAV grantom VEGA 1/0685/09 s MŠVVsŠ Slovenskej republiky nariadením číslo CD-2009-36909/39460-1:11 v rámci projektu CONRELMAT.

7. Použitá literatúra

[1] O'Sullivan, P.J., *The relevance of metal recycling for nuclear industry decommissioning program,* Control and Management of radioactive Material Inadvertently Incorporated into Scrap Metal, Proceedings of an International conference Tarragona, Spain, 23 – 27 Február 2009, ISBN: 978-92-0-114910-7

[2] Organisation for Economic Co-operation and Development - Nuclear Energy Agency, *Recycling and Reuse of Scrap Metal,* Paris: OECD/NEA 1996

[3] International Atomic Energy Agency, *Application of Thermal Technologies for Processing of Radioactive Waste,* IAEA-TECDOC-1527, Viedeň, 2006, ISBN 978-92-0-113806-7

[4] NEČAS, V., ĎURČEK, E. *RAO a likvidácia JE: Učebný text pre postgraduálne rekvalifikačné štúdium: „Bezpečnostné aspekty prevádzky jadrových zariadení"*, Bratislava, FEI STU, 2007

[5] Organisation for Economic Co-operation and Development - Nuclear Energy Agency, *Decontamination Techniques Used in Decommissioning activities,* OECD/NEA 1999

[6] The Engineer ToolBox, Metals – Melting Temperatures, Dostupné na internete: < http://www.engineeringtoolbox.com/melting-temperature-metals-d_860.html>

[7] Andersson, L., *Recycling of contaminated metals for free release,* WM'99 Conference, February 28 – March 4, 1999

[8] Quade, U., Kluth, T., *Recycling by Melting, 20 Years Operation of the Melting Plant CARLA by Siempelkamp Nukleartechnik GmbH,* International Journal for Nuclear Power, Volume 54 (2009), No. 10 October

[9] Organisation for Economic Co-operation and Development - Nuclear Energy Agency, *The NEA Co-operative Programme on Decommissioning,* A Decade of Progres, 2006, ISBN: 92-64-02332-1

[10] Clements, D.W., *Proven experience plus initiative equates to safe, cost-effective decommissioning with added value,* Waste Management Symposia, 1998

[11] Debes, M., Bordier, M., *Radioactive waste management at EDF plants: General Overview and perspective*

[12] Gelbutovsky, A.B., *CJSC ECOMET-S Facility for reprocessing and utilisation of radioactive metal waste: operating experience,* Int. J. Nuclear Energy Science and Technology, Vol. 2, Nos. ½, 2006

STUDIUM KOROZNÍCH PROCESŮ PRO HLUBINNÉ ÚLOŽIŠTĚ V ČR

T. Černoušek[1], P. Kovařík[1], P. Dobrev[2], P. Votava[1]
[1] Centrum výzkumu Řež s. r. o.
[2] ÚJV Řež a. s.

Abstrakt

V současné době jsou radioaktivní materiály rozsáhle využívány v mnoha aplikacích (např. lékařství, průmysl a především výroba elektrické energie). Při všech těchto činnostech vznikají odpady o různé aktivitě. Jednou z široce používaných možností, jak naložit s radioaktivními odpady je jejich definitivní uložení v trvalých úložištích. Pro ukončení palivového cyklu v ČR se plánuje vybudování hlubinného úložiště. Jeho cílem je zabezpečit dlouhodobou izolaci radionuklidů od okolního prostředí. Inženýrské bariéry s dlouhodobou životností představují jednu z hlavních ochran proti úniku radionuklidů do životního prostředí a jsou součástí výzkumně-vývojových prací v projektu přípravy a konstrukce hlubinného úložiště pro ukončení palivového cyklu. Tento příspěvek se zaměřuje na elektrochemické studium koroze a jeho metodiku s ohledem na vnější vlivy konstrukčních materiálů úložných obalových souborů, které jsou předmětem výzkumné aktivity laboratoře pro geologické ukládání radioaktivního odpadu v projektu SUSEN a podává přehled o současném stavu a budoucích výzkumných aktivitách této laboratoře.

1. Úvod

V současné době jsou radioaktivní materiály rozsáhle využívány v mnoha aplikacích (např. lékařství, průmysl a především výroba elektrické energie). Při všech těchto činnostech vznikají odpady o různé aktivitě. Jednou z široce používaných možností, jak naložit s radioaktivními odpady je jejich definitivní uložení v trvalých úložištích. Pro ukončení palivového cyklu v ČR se plánuje vybudování hlubinného úložiště. Hlubinné úložiště představuje multibariérový systém skládající se s inženýrské bariérové ochrany (úložný obalový soubor a geotechnická vícevrstvá ochrana bentonitem) a přírodní bariérové ochrany (geologické prostředí). Jeho cílem je zabezpečit dlouhodobou izolaci radionuklidů od okolního prostředí. ***Úložný obalový soubor*** v tomto systému bariérových ochran tvoří zcela jedinečnou nepropustnou bariéru, která ***zabraňuje úniku radioaktivních částic do okolí.***

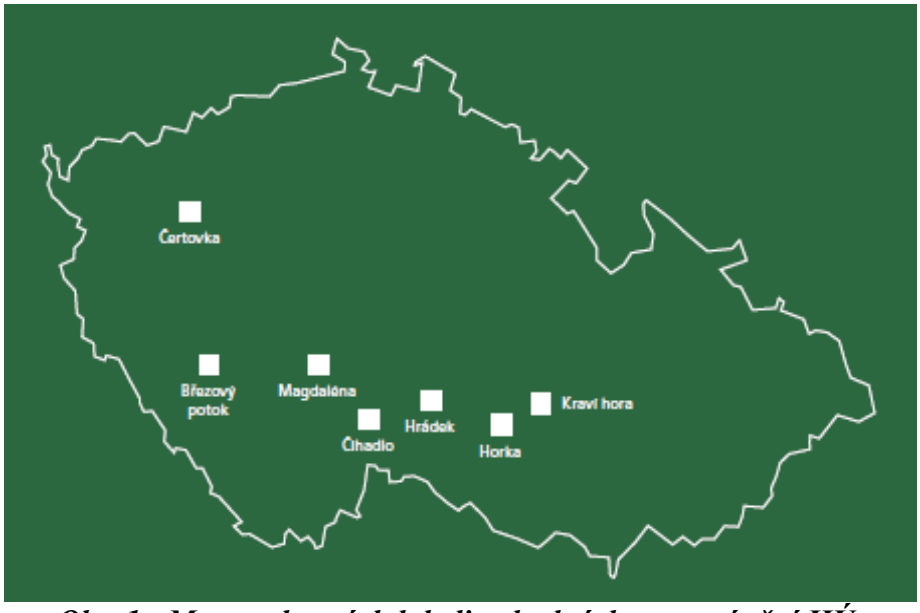
Inženýrské bariéry představují jednu z hlavních bariér proti úniku radionuklidů do životního prostředí a studium jejich degradace je součástí výzkumně-vývojových prací, které se plánují realizovat v projektu udržitelná energetika (SUStainable ENergy, SUSEN).

Projekt SUSEN se skládá se čtyř výzkumných programů: technologické experimentální okruhy (TEO), strukturální a systémová diagnostika (SSD), jaderný palivový cyklus (JPC) a materiálový výzkum (MAT). Studium degradace inženýrských bariér hlubinného úložiště v rámci ČR spadá v projektu SUSEN pod výzkumný program JPC, jehož cílem je rozšíření a vybudování výzkumné infrastruktury pro podporu konečných fází jaderného palivového cyklu (např. vývoj technologií pro zpracování a úpravu radioaktivních odpadů (RAO), studium podmínek v hlubinném úložišti a jejich vlivu na konstrukční materiály obalových souborů a studium transportu radionuklidů skrze horninové formace, v níž se vybudování hlubinného úložiště plánuje). V současnosti probíhá výstavba laboratoří pro studium hlubinného ukládání radioaktivního odpadu, kde jedna z částí laboratoře (korozní anaerobní laboratoř) se bude zabývat studiem korozní odolnosti materiálů pro hlubinné úložiště. Pro tyto účely se připravuje nákup měřícího elektrochemického multisystému, anaerobních boxů a dalších doplňkových součástí.

2. Hlubinné úložiště v ČR

Pro umístění hlubinného úložiště v ČR bylo vybráno 7 potencionálních lokalit (Čertovka, Březový potok, Magdaléna, Čihadlo, Hrádek, Horka a Kraví Hora), které jsou uvedeny na obr. 1. Geologický průzkum na těchto místech byl dočasně pozastaven a zatím neprobíhá vzhledem k odmítavému postoji

veřejnosti. Monitoring horninového masivu v současnosti probíhá jen v obdobných horninách, vyskytujících se na uvažovaných lokalitách. Tyto lokality představují stabilní geologické formace granitového masivu.



Obr. 1 - Mapa vybraných lokalit, vhodných pro umístění HÚ (převzato ze SÚRAO – zpráva o činnosti v roce 2011)

Plánované hlubinné úložiště v ČR bude umístněno pod hladinou spodních vod v hloubce okolo 500 m, kde se předpokládá bezkyslíkaté (anoxické) redukční prostředí. Celkové úložná kapacita je plánována na přibližně 1 340 tis. m^3. Vlivem vysoce radioaktivního materiálu, který vyzařuje teplo a zvyšuje povrchovou teplotu kontejneru, byla navržena maximální teplota povrchu ***obalového souboru 100°C(1). Toto teplota má minimální vliv na*** stabilitu českého bentonitu ***a na počáteční tepelný přestup do blízkého okolí. Vyhořelé jaderné palivo a vysoce aktivní odpad*** bude pravděpodobně ukládán do vícevrstvého kontejneru obklopeného bentonitem v úložných vrtech v horizontálním směru. ***Konečný výběr vhodného ukládání bude proveden v době rozhodnutí o výstavbě (okolo roku 2065).***

3. Korozní vlivy

3.1 Materiál

Korozní odolnost úložného obalového souboru (ÚOS) především ovlivňuje volba materiálu. Pro zajištění bezpečnosti hlubinného úložiště by měly být uvažované materiály v tomto prostředí termodynamicky stabilní, anebo by měly mít velkou korozní odolnost. Nejčastěji uvažované materiály pro úložný obalový soubor jsou měď, titan, korozivzdorná a uhlíková ocel. V rámci dosavadního výzkumu v ČR byla zatím testována jen uhlíková ocel, která měla původně sama tvořit vnější ochranný plášť ÚOS. Jedním z možných vlivů degradace uhlíkových ocelí je poškození vyvolané vodíkem, díky výskytu zbytkového napětí nebo prasklin z vnitřní strany úložného obalového souboru. Pro zajištění větší bezpečnosti, byl v referenčním projektu navržen dvouplášťový úložný obal skládající se z uhlíkové oceli (zajišťující konstrukční stabilitu) a korozivzdorné oceli (představující vnitřní ochranný plášť).

Všeobecnou výhodou použití uhlíkové oceli je nízká cena a relativně předvídatelná rovnoměrná korozní rychlost. Uhlíková ocel velmi dobře odolává korozi v anaerobním prostředí nasyceného bentonitu, ustálená korozní rychlost v nasyceném bentonitu Almeria se pohybuje při teplotě 75°C se okolo 10μm/rok(2). Vlivem anaerobního prostředí se na povrchu materiálu tvoří magnetit (Fe_3O_4) probíhající podle Schikkorovi reakce. Vzhledem k mnoha kombinacím prostředí (pH, teplota, koncentrace chloridů a jiné) mohou zároveň vznikat i další korozní produkty (např. hematit, ***wüstit, siderit, a další)*** a rozdílné pasivní vrstvy. V případě uhlíkové oceli bylo pozorováno, že v anaerobním prostředí nasyceného bentonitu vzniká tenčí vrstva korozních produktů, než v prostředí bentonitové vody. Současně dochází k pronikání

iontů kovu železa do nasyceného bentonitu, kde dochází k akumulaci korozních produktů a snižování kapacity iontové výměny (3). Uvádí se, že riziko lokálního napadení uhlíkových ocelí za aerobních podmínek je nízké a v případě anoxického prostředí se lokálního napadení neočekává (4).

Korozivzdorné oceli dělíme podle mikrostruktury na austenitické, feritické, martenzitické, duplexní a precipitačně vytvrzené oceli. Všechny tyto slitiny Fe-Cr patří mezi pasivovatelné kovy vytvářející na svém povrchu tenkou ochrannou oxidickou vrstvu (tzv. pasivní film), která působí jako bariéra mezi kovem a prostředím. Pasivní chování za atmosférických podmínek se vyznačuje velice nízkou korozní rychlostí (<0,1μm/rok), která může být zvýšena nárůstem teploty, poklesem pH a vyšší koncentrací chloridů. Korozivzdorné oceli jsou všeobecně náchylnější k lokálnímu koroznímu napadení oproti uhlíkovým ocelím, protože může dojít relativně snadno k lokálnímu poškození pasivní vrstvy. Nejagresivnější formy koroze korozivzdorných ocelí se vyskytují v neutrálním nebo kyselém aerobním chloridovém prostředí za vysoké teploty. Náchylnost korozivzdorných ocelí k lokálnímu koroznímu napadení může být potlačena například zvýšením obsahu Cr, Mo a N(5).

3.2 Prostředí geotechnické ochrany

Geotechnickou ochranu v ČR zajišťuje materiál bentonit, který utěsňuje, tlumí a vyplňuje okolí obalového souboru. Tento materiál se vyznačuje nízkou propustností (zpomaluje difuzi kyslíku), bobtnací schopností a plastičností, má neměnné reologické vlastnosti a zároveň se chová jako iontoměnič (mění kationové složení spodní vody, která proniká k obalovému souboru) a filtr. Bentonit má současně pufrovací schopnost, která zajišťuje stabilní pH během sorbce granitové vody (6).

Důležitým faktorem hlubinného úložiště ovlivňující korozi ÚOS je časový vývoj prostředí geotechnické ochrany. Jedním z modelů představující geotechnický vývoj prostředí v hlubinném úložišti, lze vzhledem teplotnímu přechodu a relativní vlhkosti rozdělit chování geotechnické ochrany na čtyři fáze (fáze vysušení, aerobní nenasycená fáze, anaerobní nenasycená fáze a dlouhodobě chladná anoxická fáze) (7).

První počáteční fáze vysušení představuje prostředí, ve kterém dochází k uvolňování zbytkového tepla z radioaktivního odpadu do okolí za aerobních podmínek. Prostředí charakterizuje nízká teplotní vodivost a nízká vlhkost prostředí. Korozní podmínky podporují vznik chemické koroze materiálu. Snižuje se koncentrace kyslíku vlivem koroze materiálu, mikrobiálního působení a vlivem chemických reakcí (minerálů a organických látek). Tato fáze trvá, než se dostane voda k povrchu obalového materiálu.

V druhé aerobní nenasycené fázi postupně dochází k poklesu teploty, nasycování bentonitu vodou a veškeré spotřebě přítomného kyslíku. Vlivem vlhkosti dochází k bobtnání bentonitu (začíná působit rozpínací tlak) a zároveň se zlepšuje tepelná vodivost bentonitu. Prostředí okolo ÚOS dosahuje vysoké vlhkosti (>60%) a umožňuje průběh elektrochemické koroze.

Třetí anaerobní nenasycená fáze se vyznačuje redukcí všech korozních produktů z vyšších oxidačních stavů do nižších. Konec této fáze představuje úplné nasycení bentonitu.

Čtvrtá konečná dlouhodobě chladná anoxická fáze představuje prostředí, ve kterém je bentonit kompletně nasycen. Jediné oxidační schopnosti má voda. Koroze probíhá vlivem redukce vodíkových iontů.

3.3 Druhy korozních procesů

Rovnoměrná koroze představuje hlavní korozní proces degradace materiálu v hlubinném úložišti, který můžeme kvantifikovat základními modely a experimentálně ověřit. Rychlost rovnoměrné koroze je zde především závislá na množství přítomného kyslíku, která po spotřebování kyslíku významně klesá.

Další druhy korozních procesů, které mohou za určitých podmínek v plánovaném HÚ nastat nebo vykazují nejistotu jsou bodová a štěrbinová koroze, mikrobiální koroze a korozní praskání pod napětím (8).

Největší pravděpodobnost výskytu lokálního napadení materiálu je v počátečních fázích vývoje geotechnické ochrany, kdy je prostředí nejvíce agresivní vlivem vysoké teploty, oxidačních podmínek a solného prostředí. Korozivzdorné oceli jsou všeobecně náchylnější k lokálnímu koroznímu napadení, vlivem lokálního porušením pasivní vrstvy (přítomnost inkluzí MnS, defekty a jiné typy poškození pasivního filmu a další). Náchylnost materiálu k lokálnímu napadení představuje rozdíl mezi potenciálem průrazu a korozním potenciálem ($E_b - E_{corr}$). Štěrbinovou a bodovou korozi způsobuje zejména prostředí obsahující chloridy a thiosírany. Inhibiční účinky můžeme naopak pozorovat v případě výskytu hydroxidů, uhličitanů, dusičnanů a síranů.

Ke koroznímu praskání pod napětím (SCC) může dojít pouze v případě současného působení tří faktorů, kterými jsou statické tahové napětí, specifické prostředí (dostatečně korozivní) a náchylnost materiálu ke koroznímu praskání. Všeobecně je pravděpodobnost výskytu korozního praskání pod napětím v bentonitovém prostředí velice nízká, ale existuje zde pravděpodobnost výskytu SCC v oblasti svaru úložného obalového souboru, ke které by mohlo dojít pravděpodobně po uplynutí periody cca 1000 let (9).

Bez ohledu na umístění a detailní návrh hlubinného úložiště, představuje toto prostředí nehostinné místo pro mikrobiální aktivitu. Rozsáhlé důkazy přesto ukazují přítomnost výskytu mikrobů ve spodních vodách, a proto jejich vliv na dlouhodobou životnost hlubinného úložiště musíme brát v úvahu. V prostředí bentonitového lože se působení mikrobiální koroze nepředpokládá, z důvodu nepřítomnosti mikrobiální aktivity ve zhutněném bentonitu znemožňující vznik biofilmu na povrchu ÚOS a také díky zanedbatelnému množství korozních metabolických produktů, které se během desítek miliónu let dostanou k povrchu kontejneru(10).

4. Metodika korozního testování materiálu

Předpověď dlouhodobé životnosti materiálu úložného obalového souboru bude prováděna na základě normy ASTM C 1174.

V rámci projektu za CVŘ bude testováno 3-5 typů materiálů. Do širšího výběru budou zahrnuty nerezové austenitické oceli (například ocel typu 304L, jako jeden z nejběžněji užívaných typů austenitických ocelí, nebo typ 316L, legovaný molybdenem a mající díky tomu lepší odolnost proti lokálnímu koroznímu napadení indukovanému chloridy). V budoucnu dalšími uvažovanými materiály mohou být slitina Ti6Al4V, mající lepší mechanické vlastnosti než titan a některé slitiny nikl-chrom-molybden (např. typ 825, C276, 625).

Pro korozní testování jsou navrženy expoziční zkoušky (zkouška úplným ponorem) a elektrochemická měření zaměřené na rovnoměrnou a lokální korozi. Zásady expozičních zkoušek se budou řídit normou ČSN ISO 11845. Využívané metodiky pro sledování vlivu koroze budou metalografické hodnocení, hodnocení vzhledových změn za pomoci obrazové analýzy a hodnocení hmotnostních změn.

Ke studiu pasivní vrstvy budou navíc využívány metody povrchové analýzy (např. XPS, AES nebo SIMS) spolu s Ramanovou spektroskopií. Experimenty budou probíhat v anaerobních boxech na obr. 2, v nichž je možné simulovat předpokládané anoxické podmínky vyskytující se v hlubinném úložišti.

Pro experimenty bude použit roztok, jehož složení se přibližuje složení roztoku v hlubinném úložišti (syntetická granitická voda), kterým bude sycen bentonit Rokle. Dalším prostředím bude modelový roztok bentonitové vody.

Obr. 2 - Anaerobní box

4.1 Elektrochemické metody

Základní elektrochemické techniky, které budou využity při studiu korozní odolnosti materiálů pro HÚ, jsou elektrochemická impedanční spektroskopie (EIS), měření elektrochemického šumu, polarizační metody a měření a monitorování korozního potenciálu.

EIS je nedestruktivní elektrochemická metoda umožňující následná dlouhodobá měření. Modelování EIS spekter vzorků s různou dobou expozice v korozním prostředí umožňuje sledovat změnu korozní odolnosti ocelí. Tato metoda má oproti jiným elektrochemickým metodám řádu výhod a poskytuje mnoho informací o studovaném systému (fyzikální, kinetické). Metoda EIS umožňuje studovat korozní prostředí „in situ“, testování je nedestruktivní a reprodukovatelné, měření lze provádět i v prostředí s nízkou vodivostí. Principem impedančních měření je sledování odezvy měřeného systému na perturbaci, mající většinou formu potenciálového sinusového signálu. Odezva má v takovém případě formu rovněž sinusového signálu o shodné frekvenci, pouze fázově posunutého. Z poměru obou signálů se získá impedance systému. V případě měření v dostatečném rozsahu frekvencí je výsledkem impedanční spektrum. Zpracování bude spočívat v aproximaci experimentálních dat impedancí ekvivalentního obvodu a v případě použitelnosti vysokofrekvenčních dat bude provedena též Jonscherova analýza. EIS bude využívána pro dlouhodobé a krátkodobé experimenty za účelem stanovení okamžité korozní rychlosti a kvantitativního hodnocení pasivní ochranné vrstvy.

Metoda elektrochemického šumu spočívá v současném snímání oscilací korozního potenciálu a proudu kolem ustálené hodnoty. Před vyhodnocením obou signálů po odstranění trendu bude provedeno zpracování dat pomocí rychlé fourierovské transformace, které povede k odfiltrování případných parazitických signálů. Takto upravené šumové signály budou následně vyhodnoceny jednak v časové doméně (šumový odpor) a zároveň ve frekvenční doméně (spektrální výkonová hustota odporu).

Polarizační metody patří mezi stejnosměrné elektrochemické metody, které charakterizuje polarizační křivka (závislost mezi elektrodovým potenciálem a proudovou hustotou - E/I) a mohou být měřeny v potenciostatickém, potenciodynamickém, galvanostatickém a galvanodynamickém režimu. Polarizační metody, které se nejčastěji používají pro korozní testování rovnoměrné koroze, jsou lineární polarizace ***(ASTM G 59)*** a ***Tafelova extrapolace (ASTM G 102)***. Lineární polarizace je metoda, která umožňuje rychlé zjištění okamžité korozní rychlosti na základě ***Stern-Gearyho rovnice.*** Vzhledem k velmi malé polarizaci elektrody není měřením ovlivněna korozní rychlost a tato metoda může být použita pro monitorování koroze. Pro vyhodnocení a určení korozní rychlosti v aktivním stavu je však potřeba znát a stanovit Tafelovy koeficienty stanovené z Tafelovy extrapolace. Tafelova extrapolace patří mezi destruktivní metody, protože vyžaduje mnohem větší přepětí, které může způsobit např. rozpouštění nebo precipitaci nerozpustných korozních produktů na povrchu elektrody.

Cyklická potenciodynamická polarizace bude prováděna podle normy ASTM G 61. Tato metoda umožňuje získat informace o náchylnosti materiálu k lokálnímu napadení (např. potenciál bodové koroze, repasivační potenciál, transpasivní oblast a ochranný potenciál).

4.2 Ramanova spektroskopie

Ramanova spektroskopie je účinná metoda pro určování složení, struktury a vlastností látek. Tato metoda bude především využívána pro posuzování výchozího stavu materiálu a pro kvalitativní rozsah přeměny jednotlivých fází vzorku.

Identifikační možnosti této metody jsou srovnatelné s infračervenou spektrometrií. Ramanova a infračervená spektra jsou komplementární. Obecně se k buzení Ramanových spekter používá jako světelný zdroj laser. Ramanova spektra jsou spektra rozptýleného záření měřená obvykle v oblasti 15 000 až 25 000 cm^{-1} (700 – 400 nm). Podmínkou vzniku Ramanova rozptylu (vznik vibračního Ramanova spektra) je změna dipólového momentu indukovaného v molekule elektrickou složkou dopadajícího záření. Tato změna souvisí se změnou polarizovatelnosti molekuly při vibračním ději. Pásy symetrických vibrací a vibrací ve fázi jsou většinou intenzivnější než u vibrací antisymetrických a u vibrací v protifázi. Ve spektrech jsou také intenzivněji vidět pásy nepolárních vazeb oproti polárním a vazby násobné oproti vazbám jednoduchým. Ramanovo spektrum slouží velice dobře jako otisk prstu, zvláště je-li dodržen stejný fyzikální stav látky. Oproti infračerveným spektrům je Ramanovo spektrum lépe čitelné (jednodušší a přehlednější), protože vesměs neobsahuje pásy vyšších harmonických a kombinačních módů.

4.3 Povrchová analýza

Pro studium pasivní vrstvy budou využívány povrchové analytické metody, které poskytují detailní informace o vlastnostech tenkých filmů a povlaků (např. povaha chemické vazby povrchových atomů a ***jejich zastoupení ve vrstvě)***. Nevýhodou těchto metod je, že mohou sledovat pouze malou plochu vzorku a lokální problémy, jako jsou vměstky, důlky apod., mohou být snadno přehlédnuty. Existuje celá řada metod pro analýzu povrchu tenkých filmů a povlaků. Do této skupiny patří například Augerova elektronová spektroskopie (***AES***), hmotnostní spektroskopie sekundárních iontů (SIMS) a rentgenová fotoelektronová spektroskopie (XPS).

Metoda XPS představuje metodu, která může být využita pro kvalitativní, kvantitativní i strukturní analýzu z povrchové vrstvy o tlouštce cca 5 - 10 nm. Pomocí této metody je možné například stanovit přítomnost uhlíku a z posunu energií se dá určit, zda se jedná o volný uhlík nebo uhlík vázaný v karbidech. Měření XPS poskytuje kvalitativní a kvantitativní informace téměř o všech prvcích (mez detekce prvků je cca 0,1 at. %) kromě H a He, které nemají vnitřní hladiny. Současně metoda umožňuje získat informace o elektronové struktuře, organizaci a morfologii povrchu. Destruktivním odprašováním povrchu argonovými ionty je možné zjistit koncentrační hloubkový profil povrchu.

Metoda AES využívá pro analýzu povrchu Augerové elektrony, které jsou vyzářeny z povrchu vlivem bombardování svazkem elektronů o vysoké energii. AES umožňuje detekovat jednotlivé atomy, ale pro kvantitativní hodnocení je třeba použít kalibrační standardy. Informace lze získat z extrémně tenké povrchové vrstvy od cca 2 nm. V případě nevodivých vzorků jsou nutné speciální postupy.

Metoda SIMS je velice citlivá metoda, jejíž detekční limit se pohybuje v rozsahu ppm až ppb. Aby bylo možné vyjádřit přítomné prvky kvantitativně, je třeba použít standardy.

Primárním činidlem této metody jsou ionty, které bombardují povrch leštěného vzorku, ze kterého se uvolňuje iontový analytický signál, který je analyzován hmotnostním spektrometrem. Tato metoda umožňuje získat např. chemické mapy a profily a hmotnostní spektrum. Vzhledem k tomu, že iontový paprsek nelze zaměřit s takovou přesností jako elektronový, není laterální rozlišení metody SIMS tak dobré jako v případě AES.

5. Závěr

Výzkum hlubinného úložiště v ČR obsahuje doposud spousty neznámých parametrů, které budou vyžadovat mnoho změn technologického řešení nejen z hlediska volby materiálu.

Pro aplikování elektrochemických technik in-situ se v současné době v rámci projektu SUSEN připravuje návrh elektrochemické cely umožňující dlouhodobá laboratorní měření v anaerobních boxech spolu s návrhem přístrojového vybavení pro laboratoř anaerobní koroze. Součástí laboratoře budou i analytické přístroje zajišťující nezbytné analýzy pro zajištění výzkumu studia korozního prostředí zejména v oblasti hydrogeologie, geochemie a studia korozních produktů.

V budoucnu se uvažuje o vytvoření návrhu na systém kontejneru pro elektrochemická měření (EIS, metoda elektrochemického šumu) v podzemní laboratoři (on-site). Elektrochemická měření on-site jsou experimentálně náročná. Lze očekávat výrazné vysokofrekvenční zkreslení impedance systému, způsobené parazitickou kapacitancí elektrodových přívodů (vzhledem k jejich značné délce). Použitelnost vysokofrekvenčních dat, ze kterých lze získat například důležité parametry oxidických pasivních a korozních vrstev je proto nejistá. Z těchto důvodů bude vhodné zkonstruovat identický systém kontejneru, který bude sloužit k paralelním dlouhodobým měřením v laboratorních podmínkách (za stejné teploty, v bentonitovém loži, při dokonalém zavodnění).

Tato práce vznikla za podpory projektu SUSEN CZ.1.05/2.1.00/03.0108 (ERDF).

6. Literatura

1. Lietava P, Hercík M, Marková L, Skopový J, Vokál A, et al. 2006. Referenční projekt, Příloha č. 1 - Zadávací bezpečnostní zpráva
2. Kursten B, Smailos E, Azkarate I, Werme L, Smart NR, Santarini G. 2003. Final Report -Cobecoma, *EUROPEAN COMMISSION 5th EURATOM FRAMEWORK PROGRAMME 1998-2002*,.
3. Carlson L, Karnland O, Oversby VM, Rance AP, Smart NR, et al. 2007. Experimental studies of the interactions between anaerobically corroding iron and bentonite. *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C* 32:334-45
4. Féron D, Crusset D, Gras J-M. 2008. Corrosion issues in nuclear waste disposal. *Journal of Nuclear Materials* 379:16-23
5. King F. 2012. 5.17 - Waste Containers. In *Comprehensive Nuclear Materials*, ed. JMK Editor-in-Chief: Rudy:421-50. Oxford: Elsevier. Number of 421-50 pp.
6. Hausmannová L, Šťástka J, Vašíček R. Použití bentonitu v konstrukci hlubinného úložiště radioaktivního odpadu. *Proc. Odpadové forum*, *Kouty nad Desnou*, *2011*:
7. Landolt D, Davenport A, Payer J, Shoesmith D. 2009. A review of Materials and Corrosion Issues Regarding Canisters for Disposal of Spent Fuel and High-level Waste in Opalinus Clay
8. Shoesmith DW. 2006. Assessing the Corrosion Performance of High-Level Nuclear Waste Containers. *Corrosion* 62:703-22
9. Bennett DG, Gens R. 2008. Overview of European concepts for high-level waste and spent fuel disposal with special reference waste container corrosion. *Journal of Nuclear Materials* 379:1-8
10. King F. 2009. Microbiologically Influenced Corrosion of Nuclear Waste Containers. *Corrosion* 65:233-51

DETEKCE A MĚŘENÍ IONIZUJÍCÍHO ZÁŘENÍ V CENTRU NAKLÁDÁNÍ S RADIOAKTIVNÍMI ODPADY

Josef Mudra
ÚJV Řež, a. s.

Abstrakt

ÚJV Řež, a.s. zajišťuje komplexní služby v oblasti nakládání s institucionálními radioaktivními odpady (RAO), které pochází z výzkumu, průmyslu nebo zdravotnictví. Během celého procesu nakládání s RAO jsou prováděna dozimetrická měření zdrojů ionizujícího záření (ZIZ), dozimetrické monitorování pracoviště a osob a monitorování okolí pracoviště. Na pracovišti se provádí jak základní, tak i doplňková měření ZIZ. Mezi základní měření patří: měřením příkonu dávkového ekvivalentu, měření povrchové kontaminace (přímé i nepřímé měření), laboratorní gamaspektrometrické měření, rutinní měření celkové aktivity alfa i beta/gama kapalných vzorků aj. V případě, že základní měření jsou nedostatečná, zejména se to týká velkoobjemových vzorků, provádí se další doplňková měření. Doplňková měření se dělí na nedestruktivní metody (bez porušení měřeného objektu bez vzniku sekundárního RAO, např. pomocí segmentového gama-scanneru či digitální radiografie) a destruktivní metody (odebraný vzorek z měřeného materiálu je analyzován vhodnými radio-analytickými metodami). V rámci dozimetrického monitorování pracoviště je prováděno on-line monitorování radiační situace na pracovišti stacionárním dozimetrickým systémem, kde se měří PDE a objemová aktivita aerosolů ve vzduchu na pracovišti. Vnější ozáření pracovníků je sledováno pomocí filmového, termoluminiscenčního a signálního elektronického dozimetru. Rutinně je prováděno měření povrchové kontaminace pracovníků při a po práci s otevřenými ZIZ. Pro zjištění případné vnitřní kontaminace podstupují pracovníci pravidelné gamaspektrometrické měření na celotělovém počítači. V rámci monitorování okolí pracoviště se ve vybraných měřících bodech monitorují výpusti (plynné, kapalné), obsahy radionuklidů v podpovrchových vrtech a pole ionizujícího záření.

1. Úvod

Centrum nakládání s radioaktivními odpady (Centrum), jako součást společnosti ÚJV Řež, a.s. (ÚJV), zajišťuje komplexní služby v oblasti nakládání s institucionálními radioaktivními odpady (RAO), které pochází z výzkumu, průmyslu nebo zdravotnictví. Během celého procesu nakládání s RAO jsou prováděna dozimetrická měření zdrojů ionizujícího záření (ZIZ), dozimetrické monitorování pracoviště a osob a monitorování okolí pracoviště.

Ionizující záření (IZ) je takové záření, které způsobuje při průchodu látkou ionizaci jejich atomů a molekul. IZ se dělí na přímo ionizující (α, β záření) a nepřímo ionizující (neutronové a γ záření). Každý z typů záření má jiné vlastnosti a charakteristiky. Důležitou vlastností z hlediska ochrany před IZ je lineární přenos energie (LET) a dolet různých typů záření. Alfa záření má nejkratší dolet, ale vysoký LET, tudíž vysokou radiobiologickou účinnost (ve vzduchu dolet do několika cm, úplné odstínění např. papírem). Beta záření má střední dolet (ve vzduchu i několik metrů, odstínění především lehkým materiálem s nízkým Z odpovídající tloušťky např. hliník, či plexisklo a v další vrstvě materiál s vysokým Z pro odstínění brzdného záření), malý LET energie a malou radiobiologická účinnost. Gama záření má dlouhý dolet (ve vzduchu stovky metrů, odstínění: materiály s vysokým Z – olovo, wolfram, ochuzený uran) malý LET a malou radiobiologickou účinnost.

2. Základní charakteristiky radionuklidů a výběr vhodného detektoru

Široké spektrum radioaktivních látek v různých oblastech lidské činnosti má za následek rozsáhlé spektrum radionuklidů, se kterými se můžeme setkat v kontaminovaných materiálech a ve ZIZ. Na základě vlastností analyzovaných radionuklidů (emitovaného záření, jeho energii a pravděpodobnosti emise) a analyzovaného materiálu se pomocí vhodného postupu vyberou měřící metody a vhodná zařízení. Veličina charakterizující ZIZ je aktivita (celková, plošná, hmotnostní, objemová), veličina charakterizující účinek IZ na látku je

dávka, resp. dávkový příkon a veličina označující účinek IZ na organismus se souborně označuje jako osobní dávka charakterizující míru zevního i vnitřního ozáření jednotlivé osoby.

Všechny měřící přístroje pro detekci IZ musí být používány ve shodě se zákonem o metrologii číslo 505/1990 Sb. v aktuálním znění.

3. Radiační charakterizace ZIZ

3.1. Detekce záření

Základní měření ZIZ se provádí pro získání prvotních informací o daném ZIZ. Používá se ke kvalitativnímu určení přítomnosti radioaktivních látek emitujících detekovatelné záření (pronikavé gama a neutronové záření) a k jejich lokalizaci. K tomuto účelu se používají obvykle velmi citlivé detekční zařízení s krátkou dobou odezvy a detektory velkého objemu, ale samozřejmě je možné použít jakýkoliv podobný přístroj. Měřenou veličinou je většinou četnost v jednotkách s^{-1}, resp. cps. Na základě tohoto měření se rozhoduje o použití vhodného způsobu radiační ochrany při nakládání se ZIZ. Před vlastním základním měřením je zapotřebí zjistit radiační situaci na měřeném místě, tj. provést důkladnou analýzu pozadí ve veličinách ve kterých se bude daný objekt měřit, což ovšem obecně platí pro měření IZ.

3.2. Měření dávkového příkonu

Měření dávkové příkonu je rychlou a jednoduchou metodou zjištění intenzity emitovaného IZ z daného typu ZIZ. Mezi tradiční přenosné přístroje pro měření dávkového příkonu patří přístroje s Geiger-Müllerovými a proporcionálními detektory. Tyto přístroje zobrazují okamžité hodnoty dávkového příkonu. Obecně tato veličina popisuje radiační situaci v měřeném místě. U ZIZ se dávkový příkon měří nejčastěji ve vzdálenostech: na povrchu, v 10 cm, v 1 m a 2 m. Měřenou veličinou je obvykle příkon dávkového ekvivalentu (Sv/h) nebo příkon kermy (Gy/h).. Pro detekci gama záření existuje celá řada měřících přístrojů od různých firem, které se liší svými vlastnostmi, rozsahem a velikostí energií, které lze detekovat. V Centru jsou používány např. následující detekční systémy:

- **Thermo FH 40 G** – použitelné pro ruční dohledání zdrojů s emitujícím gama záření o energii větší než 30 keV
  - Rozsah měření: 0,1 μSv/h – 100 mSv/h,
    s teleskopickou sondou FH 40 FE - 0,1 mSv/h – 10 Sv/h
- **Eberline FHT 1376** – vhodný pro monitorování životního prostředí vzhledem k obsaženému zařízení GPS pro určování polohy, pro dohledání zdrojů s emitujícím gama záření o energii větší než 100 keV,
  - Rozsah měření: 100 nSv/h – 100 mSv/h s FH 40 G

3.2. Měření povrchové kontaminace

Měření povrchové kontaminace se používá ke zjištění míry kontaminace radionuklidy daného povrchu ZIZ. Při měření povrchové kontaminace se používají dva způsoby: přímé měření a nepřímé měření pomocí stěrů (suchý nebo vlhký).

3.2.1 Přímé měření

Přímé měření se používá u rovných a přístupných povrchů měřených materiálů, které se provede pomocí vhodného přístroje s vhodným detektorem pro měření plošné kontaminace. Pro měření povrchové kontaminace se obvykle používají ionizační komory, proporcionální počítače plněné různými plyny (xenon, butan, směs argon/metan). V případě kontaminace ^{3}H se používá speciální detektor na měření ^{3}H. Měřenou veličinou je povrchová kontaminace v jednotkách plošné aktivity (např. Bq/cm^2). Pro měření povrchové kontaminace jsou v Centru používány např. tyto měřící přístroje:

- **S.E.A CoMo 170** – použitelný pro přímé měření rovných kontaminovaných povrchů, s externí sondou možnost měřit vnitřní povrchy potrubí, plocha detektoru 170 cm^2
    - Současné zobrazení alfa i beta/gama kontaminace
- **Thermo FHT 111 M** – použitelný pro přímě měření rovných kontaminovaných povrchů, používané detektory xenonový a butanový. Tyto detektory mají plochu 166 cm^2
    - Rozsah měření: 0 – 19 999 Bq/cm^2
- **Berthold LB 122** – použitelný pro měření rovných kontaminovaných povrchů, používaný detektor butanový
    - Rozsah měření 0 – 9999 kBq/ cm^2

3.2.2 Nepřímé měření pomocí stěrů

Nepřímé měření povrchové kontaminace pomocí stěrů se používá u nerovných nebo nepřístupných povrchů měřených materiálů, pokud je vysoké pozadí beta/gama záření v místě měření a nebo při zjišťování uvolnitelné resp. fixované kontaminace. Rozlišují se dva druhy stěrů a to suchý a vlhký stěr. Stěr se provádí z definované plochy (obvykle 300 cm^2), přičemž vlhký stěr (tampon, tork, atd. navlhčený v etanolu) je obtížné použít při podezření na kontaminaci radionuklidy emitujícími α záření). Zjištění aktivity radionuklidů na stěru se provede přímým měřením povrchové kontaminace nebo pomocí laboratorní analýzy. Výpočtem se stanoví plošná kontaminace v Bq/m^2, resp. Bq/cm^2.

3.3. Gamaspektrometrie

Základní úlohou gamaspektrometrie je stanovení intenzity a energie jednotlivých skupin fotonů záření gama vyzářených zkoumaným radionuklidem. Jednotlivé energetické skupiny fotonů gama se ve spektru zobrazují jako příslušné píky daného radionuklidu. Energie záření určuje polohu píku na vodorovné ose spektra a intenzita určuje plochu (integrál) pod píkem.

Pro měření pomocí gamaspektrometrie se používají nejčastěji polovodičové detektory (např. super čistý germaniový (HPGe) detektor s dostatečnou relativní účinností) a scintilační detektory (např. NaI(Tl), CsI, apod.). Výsledkem měření pomocí gama spektrometrie je informace o radionuklidovém složení měřeného objektu a o měrné aktivitě jednotlivých radionuklidů.

4. Nedestruktivní analýza

V případě, že základní měření jsou nedostatečná, zejména se to týká velkoobjemových vzorků, provádí se další doplňková měření. Metodou první volby jsou nedestruktivní postupy měření bez poškození měřeného objektu za použití gamaspektrometrie (segmentového gamma-scanneru), digitální radiografie nebo transmisní (emisní) tomografie.

4.1. Segmentový gamma-scanner (SGS)

V Centru je pro gamaspektrometrickou analýzu velkoobjemových ZIZ používán segmentový gamma-scanner (SGS). SGS je dimenzován pro měření ZIZ o hmotnosti až 600 kg s max. průměrem měřeného objektu 60 cm. SGS je složen z mechanické točny, která umožňuje otáčet měřeným objektem (např. ZIZ), „kolimátoru“, jež umožňuje posouvat detektor s kolimátorem ve vertikálním směru až do výšky 80 cm (obsahuje HPGe detektor s relativní účinností 40%) a posuvného rámu umožňující posouvat kolimátorem v horizontální poloze až do 100 cm od měřeného objektu. Celý systém je softwarově ovládán z PC. Základní programové vybavení obsahuje software Genie 2000 a ISOCS.

Měření probíhá tak, že se spektrometricky měří rozložení gama záření na povrchu měřeného objektu. Typicky se měří gama spektrum ve 12 x 12 segmentech s tím, že zároveň vzniká tzv. součtové spektrum. Analýzou součtového spektra jsou nalezeny radionuklidy obsažené uvnitř měřeného objektu emitující gama záření o dostatečné energii a intenzitě. Následně se provádí analýza jednotlivých segmentových spekter, kde

se pouze sleduje měřená intenzita vybraných radionuklidů. Výsledkem je obrázek distribuce jednotlivých radionuklidů uvnitř měřeného objektu (průmět rozložení na povrch obalu). Na základě distribuce radionuklidů se odhadne jeho vnitřní struktura a následně se z hmotnosti objektu vypočítá průměrná hustota. Pomocí software ISOCS se odhadne aktivita jednotlivých radionuklidů v měřeném objektu.

4.2. Digitální radiografie

V případě, kdy ZIZ má složitou vnitřní strukturu se silnou nehomogenitou hustoty a nehomogenním rozložením radionuklidů, je zapotřebí získat další potřebné informace o měřeném objektu. V tomto případě se dá použít digitální radiografie (DR). Princip DR je založen na prozařování zkoumaného objektu IZ (např. ^{60}Co, záření X) na vhodný detektor (např. plastický scintilační detektor nebo film), kde se po vhodném zpracování zobrazí struktura měřeného objektu. Výsledkem je rozložení hustoty uvnitř objektu ve vertikálním řezu. Z dvou pozic vzájemně na sebe kolmých se získají dva obrázky hustoty a tak je možné odhadnout tvary jednotlivých hustotních nerovností.

V Centru je používána DR pro monitorování obsahu sudů s RAO. Základními součástmi zařízení je uzavřený zdroj ionizujícího záření ^{60}Co o max. aktivitě 100 GBq, který slouží k prozařování objektu a plastický scintilační detektor. DR je stejně jako SGS dimenzována pro měření objektů o hmotnosti max. 600 kg. Rozlišení je maximálně 3 mm a více, což je dáno průměrem wolframového kolimátoru. Naměřená data jsou zpracovávána v PC, které slouží zároveň k ovládání zařízení. Výsledek z DR je porovnáván s výsledkem ze SGS, je použit pro úpravu modelu v ISOCSu (SGS) a na základě těchto informací je spočítána přesnější hodnota měrné aktivity měřeného objektu.

5. Destruktivní analýza

Jestliže kontaminovaný materiál obsahuje radionuklidy s emisí alfa nebo beta záření bez doprovodného gama záření o dostatečné energii a intenzitě nebo neumožňuje-li geometrické uspořádání provést nedestruktivní analýzu, provádí se analýza destruktivní. Z měřeného materiálu je odebrán vzorek, který je analyzován fyzikálně chemickými radio-analytickými metodami. Po chemické přípravě vzorku se provádí měření radionuklidů pomocí Geiger-Müllerova počítače; kapalinové scintilační měřící metody; alfa, gama polovodičové spektrometrie, atd.

6. Radiační monitorování pracoviště a osob

Monitorování pracovitě a osob se dělí na monitorování pracovitě, osob, okolí pracoviště a výpustí.

6.1. Dozimetrické monitorování pracoviště

V rámci dozimetrického monitorování pracoviště a osob v Centru jsou vybraná pracoviště on-line monitorována prostřednictvím stacionárního dozimetrického systému (SDS), kde se měří PDE a objemová aktivita aerosolů ve vzduchu na pracovišti. Každý, kdo vstupuje do kontrolovaného pásma si může pomocí SDS zjistit aktuální radiační situaci na pracovišti. Dále je SDS vybaven světelnou a akustickou signalizací poruchy, překročení záznamové či vyšetřovací úrovně PDE a objemové aktivity celkové alfy a bety.

Během prací se ZIZ se standardně provádí monitorování PDE, objemové aktivity vzduchu odběrem vzdušiny pomocí filtrů na referenčním místě a po ukončení prací, resp. ve stanovených termínech se provádí proměření povrchové kontaminace podlah, povrchů, pracovních a ochranných pomůcek a prostředků.

6.2. Dozimetrické monitorování osob

V rámci dozimetrického monitorování osob se provádí vyhodnocování osobních dávek, které pracovníci obdrželi za měsíc, resp. kalendářní rok nebo v období 5 po sobě jdoucích kalendářních roků. Tyto

dávky musí být nižší než základní limity pro radiační pracovníky stanové vyhláškou Státního úřadu pro jadernou bezpečnost o radiační ochraně číslo 307/2002 Sb. ve znění vyhlášky číslo 499/2005 Sb.

Pro zjištění vnějšího ozáření pracovníků jsou pracovníci vybaveni osobními dozimetry. Osobní dozimetr se nosí na nejvíce ozařovaném místě těla, zpravidla na levé straně hrudi, tzv. referenční místo. Základním osobním dozimetrem je filmový dozimetr, který slouží k monitorování záření gama, beta, neutronů a záření X. Pro havarijní případy se obvykle používá termoluminiscenční dozimetr, který existuje ve trojím provedení: standardní, prstencový a neutronový a zpravidla se nosí současně s filmovým dozimetrem. Pokud se radiační pracovních pohybuje v poli ionizujícího záření o PDE vyšším než 1 mSv/h musí být vybaven také operativním – přímoodečítacím dozimetrem, např. signálním elektronickým dozimetrem. Výhodou tohoto typu dozimetru je zjištění aktuálního PDE a získané osobní dávky za dobu pobytu v poli ionizujícího záření.

Na výstupu z kontrolovaného pásma je pracovník po ukončení prací proměřen dozimetristou na přítomnost povrchové kontaminace na oděvu, kůži, rukou a obuvi. Zpravidla jsou na výstupech z kontrolovaného pásma instalovány stacionární monitory povrchové aktivity pro měření kontaminace α a β/γ radionuklidů povrchu celého těla nebo obuvi a rukou.

Míra vnitřní kontaminace (úvazek efektivní dávky) se zjišťuje několika postupy gamaspektrometrickým měřením na celotělovém počítači (CTP) a příjem obtížně detekovatelných radionuklidů analýzou extretů (moč, stolice, hlenů). Pomocí CTP se stanovuje úvazek efektivní dávky prostřednictvím celkové aktivity radionuklidů emitujících gama záření o dostatečné energii a intenzitě (např. aktivity radiojodu ve štítné žláze). Analýzou exkretů se zjišťuje např. obsahu tritia nebo stanovení alfa radionuklidů.

7. Dozimetrické monitorování okolí pracoviště a výpustí

Monitorování okolí se zavádí na všech pracovištích se ZIZ, kde existuje možnost úniku závažného množství radionuklidů do životního prostředí (ŽP). V rámci monitorování okolí pracoviště se ve vybraných měřících bodech se stanovanou periodicitou měření monitoruje pole ionizujícího záření (PDE) a výskyt radionuklidů v jednotlivých složkách ŽP (půda, flora, fauna, atd.). Monitorování okolí pracoviště slouží k ověření neakumulování vypouštěných radionuklidů v jednotlivých složkách ŽP a ke kontrole dodržování povolených hodnot výpustí, včasnému zjištění úniku radionuklidů a k potvrzení bezpečnosti pracoviště ve vztahu k okolí.

Monitorování výpustí se zavádí na všech pracovištích se ZIZ, kde se zneškodňují látky kontaminované radionuklidy jejich řízeným vypouštěním a kde existuje možnost úniku závažného množství radionuklidů do ŽP.

V rámci monitorování výpustí (plynných, kapalných), které se monitorují ve vybraných měřících bodech se zjišťují okamžité změny aktivit vypouštěných radionuklidů a současně i jejich množství z důvodu stanovení radiační zátěže vyplývající z výpustí na jedince kritické skupiny obyvatelstva. Jedná se o monitorování nepřetržité se zabezpečením sledováním reprezentativních radionuklidů nebo jejich skupin a dále bilanční monitorování výpustí.

8. Závěr

V příspěvku jsou uvedeny metody detekce a měření ionizujícího záření, které zahrnují základní měření (PDE, povrchová kontaminace), nedestruktivní a destruktivní analýzu, dále dozimetrické monitorování pracoviště, osob, okolí pracoviště a výpustí. Všechna tato měření ionizujícího záření a monitorování mají za cíl zajistit vysokou úroveň radiační ochrany jak pracovníků se ZIZ, tak i obyvatelstva a ochranu životního prostředí.

PROBLEMATIKA VYSOKOTEPLONÍ KOROZE ZIRKONIA

Jan Škarohlíd, Radek Škoda, Radek Kazda
ČVUT Praha
Fakulta strojní

Abstrakt

Zirkoniové slitiny jsou zastoupeny v téměř všech komerčně provozovaných jaderných reaktorech, kde slouží k pokrytí palivových tablet, nebo jako konstrukční materiál palivových souborů. Své uplatnění si našly především díky dobrým mechanickým vlastnostem, korozní stálosti, odolnosti vůči radiačnímu poškození a také díky nízké absorpci neutronů. Mezi existující, leč výhody nepřevyšující, nevýhody zirkoniových slitin patří zejména: PCI (Pellet Cladding Interaction), IASCC (Irradiation Assisted Stress Corrosion Cracking) a vysokoteplotní oxidace zirkonia. Vysokoteplotní oxidace je silně exotermní reakce mezi zirkoniem a vodou probíhající při teplotách nad 800 °C. Během této reakce se uvolňuje vodík a nezanedbatelné množství tepla. Vznikající vodík, reakcí uvolněné teplo a poškození pokrytí paliva mohou prohloubit závažnost a následky případné havárie. Problematika vysokoteplotní oxidace je celosvětově intenzivně studována. V současnosti je též snaha vyvinout technologie, které zamezí, či omezí vysokoteplotní oxidaci, ať již úplnou náhradou zirkonia jiným materiálem, nebo povrchovou úpravou bránicí vysokoteplotní oxidaci zirkonia.

Zirkoniové slitiny

Zirkoniové slitiny se celosvětově používají ve všech typech jaderných reaktorů zejména jako konstrukční slitina pro pokrytí tablet jaderného paliva, ale i jako další konstrukční prvky aktivní zóny, jako jsou distanční mřížky, či celé tlakové kanály. Svou pozici si získaly především díky nízké parazitní absorpci neutronů a vysoké odolnosti vůči radiačnímu poškození. Zirkoniové slitiny vynikají též dobrými mechanickými vlastnostmi a korozní stálostí, které si zachovávají i během dlouhodobého vystavení náročným podmínkám v jaderného reaktoru. Jednotlivé slitiny se liší jak dle výrobcem použitých technologií tak i v chemickém složení. V tabulce na Obr. 1. je uveden přehled ve světě používaných zirkoniových slitin.

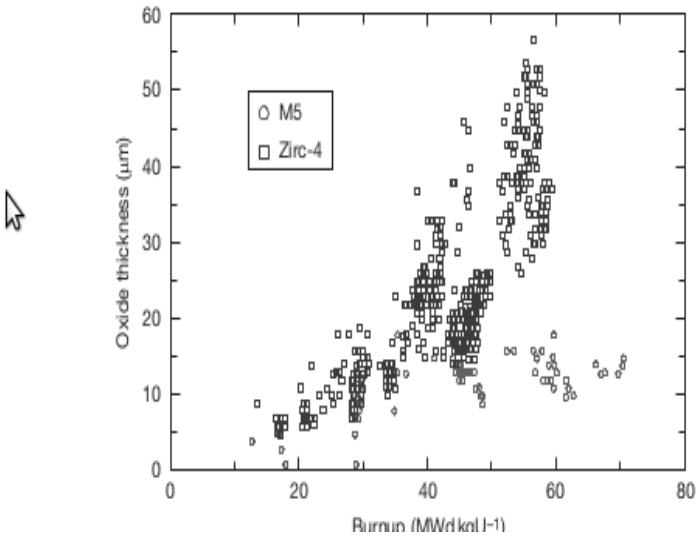
Table 1 Composition of the Zr alloys of industrial use (concentration in wt% or ppm)

	ASTM	*Sn*	*Nb*	*Fe*	*Cr*	*Ni*	*O*	*S*
Zircaloy-2	R 60802	1.2–1.5		0.07–0.2	0.1	0.05	0.12	
Zircaloy-4	R 60902	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	
Zr 2.5Nb	R 60904		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	

Obr. 1 - Přehled Zr slitin [1]

Koroze zirkoniových slitin

Během provozu v jaderném reaktoru jsou zirkoniové slitiny vystaveny extrémním podmínkám. Již z výroby mají zirkoniové slitiny malou pasivační vrstvu oxidu o tloušťce cca 3 až 5 μm. Tato tenká vrstva oxidu chrání samotnou slitinu, před další oxidací a rychlost oxidace je pak limitována rychlostí difúze kyslíku skrze pasivační vrstvu ZrO_2. Na konci doby pobytu paliva v jaderném reaktoru je vrstva oxidu cca 20 μm v závislosti na typu reaktoru, typu slitiny, kvalitě vody v průběhu provozu a stupni vyhoření paliva. Tloušťky oxidické vrstvy v závislosti na vyhoření jsou patrné v grafu na obr. 2.



Obr. 2 - Tloušťka oxidické vrstvy v závislosti na vyhoření [1]

Negativní jevy u Zr slitin

Pellet-Cladding-Interaction (PCI) je mechanicko-chemický proces při kterém dochází k intenzivní korozi vnitřní strany pokrytí v místech, kde dochází ke kontaktu pelety a pokrytí. Pelety UO_2 mění během provozu reaktoru svůj objem i tvar. Kombinací několika faktorů dochází k napuchání (swelling) pelety a k nárůstu jejího objemu. Vlivem vysoké teploty pak peleta mění svůj tvar, tak že průměr na krajích pelety je větší než v jejím středu. Právě na krajích pelet dochází ke kontaktu s trubkou pokrytí. Zvýšené mechanické a tepelné namáhání společně s vlivem chemického působení některých štěpných produktů zde dochází k intenzivnější korozi pokrytí.

Difúzí vodíku rozpuštěného ve vodě primárního okruhu do zirkoniové slitiny dochází ke tvorbě hydridů, jejichž krystaly snižují pevnost pokrytí. Následkem je pak křehnutí materiálu a DHC (Delayed Hydride Cracking).

Vysokoteplotní koroze zirkonia

Na rozdíl od nízkých teplot kdy je zirkoniová slitina pokryta tenkou stabilní vrstvou oxidu zirkoničitého, který slouží jako pasivační vrstva chránící povrch slitiny před další oxidací, dochází při teplotách nad 800 °C k tzv. vysokoteplotní korozi, během které dochází k mechanickému selhání vrstvy oxidu doposud chránící kov před oxidaci. Jedná se o silně exotermickou a vysoce kinetickou reakci mezi zirkoniem a vodní párou, probíhající podle rovnice:

$Zr + 2H_2O \rightarrow ZrO_2 + 2H_2 + 5{,}8.10^6\ J.kg^{-1}$

Následkem reakce je tedy nejen vznik vodíku, který, coby výbušný plyn, je vážným rizikem v případě těžké havárie, ale i uvolnění velkého množství tepla, které dále komplikuje a prohlubuje průběh havárie. V neposlední řadě dochází k degradaci porytí paliva – jedné z ochranných bariér, která může vést až k jejímu porušení a následnému úniku štěpných produktů do primárního okruhu (Obr. 3. a Obr. 4.). V případě vysokoteplotní reakce s vodou (případ zaplavení přehřáté aktivní zóny vodou) dochází ke kalení (quenching) porytí, produkce vodíku je v tomto případě až desetinásobná. Problematika vysokoteplotní koroze tedy patří mezi významné a intenzivně studované oblasti pro případy zvládání jak havárii LOCA tak i pro případy nadprojektových havárií.

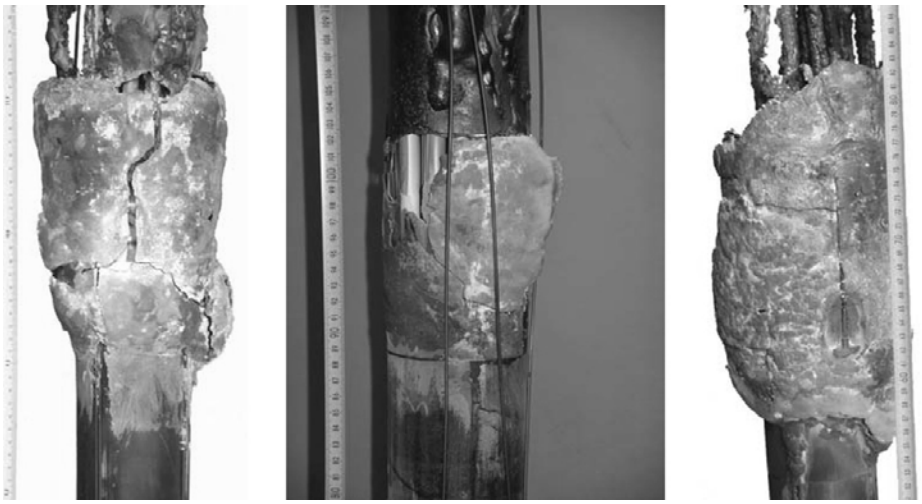
Mezi studované scénáře patří

I) Reakce s vodní párou – simuluje případ havárie LOCA, kdy dochází odpařování vody z AZ a k expozici žhavého pokrytí vodní páře.
II) Reakce s vodou – tato situace nastává v okamžiku, kdy jsou aktivovány bezpečnostní systémy pro znovuzaplavení aktivní zóny vodou.

III) Třetí scénář, většinou označován jako „Bazén vyhořelého paliva“ popisuje případy, kdy mezi obnažením pokrytí paliva a jeho znovuzaplavením vodou je palivo vystaveno působení vzduchu.
IV) Vliv dalších částí AZ, zejména B_4C, který se používá jako absorbátor neutronů v regulačních tyčích, působí jako tavidlo a výrazně snižuje teplotu tání některých slitin použitých v AZ.

Mezi nejvýznamnější faktory ovlivňující vysokoteplotní korozi patří především teplota – s rostoucí teplotou roste i kinetika reakce. Dalšími ovlivňujícími faktory pak jsou: doba expozice na vzduchu (tvorba nitridů), doba pobytu v reaktoru a další.

Obr. 3 - Olupování vrstvy oxidu [2]


Obr. 4 - Silné poškození modelu palivové kazety [3]

Budoucnost

Havárie v Japonské jaderné elektrárně Fukušima Daiči znovu vyvolala otázku, zda je současné zirkoniové pokrytí dostatečně bezpečné a mnoho výzkumníků po celém světě začalo hledat alternativy. Jednou z možností je kompletní náhrada Zr slitin něčím novým. Jako nejperspektivnější materiál se jeví silikon karbid (SiC), který má jak vyhovující mechanické, tak i korozní a neutronové vlastnosti. Bohužel jeho výrazným nedostatkem je porozita projevující se při vysokých teplotách. A právě nedostatečná hermetičnost pokrytí vede k další perspektivním návrhům pokrytí, založených především na vícevrstvých kombinacích různých forem silikon karbidu, zirkonia, případně jiných materiálů. Další možností je povlakování stávajících zirkoniových slitiny, tj. vytvoření ochranného keramického či jiného povlaku na povrchu zirkoniové trubky.

Literatura

[1] Konings, R. Comprehensive nuclear materials, 2012, Elsevier
[2] Steinbrück, M. Status of studies on high-temperature oxidation and quench behavior of Zircaloy-4 and E110 cladding alloys. EMSAR 2008
[3] Selpold, L. Severe fuel damage experiments performed in the QUENCH facility with 21-rod bundles of LWR-type. Nucl. Eng. And Des. 237 (2007)

VPLYV PRÍDAVKU FLUORIDU CHROMITÉHO DO MODELOVEJ TAVENINY $(LIF\text{-}NAF\text{-}KF)_{EUT.}$ NA KORÓZIU ZLIATINY INOLOY 800H/HT

Viliam Pavlík, Martin Kontrík, František Šimko
Slovenská Akadémia Vied, Bratislava
Ústav Anorganickej Chémie

Abstrakt

Diplomová práca sa zaoberá skúmaním vplyvu prídavku fluoridu chromitého do eutektickej zmesi LiF-NaF-KF (46,5 – 11,5 – 42 mol %) na koróziu superzliatiny Incoloy 800H/HT statickými testami. Bol meraný korózny úbytok zliatiny a skúmaný druh korózneho napadnutia. Zistilo sa, že prídavok CrF_3 do zmesi všeobecne zvyšuje koróziu materiálu. Boli zistené rôzne trendy koróznych úbytkov v závislosti od prídavku fluoridu chromitého a naznačené technologicky významné body – oblasti. Prvá je oblasť, kde korózia materiálu začína rapídne narastať a druhou je oblasť, kde trend korózie klesá a nastáva potenciálne nasýtenie korózneho média. Na vzorkách bolo pozorovaných viacero druhov korózneho napadnutia. Na povrchu bola zistená škvrnitá, jamková a transkryštálová korózia, na rezoch vzoriek podpovrchová korózia a korózia po vrstvách.

1. Úvod do problematiky

S rastúcim trendom spotreby a ceny elektrickej energie vzniká potreba zvyšovania účinnosti jej výroby. Z hľadiska udržateľnosti rozvoja je potrebné hľadať nové zdroje energie alebo zefektívniť zdroje využívané doteraz. Jadrové elektrárne majú potenciál produkovať dostatočné množstvo elektrickej a tepelnej energie nielen pre domácnosti ale aj pre priemyselné procesy, medzi ktoré patrí napríklad aj výroba vodíka [1]. Jedným z hlavných problémov výroby elektrickej energie z jadra je produkcia nebezpečného odpadu. V súčasnosti sú vyvíjané jadrové reaktory tzv. IV. generácie, ktorých hlavnou úlohou bude zefektívniť proces výroby elektrickej energie, eliminovať vznik vysoko rádioaktívneho odpadu, tiež budú mať dlhý životný cyklus reaktora a zároveň budú ako bezpečnejšie, tak aj spolahlivejšie spolu s nízkou ekonomickou náročnosťou [2]. Jedným z plánovaných variantov sú systémy reaktorov chladených roztavenými soľami. Výhody použitia roztavených solí spočívajú hlavne v ich vysokej špecifickej tepelnej kapacite a radiačnej stálosti. Nevýhodou sú ich korozívne vlastnosti voči konštrukčným materiálom [3, 4, 5]. Roztavená soľ LiF-NaF-KF (FLiNaK) je eutektická zmes troch fluoridov so zložením 46,5 mol % LiF – 11,5 mol % NaF – 42 mol % KF. Je veľmi dobre použitelná pre vysokoteplotné aplikácie, nad 850°C [6]. Má vysokú tepelnú vodivosť, nie je však vhodný pre použitie ako primárne chladiace médium, kvôli vysokému neutrónovému prierezu [7]. Uvažuje sa hlavne ako sekundárne chladiace médium a je tiež veľmi vhodná pre počiatočné štúdie, pretože princípy uplatnené pri jej výskume (napr. odolnosti voči korózii) môžu byť uplatnené aj pre iné systémy solí [5].

Z oblasti použiteľných materiálov sa ako najodolnejšie materiály javia superzliatiny na báze niklu, ktoré boli vyvíjané pre rôzne aplikácie nielen v jadrovom ale aj v leteckom a chemickom priemysle. Napriek ich zvýšenej odolnosti voči korózii, stále podliehajú koróznemu napadnutiu a pri pomalej kontaminácii korózneho média vzniká zdroj znečistenia, ktorý sa musí priebežne odstranovať, inak môže mať další vplyv na priebeh korózie.

Doteraz nebol detailnejšie popísaný vplyv kontaminantov z niektorých superzliatin na koróziu vo fluoridových taveninách. Cieľom diplomovej práce preto bolo skúmanie vplyvu prídavku fluoridu chromitého ako umelého kontaminantu na koróziu superzliatiny Incoloy 800H/HT a určenie druhu korózneho napadnutia pomocou skenovacej elektrónovej mikroskopie.

2. Ciele práce a metodika

Cieľom práce bolo potlačiť koróziu materiálu v modelovej eutektickej tavenine LiF-NaF-KF zloženia 46,5 – 11,5 – 42 mol.%, s pracovným názvom FLiNaK. V tomto prípade sa zvolila zliatina Incoloy 800H/HT so zložením 48 – Fe, 20 – Cr, 29 – Ni, hmot.%. Na základe práce [10] sa zvolil bezvodý fluorid

chromitý ako umelý polutant, ktorý by mal zabezpečiť vytvorenie konečného stavu po korózii za istý časový interval. Ďalším cieľom práce bolo určiť vzájomný vplyv CrF_3 vo FLiNaKu na koróziu použitej zliatiny. Jedným zo spôsobov ako posúdiť tento vplyv bola vážková analýza materiálu. Tiež bolo za úlohu určiť druhy korózneho napadnutia vzoriek, ktoré sa vyhodnocovali pomocou skenovacieho elektrónového mikroskopu.

3. Príprava a priebeh experimentu

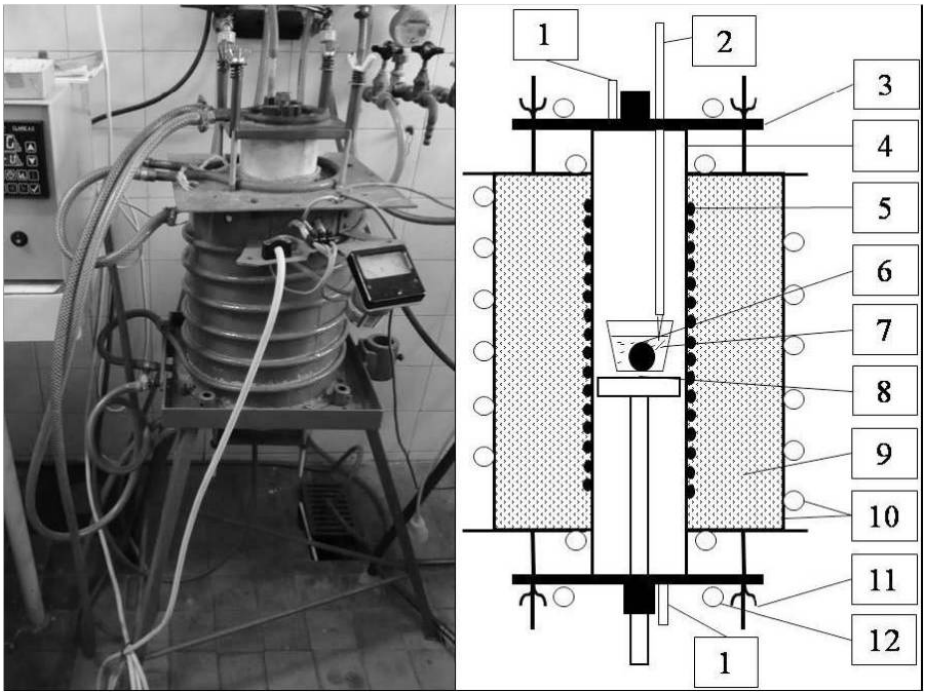
Zliatina Incoloy 800H/HT bola zakúpená od firmy BIBUS INCO ALLOYS AG, SK vo forme tyčoviny s priemerom 12 mm. Zloženie zliatiny sa určilo SEM-EDX analýzou. Výsledok analýzy sa nelíšil od certifikátu, dodaným výrobcom. Vzorky sa narezali a následne upravili podľa noriem STN 038102 a STN 038135. Mali presne definované rozmery, ich povrch bol zbavený nečistôt a drsnosť povrchu nepresahovala normu.

Pre experiment sa ako taveninová soľ použila eutektická zmes LiF-NaF-KF so zložením 46,5 mól. % LiF – 11,5 mól. % NaF – 42 mól. % KF. Zmes bola pripravená zmiešaním jednotlivých zložiek v pomere 29,212 hmot. % LiF – 11,694 hmot. % NaF – 59,094 hmot. % KF. Po miešaní sa následne drvila a homogenizovala v trecej miske. Príprava prebehla bez prístupu vzduchu v gloveboxe, pri ochrannej atmosfére, zabezpečenej inertným plynom (Ar, trieda 5,0).

Zmes LiCl-KCl so zložením 63,75 mól. % LiCl – 36,25 mól. % KCl bola použitá na čistenie vzoriek od fluoridových zvyškov. Pripravila sa zmiešaním jednotlivých látok v pomere 50 hmot. % LiCl ku 50 hmot. % KCl. Zmes sa zhomogenizovala a uložila do exikátore, kde bola pripravená na použitie.

Ohrev taveniny so vzorkami sa zabezpečil odporovou pecou, opatrenou programovatelným regulátorom teploty Clasic Clare 4.0 od výrobcu CLASIC CZ s.r.o., PtRh10-Pt termočlánkom a kontrolnou jednotkou prietoku argónu - FMA 5400/5500, firmy OMEGA (Obr. 1).

Na korózne testy sa uskutočnili v danej odporovej peci, ktorej pracovný priestor pozostával z keramickej trubice (4) ovinutej vinutím z kanthalu A1 s priemerom 1,5 mm (5). Uprostred sa nachádzal keramický podstavec (8), na ktorý sa pokladal téglik (7) so vzorkou (6). Mosadzné príruby (3) boli vybavené otvormi pre prívod a odvod argónu (1) a otvormi pre termočlánky (2). Uzávery boli chladené vodou (12). Utesnenie pece bolo zabezpečené tesniacimi krúžkami a prítlačnými pružinami (11). Izolácia plášťa (9) pece bola vyrobená z Martoxidu. Oceľový plášť (10) bol chladený vodou, prúdiacou cez potrubie, ovinutom po vonkajšom obvode pece.



Obr. 1 - Odporová pec a schéma pece

Pred experimentom sa v glove-boxe s inertnou atmosférou do kelímka navážilo 6g fluoridovej zmesi s vypočítaným množstvom fluoridu chromitého. Vzorka sa do každého kelímku vsunula tak, aby sa úplne pokryla danou zmesou. Trojica keramických kelímkov sa vložila do pece a zahriala na teplotu 650°C po dobu ôsmich hodín. V každom experimente bolo zakaždým použité rovnaké množstvo naváženého fluoridu chromitého vo všetkých troch kelímkoch, z dôvodu kontroly a priemerovaniu úbytku hmotností.

Po experimente sa vzorky zliatiny vytiahli z fluridovej zmesi a vložili na 5 až 10 minút do roztopenej zmesi chloridov, aby sa rozpustili zvyšky zatuhnutej taveniny. Následne sa vzorky opláchli vodou a vyčistili v ultrazvuku s frekvenciou 40 kHz, po dobu 30 minút.

4. Vyhodnotenie a diskusia

Pred experimentom sa jednotlivé vzorky odvážili na analytických váhach a odmerali rozmery pomocou mikrometrického meradla. Rovnaký postup sa uskutočnil aj po experimente. Z rozdieľov hmotností sa vyrátal úbytok hmotnosti zliatiny, vztiahnutý na jednotkovú plochu vzorky podľa normy STN 038102 – vyhodnocovanie korózných skúšok podľa korózných úbytkov. Výsledky sú uvedené v tabuľke 1. Sú zoradené podľa zvyšujúceho sa prídavku CrF_3 do FLINAKu.

Prídavok CrF_3 [mg]	**Priemerný úbytok hmotnosti [mg.cm^{-2}]**
0	0,9220 ± 0,044
7,9	1,1147 ± 0,148
15,8	1,3074 ± 0,009
31,6	2,2273 ± 0,258
47,3	2,9810 ± 0,195
62,9	4,0476 ± 0,330
78,5	4,3510 ± 0,683
155,8	5,6682 ± 0,636
510,0	6,8619 ± 0,299

Tab. 1 - Hodnoty korózných úbytkov v závislosti od prídavku CrF_3 vo FLiNaKu

Z výsledkov je zrejmé, že so zvyšujúcim sa množstvom pridaného umelého polutantu do korozívnej zmesi sa zároveň zvyšuje aj korózne napadnutie použitého materiálu. Tento priebeh nemá lineárny charakter ako by sa očakávalo, ale sigmoidálny charakter. Existujú tu tri charakteristické oblasti. Oblasť prvá je časť s najnižšou koróziou materiálu a relatívne rovnakým zložením zmesi. V tejto oblasti korózia materiálu v zmesi s prídavkami 7,9 mg a 15,8 mg CrF_3 nie je oproti korózii materiálu v čistej zmesi nijak výrazná. S ďalším zvyšovaním prídavku fluoridovej zmesi sa korózia materiálu prudko zvyšuje. Tretia oblasť je pravdepodobne oblasťou ustálenia koróznej rýchlosti, kde už materiál nekoroduje rýchlejšie ako sa očakáva pri lineárnom raste ale sa približuje k istej limitnej hodnote. Znamená to, že ak bude v kvázi-dynamickom systéme po istom čase dochádzať k rovnováhe medzi korozívnym médiom a materiálom, môže sa tento stav navodiť umelo už na začiatku spustenia systému. Tento predpoklad bude ďalej overovaný v iných fluoridových systémoch s rôznymi umelými prídavkami nečistôt, resp. ich kombináciami (napr. fluoridy železa a niklu).

Ďalej sa získané vzorky zliatin analyzovali pomocou skenovacej elektrónovej mikroskopie. Pozoroval sa povrch vzoriek pri 5000 násobnom zväčšení. Následne sa zo vzoriek pripravili metalografické rezy, ktoré sa analyzovali pomocou SEM - linescan EDX. Vo všetkých prípadoch okrem prípadu s najväčším prídavkom CrF_3 sa zistil úbytok chrómu zo zliatiny, čo korešponduje aj s doteraz získanými výsledkami [10]. V poslednom prípade sa zistil opačný trend, pričom paradoxne najväčší korózny úbytok môže byť vysvetlený prednostným úbytkom železa aj niklu zo zliatiny, čo by znamenalo minimálne čiastočnú zmenu korózneho mechanizmu vzhľadom na predchádzajúce prípady. Nedá sa tiež vylúčiť absorbcia polutantu do kovovej matrice v miestach po korózii železa. To by mohlo v tomto prípade vysvetliť zvýšené množstvo detegovaného chrómu.

Vo všetkých prípadoch bol zistený aj úbytok železa z materiálu. Keďže zliatina Incoloy 800 obsahuje skoro 50 hmot. % železa, dá sa tvrdiť, že veľkú časť koróznych úbytkov z materiálu zapríčiňuje práve železo. Takémuto koróznemu napadnutiu sa dá predísť použitím zliatin na báze niklu. Ďalším krokom by mohlo byť skúmanie korózie na niklových zliatinách typu Hastelloy a Hayness.

Na koniec sa identifikovali prítomné druhy korózie. Určilo sa, že materiál bol napadnutý koróziou viecerých typov a to škvrnitou, jamkovou, bodovou, podpovchovou koróziou, ako aj koróziou po vrstvách. Súvis medzi typmi korózneho napadnutia a vplyvu korózneho média s prídavkom, resp. bez prídavku fluoridu chromitého sa nedal jednoznačne určiť. Každá vzorka obsahovala viacero druhov korózie. Je možné, že typ korózneho napadnutia, ktorý bude prevládať na jednotlivých vzorkách nebolo možné určiť z dôvodu malých časov koróznych testov. Z tohto dôvodu sa ďalší výskum zameria na predĺženie experimentálnych časov, ako aj na dynamické a kvázi-dynamické testy.

5. Záver

V práci sa skúmal vplyv prídavku fluoridu chromitého ako umelého polutantu do fluoridovej taveniny (LiF-NaF-KF)eut. (46.5 - 11.5 - 42 mol%) na koróziu zliatiny Incoloy 800H/HT. Zistilo sa, že umelý prídavok CrF_3 do taveniny ma vplyv na korózny úbytok zliatiny už pri 0,03 hmot. % v celkovom obsahu taveniny. Pôvodný cieľ práce, potlačiť koróziu zliatiny sa nepodarilo naplniť. Naopak, so zvyšovaním obsahu CrF_3 v tavenine ďalej rástol aj korózny úbytok z analyzovanej zliatiny.

6. Zoznam použitej literatúry

[1] UHLIR J. – SOUCEK P.: MSR Technologie – Zhodnocení vývoje solných reaktoru a odpovídajících technologií prepracování vyhorelého jaderného paliva. SÚRAO, 2003. 37 s.

[2] U.S. DOE NUCLEAR RESEARCH ADVISORY COMMITTEE, GIF:A technology roadmap for generation IV. nuclear energy systems. [online]. 2002. Dostupné na: http://www.gen-4.org/PDFs/GenIVRoadmap.pdf

[3] ROSENTHAL M.W.- KASTEN P.R.- BRIGGS R.B.: Molten-salt reactors – History, status and potential. ORNL, 1969.

[4] BENES O. et al.: Assessment of LIquid Salts for Innovative Applications – Review report on liquid salts for various applications. 2009. [online]. Dostupné na: ftp://ftp.cordis.europa.eu/pub/fp6-euratom/docs/alisiadeliverable-d50-v4_en.pdf

[5] WILLIAMS D.- TOTH L.- CLARNO K.: Assessment of Candidate Molten Salt Coolants for the Advanced High-Temperature Reactor (AHTR). ORNL, 2006. Oak Ridge, Tennessee, ORNL/TM-2006/12, 69 s.

[6] SRIDHARAN K. et al.: Molten salt heat transport loop: Materials corrosion and heat transfer phenomena. University of Wisconsin, Madison, 2008. 88 s.

[7] INGERSOLL D.T.- FORSBERG C.W.- MACDONALD P.E.: Trade Studies for the Liquid-Salt-Cooled Very High-Temperature Reactor. Fiscal Year 2006 Progress Report. ORNL, 2007. 264 s.

[8] GEDDES B. – LEON H. – HUANG X.: Superalloys: Alloying and performance. ASM International, 2010. 176 s. ISBN 0-61503-040-9.

[9] Technický list INCOLOY® 800H/HT®. [online]. Dostupné na: http://www.specialmetals.com/documents/Incoloy%20alloys%20800H%20800HT.pdf

[10] OLSON L.C.: Material corrosion in molten LiF-NaF-KF eutectic salt (dizertačná práca). Madison: University of Wisconsin. 2009. 260 s.

MODERNIZACE PARNÍCH TURBÍN JE DUKOVANY

Pavel Pánek
Škoda Power s. r. o. a Doosan Company, Plzeň

Úvod

Bloky s jadernými reaktory typu VVER-440 v České republice a na Slovensku pracují s kondenzačními parními turbínami Škoda 220MW. Na každý blok připadají dva turbogenerátory. Jedná se o třítělesové turbíny na sytou páru s přihříváním a s neregulovanými odběry do NT a VT regenerace. V případě JE Dukovany, zprovozněné v 80. letech minulého století, se přistoupilo k postupné rekonstrukci turbín a dalšího zařízení sekundárního okruhu, která zajistila prodloužení životnosti, zvýšení generovaného elektrického výkonu a lepší využití paliva.

Rekonstrukce se postupně dotkla kondenzátorů, průtočných částí nízkotlakých (NT) a vysokotlakých (VT) dílů a vysokotlakých regeneračních ohříváků (VTO). Generálním dodavatelem popisovaných prací je Škoda Energo, s. r. o., později přejmenovaná na Škoda Power. Odběratelem a provozovatelem je ČEZ, a.s.

Kondenzátory

Rekonstrukce kondenzátorů spočívala v nahrazení stávajících trubkových svazků novými svazky s titanovými trubkami a celotitanovými trubkovnicemi. Svazky jsou uspořádány do modulů, které umožňují instalaci přímo do existujících plášťů kondenzátorů pomocí svarového spoje. Každý modul je také vybaven nově navrženými vodními komorami pro lepší rozdělení chladící vody do trubek. Na každý kondenzátor připadají dva tyto moduly, z nichž každý obsahuje 7 929 trubek. Uvnitř každého modulu se dále nacházejí podpěrné stěny, udržující správnou geometrii trubek chladící vody. Podpěrné stěny jsou vyztuženy systémem ocelových nosných trubek, které jsou spojeny s trubkovnicí a s jejichž pomocí tvoří celý modul samonosný konstrukční celek.

Použití titanu umožnilo změnu chemického režimu okruhu a prodloužení životnosti parních generátorů. Výhoda modulárního uspořádání kondenzátoru pak spočívala v možnosti moduly zkompletovat a odzkoušet přímo ve výrobním závodě, a tak zkrátit čas potřebný k provedení rekonstrukce na místě.

Jmenovitá teplosměnná plocha kondenzátoru (2 moduly)	9 114 m^2
Jmenovité množství chladící vody	35 000 $m^3.h^{-1}$
Jmenovitá teplota chladící vody na vstupu	20°C
Jmenovité množství páry do kondenzátoru	108.4 $kg.s^{-1}$
Tlak v kondenzátoru	4.6 kPa / 6.1 kPa
Rozměr teplosměnných trubek	22 x 0.5/0.7 x 8 400 mm
Počet trubek v modulu	7 929 ks
Tloušťka trubkovnice	40 mm
Hmotnost modulu	48 t

Tab. 1 - Základní parametry kondenzátorů po rekonstrukci

NT díly

Nízkotlaké díly parní turbíny byly rekonstruovány s požadavkem na zvýšení výkonu při 100% provozu reaktoru při zachování geometrie vnitřních a vnějších těles. Vnitřní tělesa byla pro 3. blok vyrobena nová (první v pořadí rekonstrukce), pro ostatní bloky pak byla využita vnitřní tělesa původní, která byla pouze vyčištěna a opravena.

Zcela nově byly vyrobeny celokované rotory s nově navrženým lopatkováním (rozváděcí a oběžná kola). Rozváděcí lopatky byly koncipovány jako zkroucené (profily sestavené na přímou úsečku) s výjimkou

rozváděcích lopatek prvního stupně, využívajících složený náklon (sestavná křivka tvořená úsečkou a dvěma kubickými křivkami na ni navazujícími). Poslední dva stupně byly osazeny standardizovanými lopatkami Modulu 4. Nově byl navržen také difuzor za posledním stupněm NT dílu.

U turbín na sytou páru je třeba vždy věnovat zvláštní pozornost vlivů vlhkosti vodní páry v koncových stupních. Proto jsou náběžné hrany oběžných lopatek 4. a 5. stupně opatřeny povrchovou ochranou kalením. Zakalený pás probíhá podél náběžné hrany v definované délce od špičky lopatky. Navíc je rozváděcí lopatka 5. stupně dutá, s odvody vody ve věnci a disku rozváděcího kola. Vlastní lopatka je svařena ze dvou plechů tloušťky 6 – 8 mm, tvořících tlakovou a sací stranu lopatky, mezi nimiž je uzavřena zmíněná dutina, a na sací straně je opatřena odvodňovacími otvory.

I přes tuto ochranu dochází k významné erozi koncových oběžných lopatek a jejich erozní opotřebení je třeba monitorovat.

V letech 2005-2008 bylo dodáno a provozovatelem převzato všech šestnáct NT dílů. Rekonstrukce vedla ke zvýšení výkonu turbíny při 100% výkonu reaktoru na 229.65 MW.

VT díly

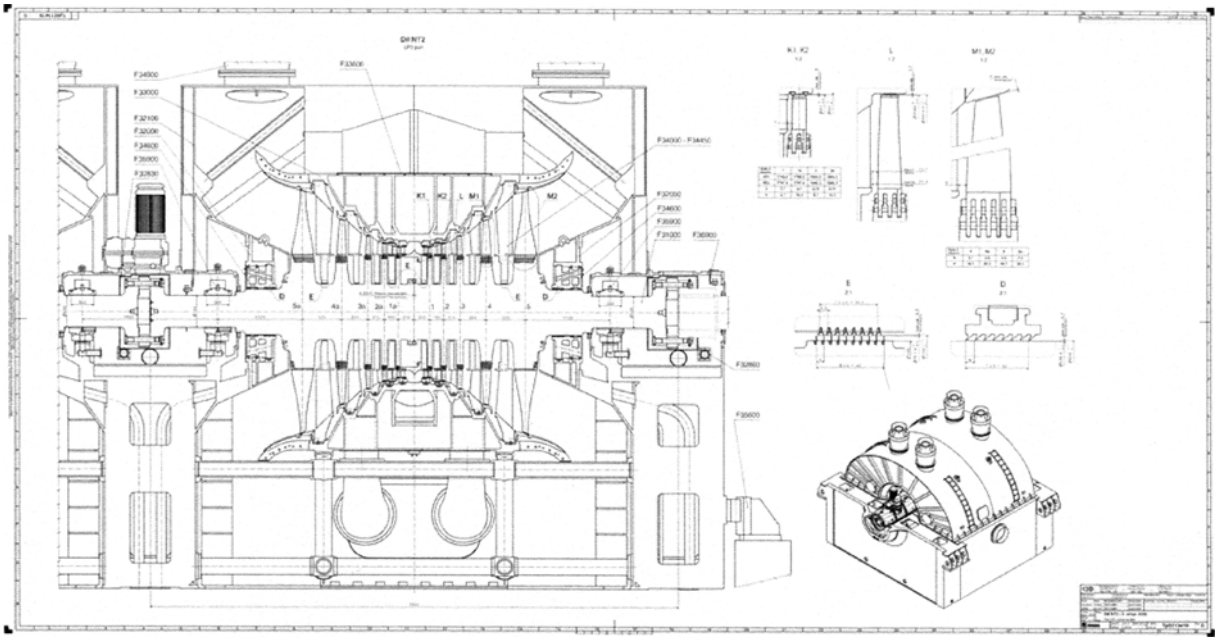
Ve třetí fázi modernizace bylo přistoupeno k rekonstrukci vysokotlakých dílů. Také zde proběhla výměna průtočných částí (rotoru, rozváděcích a oběžných kol), dodána byla i VT tělesa. Při návrhu lopatkování byly využity optimalizované lopatky se složeným náklonem, řízeným průtokem a zvýšenou reakcí, navržené již dříve pro zakázky Amager (Dánsko) a Tušimice II. Kvůli odlišným parametrům musely být lopatky přeměřítkovány (změna rozměrů kanálu při zachování vstupních a výstupních rychlostních trojúhelníků). S novým lopatkováním bylo docíleno menšího zakřivení proudu a zvýšení průtočnosti, řízení průtoku pak přispělo ke snížení sekundárních ztrát stupňů. Díky prodlouženým lopatkám posledního stupně byla také snížena výstupní ztráta VT dílu.

Zásadně se změnila technologie rozváděcích kol, kdy byla původní svařovaná kola nahrazena skládanými. Tím se dosáhlo vyšší přesnosti při sestavování. Aplikovány byly také voštinové nadbandážové ucpávky oběžných kol, umožňující omezený kontakt rotoru se statorem za provozu (při najíždění) bez rizika poškození rotoru.

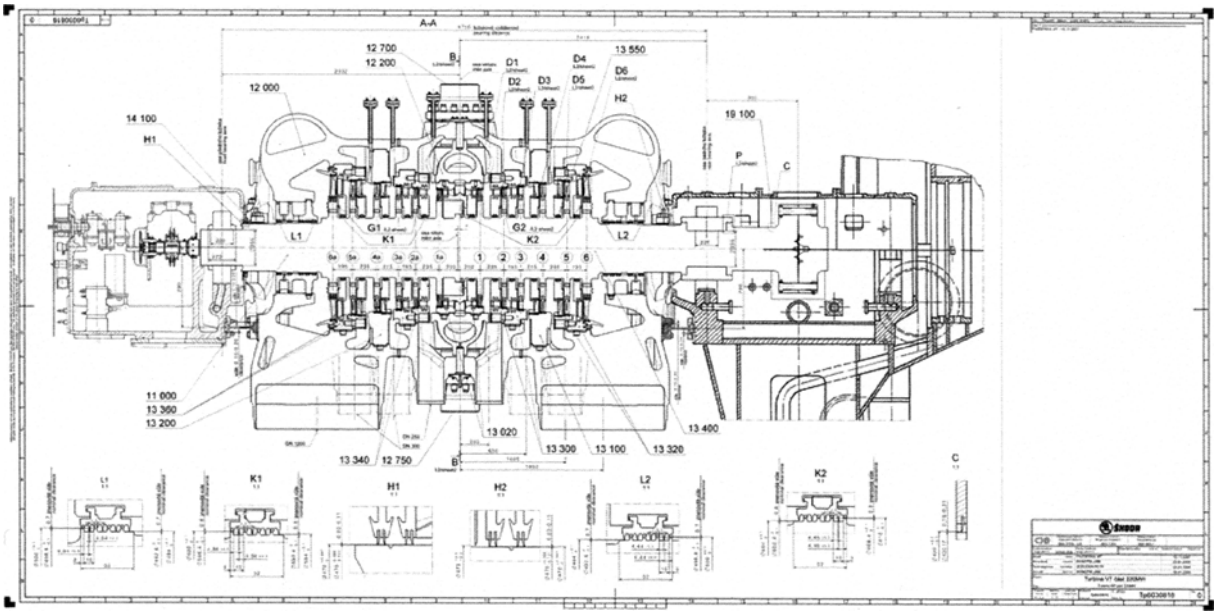
V letech 2009-2012 bylo dodáno všech osm VT dílů. Výkon turbíny při 100% výkonu reaktoru byl zvýšen na 235.81 MW. Maximální výkon dosáhl 259.16 MW.

Jmenovitý tlak admisní páry před RZ ventilem	4.32 MPa	4.44 MPa
Jmenovitá teplota admisní páry před RZ ventilem	256°C	256.7°C
Hmotnostní průtok na vstupu do turbíny	1 356 $t.h^{-1}$	1 333 $t.h^{-1}$
Jmenovitá teplota chladící vody na vstupu	20°C	20°C
Výkon při 100% provozu reaktoru	220 MW	235.81 MW
Měrná spotřeba páry	6.15 $kg.kWh^{-1}$	5.65 $kg.kWh^{-1}$
Měrná spotřeba tepla	11 385.9 $kJ.kWh^{-1}$	10 500.4 $kJ.kWh^{-1}$
Jmenovité otáčky	3 000 min^{-1}	3 000 min^{-1}

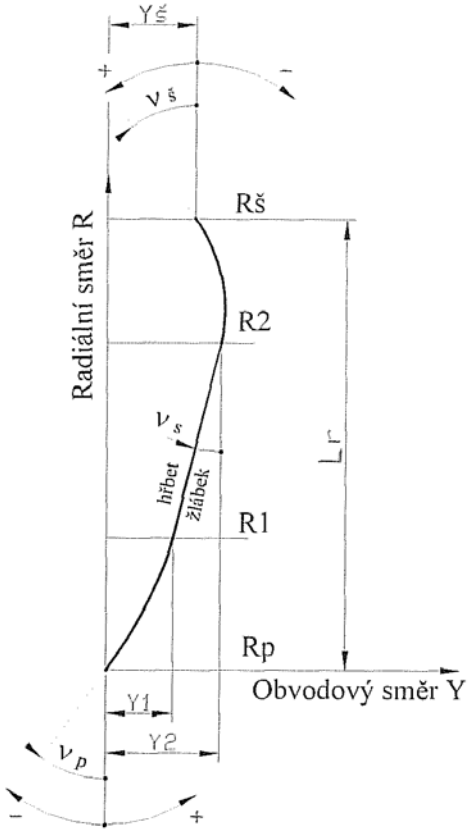
Tab. 2. - Vybrané parametry parní turbíny Škoda 220MW před a po rekonstrukci NT a VT dílů



Obr. 1 - Řez modernizovaným NT dílem



Obr. 2 - Řez modernizovaným VT dílem



Obr. 3 - Křivka sestavení rozváděcí lopatky se složeným náklonem

Závěr

Rekonstrukce umožní další provoz parních turbín Škoda 220MW na JE Dukovany do konce plánované životnosti elektrárny při zvýšení termodynamické účinnosti a výkonu. V další fázi prací je plánována výměna dalších součástí sekundárního okruhu (regenerační ohříváky, separátory/přihříváky).

Zdroje a literatura

Informace obsažené v tomto textu vycházejí z interních dokumentů Škoda Power a z rozhovorů se zaměstnanci Ing. Zdeňkem Šimkou, Ph.D. (vedoucí odboru Termodynamika) a Ing. Viktorem Vrátníkem (vedoucí odboru Tepelné výpočty).

ÚDRŽBA ČERPADEL NA JE S VVER

Stanislav Klimek

1. Úvod

Tento článek stručně nastiňuje problematiku údržby čerpadel na JE Dukovany. Nejprve jsou zmíněny hlavní druhy čerpadel, dále jsou uvedeny jevy, které ovlivňují samotnou údržbu a údržba samotná.

2. Čerpadla ovlivňující jadernou bezpečnost

Mezi čerpadla, která ovlivňují jadernou bezpečnost, patří zejména čerpadla bezpečnostních systémů. Tyto systémy zároveň podléhají limitám a podmínkám. Např. je-li jeden druh bezpečnostního systému tvořen 3 nezávislými podsystémy, při poruše jednoho z nich může blok stále pracovat, při poruše dvou podsystémů zároveň započne čerpání limit a podmínek – např. 72 hod. Během tohoto času se musí uvést zpět do provozuschopného stavu alespoň jeden podsystém ze dvou porouchaných, nestane-li se tak, musí se odstavit blok.

Čerpadla spadající do bezpečnostních systémů se nachází v logickém celku primár, sekundár i venkovní objekty.

V logickém celku primár jsou to čerpadla aktivních bezpečnostních systémů a to:

a) Čerpadla systému vysokotlakého doplňování primárního okruhu TJ. Na každý blok připadají 3 tyto čerpadla – zajišťují doplňování chladiva do primárního okruhu tlakem až 14,3 MPa – tudíž jsou schopna se prosadit i do primárního okruhu pod provozním tlakem. Jedno čerpadlo je schopné pokrýt ztráty chladiva do průměru DN13 v primárním okruhu pod provozním tlakem. Tato čerpadla pracují v počátečním stadiu případné havárie s porušením těsnosti primárního okruhu.

b) Čerpadla systému nízkotlakého doplňování primárního okruhu TH. Na každý blok připadají 3 tyto čerpadla. Tato čerpadla mají za úkol zapůsobit v pozdějších stádiích případné havárie s výrazným poklesem tlaku v primárním okruhu (pod 0,7 MPa). Tzn., že dodávají větší množství chladiva při nižším tlaku.

c) Čerpadla sprchových systémů TQ mají za úkol snižovat tlak a teplotu v hermetických prostorách primárního okruhu a zároveň snižovat obsah radioaktivních aerosolů ve vzduchu jejich navázáním na vodu. Na každý blok připadají 3 tyto čerpadla.

V logickém celku sekundár jsou to:

a) Superhavarijní napájecí čerpadla – na každý blok jsou tři. Mají za úkol dodávat vodu do parogenerátoru ze sekundární strany – tento případ ale představuje pro parogenerátor konečnou, protože voda je dodávána z venkovních nádrží, kde její teplota je 20 °C. V budoucnu jako jeden z požadavků stress testů má přibýt ještě ke každému bloku jedno superhavarijní napájecí čerpadlo, které bude zcela odděleno okruh el. napájení od ostatních superhavarijních napájecích čerpadel.

b) Havarijní napájecí čerpadla – na každý blok připadají 2. Tato čerpadla dodávají napájecí vodu prakticky stejnou trasou jako napájecí čerpadla – zasahují v případě jejich výpadku a při najíždění bloku.

c) Doplňovací čerpadla – slouží pro dopravu demivody do napájecích nádrží na sekundárním okruhu

d) Dochlazovací čerpadla – na každý blok připadají 3. Tato čerpadla pracují ve specifických režimech při odstavování bloku.

V logickém celku venkovní objekty jsou to čerpadla systému technické vody důležité. Tato čerpadla slouží k chlazení všech důležitých systémů primárního okruhu, včetně bezpečnostních. V principu dodávají chladící vodu do mezivýměníků v primárním okruhu, aby se zabránilo šíření radioaktivity. Tato čerpadla sají vodu z řadu cirkulační chladící vody a oteplená se vrací do chladících věží. V budoucnu jako jeden z dalších požadavků stress testů má být řad technické vody důležité oddělen od chladící vody, přičemž jeho dochlazování by měly obstarávat ventilátorové věže. Na každý dvojblok připadají tři podsystémy technické vody důležité, přičemž v každém jsou 4 čerpadla.

3. Čerpadla ovlivňující provozuschopnost bloku

Mezi tato čerpadla patří čerpadla, jejichž výkon ovlivňuje průtok média v primárním a sekundárním okruhu.

V rámci logického celku primár jsou to hlavní cirkulační čerpadla. Při výpadku jednotlivých čerpadel se musí příslušně snížit výkon reaktoru – nelze jej popsat v procentech. Tato problematika souvisí s rozložením výkonu a teploty v aktivní zóně.

V rámci logického celku sekundár jsou to:

a) napájecí čerpadla – na jeden blok jich připadá 5, v provozu jsou 4, jedno je v záloze. Při výpadku jednoho se najíždí záložní, při výpadku dvou se musí snížit výkon bloku o 25%.

b) kondenzátní čerpadla 1° - na jednu turbínu připadají 3 kondenzátní čerpadla 1°. V provozu jsou 2, jedno je záložní. Při neprovozuschopnosti 2 se tedy snižuje výkon bloku o 25% (2 turbíny na jeden blok).

c) kondenzátní čerpadla 2° - platí pro ně totéž co pro kondenzátní čerpadla 1°

d) podávací čerpadla kondenzátu -mají svou úlohu v procesu nízkotlaké regenerace – na jednu turbínu jsou vždy dvě, jedno je v záloze. Při jejich úplném výpadku lze očekávat pokles výkonu bloku v řádu jednotek %.

e) podávací čerpadla separátu - mají svou úlohu v procesu nízkotlaké regenerace – na jednu turbínu jsou vždy dvě, jedno je v záloze. Při jejich úplném výpadku lze očekávat pokles výkonu bloku v řádu jednotek %.

V rámci logického celku venkovní objekty jsou to čerpadla cirkulační chladící vody. Na jeden blok připadají dvě tyto čerpadla. Dopad na provozuschopnost záleží na počtu pracujících čerpadel a na venkovní teplotě.

4. Poškozující a degradační jevy

a) Kavitace – projevuje se na oběžných kolech čerpadel VD-400 na čerpací stanici surové vody Jihlava. Tato čerpadla sají vodu z dolní nádrže přečerpávací elektrárny Dalešice, kde hladina vody může kolísat v rozmezí 12 m. V současné době se je daří renovovat pomocí kovových nástřiků, tak nanášením keramické hmoty Chesterton, která snižuje hydraulický odpor a chrání samotné oběžné kolo před erozí a kavitací.

b) Koroze – tato se ponejvíce projevuje na čerpadlech, jež čerpají surovou vodu. Mezi čerpadla jež čerpají surovou vodu patří typy:

U-VF-350
U-VF-400
125-CVAV
300-CVAV
VD-400

U těchto typů jsou korozí nejvíce poškozeny oběžná a rozváděcí kola, tělesa článku, a zámky stoupacích trub. Korozní úbytky nejsou většinou ani po 16-ti letech provozu takového charakteru, aby znemožnily správnou funkci těchto součástí. Projevují se spíše nevyhovující rozměrovou kontrolou dosedacích a středících ploch, které se většinou daří odstranit renovací pomocí kovových nástřiků a následným stočením.

Zvláštním projevem koroze je vibrační koroze, která se projevuje u součástí, kde může docházet i k nepatrnému relativnímu pohybu. Dochází k „obrušování“ pasivační vrstvy oceli a koroze tak vlastně neustále postupuje. Typickým příkladem je suvné uložení spojky čerpadla chladící vody 1600-BQDV. Proto se musí tyto spojky každé 4 roky demontovat, vyčistit, proměřit a následně nanést na stykové plochy speciální lubrikační pastu.

Na sekundárním a primárním okruhu vzhledem k chemickému režimu vody je problém koroze u čerpadel téměř zanedbatelný. Při všech úkonech souvisejících s údržbou a provozem se musí dbát na to, aby používané přípravky neobsahovaly chloridy, které mohou způsobovat bodovou korozi.

c) Degradace teplotou a stárnutím – těsnící prvky

Jedná se většinou o těsnící „O“ kroužky. Typickým příkladem je výměna havarijního napájecího čerpadla HGM 3/6, která proběhla při TGO 1. bloku letos na podzim. Toto čerpadlo netěsní kov na kov, ale je těsněno pryžovými „O“ kroužky, které po deseti letech provozu zteřely a přestaly mít požadované těsnící vlastnosti. Po rozebrání čerpadla bylo zjištěno, že by zůstalo provozuschopné pravděpodobně ještě nejméně 3 roky.

d) Poškozování působením agresivních čerpaných médií - CHÚV

Vzniká např. porušením ochranné vrstvy v ulitě čerpadla, netěsnostmi měkkých ucpávek. Působením agresivních médií pak dochází ke zrychlené korozi všech součástí, které se s nimi dostanou do styku (frémy…).

e) Vydírání od gufer, provazců měkkých ucpávek…

5. Metody a prostředky predikce

V JE Dukovany je při diagnostice točivých strojů využíváno několik metod predikce:

a) Online diagnostika vibrací

Pro HCČ a turbínu.

b) Offline diagnostika vibrací

Pro všechny ostatní točivé stroje důležité pro provozuschopnost a jadernou bezpečnost. Buďto se provádí na daných strojích periodicky, případně při zkušebních chodech nebo před plánovaným preventivním zásahem.

c) Tribodiagnostika

Provádí se např. při GO čerpadel chladící vody, kdy se zjišťuje obsah vody v oleji (kluzná ložiska, natáčecí zařízení lopatek).

Na doporučení správců a provozních zaměstnanců na určitých strojích.

Metody a prostředky predikce obecně:

1) Vibrodiagnostika

-vibrace lze považovat za nejlepší provozní parametr, podle kterého lze posuzovat:

a) nevyváženost
b) nesouosost
c) nedostatečně tuhé základy
d) ohnutý hřídel
e) nadměrné opotřebení ložisek
f) ulomení lopatek rotoru

2) Termodiagnostika

-pomocí teploty lze sledovat:

a) stav mazání kluzných uložení
b) stav elektrických spojů
c) průtok kapaliny

3) Tribodiagnostika

-olejová náplň je v kontaktu s vnitřními součástmi stroje – v jejím obsahu se tedy projeví i stav těchto součástí

a) změna vizkozity
b) změna pH

c) obsah nečistot
d) velikost a tvar otěrových částic

6. Současný stav údržby a výhled do budoucna

V současné době se provádí dva druhy údržby – preventivní a nahodilá. Dá se říct, že preventivní údržba je zavedena na všech čerpadlech ovlivňujících provozuschopnost bloku (plus čerpadla technické vody důležité). Nahodilá údržba je používána u všech ostatních čerpadel. Čerpadla ovlivňující jadernou bezpečnost většinou nepracují kontinuálně, nýbrž se u nich provádí periodicky zkušební chody, během nichž se ověřuje jejich technický stav a zároveň se provádí měření vibrací.

Do budoucna by se autor snažil prosadit alespoň částečné nasazení online diagnostiky na vybraných druzích soustrojí. Nejprve za účelem zvýšení jaderné bezepečnosti a provozuschopnosti a následně na základě důkladných rozborů, s přihlédnutím k dlouholetým zkušenostem s provozováním daných druhů čerpadel, i k částečnému přechodu z preventivní na prediktivní údržbu.

Údržba je jednou z nejdůležitějších činností v rámci provozování jaderné elektrárny. Je však také nedílnou součástí celé skupiny ČEZ a musí respektovat směry, ketrými se celá skupina ubírá. V rámci koncepce Nová vize, která reaguje na velmi nepříznivé poměry na trzích s el. energií běží na všech elektrárnách projekty, jejichž úkolem je optimalizovat všechny procesy za účelem zvyšování produktivity výroby a zvýšení konkurenceschopnosti skupiny ČEZ. Zároveň je třeba šetřit finanční prostředky na nový jaderný zdroj v Temelíně. Rozhodující bude rovněž rok 2015, kdy se má dále prodlužovat licence provoz 1. bloku v JE Dukovany na dalších 10 let.

Prakticky to z výše uvedeného znamená pro rozšíření systému online diagnostiky na EDU:
1) Zahájí se přípravné práce na koncepci rozšíření systémů online diagnostiky na EDU (bude několik variant, které budou předloženy technické komisi, která je schválí či nikoliv).
2) Jestliže bude některá varianta schválena, bude muset přinést úsporu v nákladech na údržbu, případně nezvyšovat náklady a výrazně přispět k zajištění jaderné bezpečnosti.
3) Schválená varianta bude rozpracována a připravena do r. 2015. Aplikace se spustí po r. 2015, kdy se rozhodne o dalším provozování JE Dukovany.

Jestliže se tedy vše podaří, v rámci sekundárního okruhu by se online diagnostika uplatnila zejména na napájecích čerpadlech a kondenzátních čerpadlech 1° za účelem prodloužení periody oprav jak čerpadel, tak elektromotorů.

U venkovních objektů by se jednalo o čerpadla technické vody důležité a čerpadla chladící vody.

ROZEBÍRATELNÉ SPOJE V PRIMÁRNÍM OKRUHU JE S VVER

Pavel Svoboda
MICo, spol. s r. o. Třebíč

Abstrakt

Primární okruh jaderné elektrárny je stejně jako každé technologické zařízení sestaven z mnoha komponentů. Podle samotné funkce těchto komponentů vznikají různé konstrukce, které je nutno nějakým způsobem sestavit, kontrolovat, čistit a opravovat. To jsou hlavní důvody, proč musí být různé rozebíratelné spoje použity na komponentách primárního okruhu jaderné elektrárny. Na elektrárnách typu VVER jsou jednotlivé komponenty a tím i jejich rozebíratelné spoje rozděleny podle jejich vlivu na jadernou a technickou bezpečnost. Každý rozebíratelný spoj musí být utěsněn vhodným těsněním a v závislosti na nebezpečnosti těsněného media je nutné přihlížet i na důležitost celého spoje a jeho těsnění. Rozebíratelné spoje se vyskytují na primárním okruhu jaderných elektráren nejčastěji ve formě přírubových spojů, ucpávkových systémů čerpadel a armatur a dalších specifických spojů potrubních tras nebo zátek otvorů pro napojení měřících zařízení.

Vhodnost použitého těsnění pro těsněný spoj je ověřována různými metodami. Výsledky z testů těsnění v laboratorních podmínkách slouží jako podklad pro výpočty a montážní postupy těsněného spoje.

1. Důvody proč se nelze vyhnout rozebíratelným spojům

Rozebíratelné spoje jsou součástí naprosté většiny technických zařízení a komponent. Není tomu jinak ani u primárního okruhu jaderných elektráren typu VVER. Rozebíratelné spoje jsou často zdrojem mnoha problémů, které na daném zařízení vznikají. Prvním problémem je zajištění jeho těsnosti. Primární okruhy jaderných elektráren jsou konstruovány na provozní tlaky 12,25 resp. 15,7 MPa. To znamená, že zkušební tlaky se pohybují v řádu 16,34 resp. 19,7 MPa. Samotná konstrukce rozebíratelného spoje a užité těsnění často generují další problémy, kterými je celé zařízení zatíženo. Hlavními problémy jsou například životnost těsnění, životnost spojovacích prvků, životnost těsnících ploch nebo také přídavná zatížení konstrukce konkrétního zařízení. Zejména životnost a těsnost primárního okruhu resp. jeho jednotlivých komponent je důležitým faktorem pro hodnocení bezpečnosti a životnosti celé jaderné elektrárny. Uvedené problémy jsou důvodem pro snahu omezovat použití rozebíratelných spojů na zařízeních primárního okruhu jaderných elektráren.

Z konstrukčních důvodů je nevyhnutelné použití rozebíratelných spojů tam, kde je nutné provádět kontroly vnitřních vestaveb zařízení a s tím souvisí i servisní a údržbářské práce na těchto vnitřních vestavbách. Příkladem těchto typů spojů jsou všechna víka, jako je víko reaktoru, víka kolektorů parogenerátorů, víka kompenzátorů objemu, iontových filtrů, hydroakumulátorů, zpětných klapek atd. Dále se jedná o dělící roviny např. hlavního cirkulačního čerpadla, rychločinných armatur, šoupátek a dalších zařízení.

Druhou skupinou jsou spoje v místech, kde je nutné vyvést ze zařízení (z tlakové vnitřní části) ovládací nebo kontrolní prvek. Příkladem těchto spojů je např. vřeteno hlavní uzavírací armatury, hřídel hlavního cirkulačního čerpadla, dále vřetena všech ostatních armatur jako jsou regulační ventily, šoupátka a uzavírací klapky a hřídele všech čerpadel. Dalším příkladem druhé skupiny spojů je vyvedení krokových pohonů z víka tlakové nádoby reaktoru a vyvedení vnitroreaktorové kontroly.

Předešlé členění rozebíratelných spojů bylo provedeno především z koncepčního pohledu. Z hlediska konstrukčního a zároveň z hlediska problematiky utěsňování jsou spoje koncipovány buď, jako přírubové tj. nejčastěji kruhové přírubové spoje a spoje ucpávkové. Ucpávkové těsnící spoje se používají zejména na

hřídelích čerpadel a na ovládacích vřetenech armatur tj. hlavní uzavírací armatury, šoupátek, ventilů a uzavíracích klapek.

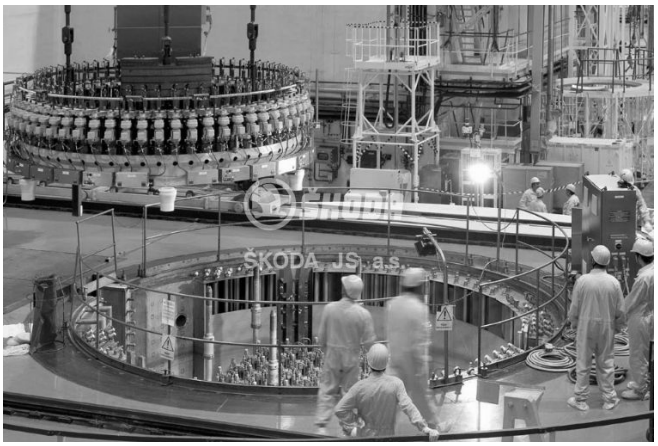
Kruhové přírubové spoje jsou z většiny těsněny buď plochým těsněním, kruhovými kroužky, hřebenovým těsněním, spirálovým těsněním a někdy i pomocí pletených šňůr. Ucpávkové spoje resp. ucpávky se v zásadě dělí na dva typy: mechanické ucpávky a měkké ucpávky. Zatímco mechanické ucpávky jsou většinou konstrukčně velice specifické a záleží na konkrétním výrobci i konkrétní konstrukci zařízení. Měkké ucpávky jsou konstrukčně vždy velice podobné a liší se především v rozměrech a použitém materiálu. Mechanické ucpávky se používají výlučně na čerpadlech a točivých strojích. Na armaturách se prakticky vždy používají jen měkké ucpávky. Důvodem je hlavně to, že mechanické ucpávky zpravidla fungují ideálně při předem definovaných otáčkách. Ovládací vřetena armatur pracují výhradně v režimu rozběh a zastavení, nejsou dlouhodobě zatíženy vyššími otáčkami vřetena. Zpravidla opak platí pro hřídele čerpadel a ostatních točivých strojů.

2. Jaderná a technická bezpečnost rozebíratelných spojů

Při hodnocení a klasifikaci přírubových spojů je nutné rozlišovat mezi technickou a jadernou bezpečností. Z hlediska jaderné bezpečnosti jsou vybraná zařízení (tedy zařízení mající přímý vliv na jadernou bezpečnost) rozdělena do bezpečnostních tříd BT. Podle naší legislativy existují BT 1, 2 a 3. Legislativa v okolních zemích klasifikuje toto zařízení podobným způsobem. Např. slovenská legislativa definuje čtyři BT. V zásadě se jedná o shodný systém, jen je rozdělen do více úrovní. Tyto bezpečnostní třídy potom určují, jaké jsou kladeny požadavky na konkrétní zařízení během návrhu, výroby, spuštění i jeho provozu. Na přírubový spoj i jeho součásti jsou kladeny stejné požadavky definované BT, jako na celé zařízení, na němž se tento spoj nachází. Z tohoto důvodu lze z hlediska jaderné bezpečnosti rozdělit přírubové spoje na primárním okruhu VVER do určitých úrovní bezpečností a jím přikládat náležitou pozornost. Z pohledu technické bezpečnosti nerozhoduje o zařízení (resp. o přírubovém spoji) úroveň jeho vlivu na funkci reaktoru a jeho nutnost chlazení za projektových i havarijních stavů. Technická bezpečnost zařízení potažmo přírubového spoje je nejčastěji ovlivňována přímými vlivy působícími na těsnost a životnost přírubového spoje. Tyto vlivy jsou nejčastěji vnitřní tlak, rozměry spoje, teplota, gradient teploty nahřívání a ochlazování a vliv media na konstrukční materiály přírub a těsnění. Technická bezpečnost a problematika utěsnění přírubových spojů použitých na primárním okruhu jaderných elektráren se proto nemusí vždy shodovat s jejich vlivem na bezpečnost jadernou.

Z hlediska technické bezpečnosti je přírubový spoj problematický zejména proto, že integrita a těsnost spoje mají další přímý vliv na okolí, nebo na technickou bezpečnost okolních součástí. Při zvýšení netěsnosti spoje nad akceptovatelnou míru může zároveň dojít i k ohrožení jaderné bezpečnosti. Dalším vzniklým problémem je často kondenzace a usazování často agresivních látek na stěnách konstrukcí a jednotlivých komponent čímž se zvyšuje nebezpečí koroze a degradace materiálu. To je vliv zejména zvýšené netěsnosti spoje. Toto chování je velice nebezpečné z dlouhodobého hlediska, protože je obtížně registrovatelné a jeho následek se může objevit nečekaně, proto musí být přijaty konkrétní opatření, jak těmto netěsnostem předcházet a jak kontrolovat jejich vznik. Ztráta integrity spoje může být zapříčiněna buď konstrukční, provozní nebo montážní chybou. Touto ztrátou integrity je myšleno selhání jednoho z prvků přírubového spoje např. vystřelení těsnění, značná plastická deformace příruby vedoucí k vytváření trhlin na přírubě, utržení svorníku nebo prasknutí podložky. Konstrukčním chybám se předchází především tím, že jsou používány ověřené konstrukční materiály s dostatečně známými charakteristikami a dále jsou používány ověřené výpočtové metody pro přírubové spoje a metody pro zkoušení těsnění (např. norma pro výpočet kruhových přírubových spojů EN 1591-1 nebo metoda popsaná v NTD A.S.I). Dále jsou pro konstrukční návrh jasně stanoveny třídy netěsnosti, které musí být splněny. Pro jaderná zařízení obecně platí minimální třídy netěsností $L = 10^{-2}$ mg m^{-1} s^{-1} což je o řád přísnější než v ostatní průmyslové praxi. Provozní chyby mající vliv na technickou bezpečnost přírubových spojů jsou často zapříčiněny nekázní obslužného personálu. Jedná se o to, že přírubový spoj je zatížen např. vyšším tlakem nebo vyšší teplotou než je pro tento spoj resp. celé zařízen předepsáno. Důležité je zejména dodržování dovolených teplotních gradientů při náhřevu nebo vychlazování zařízení. Tyto provozní chyby jsou v jaderných elektrárnách omezeny

provozními předpisy, které jsou detailně zpracovány a jejich dodržování je přísně kontrolováno. Posledním faktorem mající vliv na integritu přírubového spoje je montážní kázeň. Tento poslední faktor je nejrizikovějším faktorem ovlivňujícím technickou bezpečnost samotných přírubových spojů. Důležité je přistupovat ke každému typu těsnění samostatně a uplatňovat montážní postupy podle předpisů výrobce těsnění. Pro montáž přírubových spojů s kovovým těsněním platí jiná pravidla a limity, než pro montáž přírubových spojů s těsněním na grafitové bázi. U kovových těsnění (která byla masivně používána do 90. let) v zásadě platí pravidlo, že čím více je spoj utažen, tím více je zajištěna jeho těsnost. U těsnění grafitových jde o určitý interval možných utahovacích tlaků, které je nutné při montáži dosáhnout. Při nedosažení potřebného tlaku logicky nedojde ke správnému zatěsnění spoje, ale důležitou limitou je i maximální utahovací tlak. Při překročení toho tlaku často dojde k vytlačení celého objemu grafitu z těsnících ploch a při natlakování a nahřátí spoje dojde k odlehčení přítlaku na těsnících plochách a pružný člen – grafit, který ve spoji již není, nemůže kompenzovat toto odlehčení a případné teplotní dilatace spoje. Výhodou většiny těsnění založených na grafitové bázi je zpravidla nižší potřebný utahovací tlak než u kovových těsnění, čímž dochází ke zvyšování životnosti přírub a šroubů.



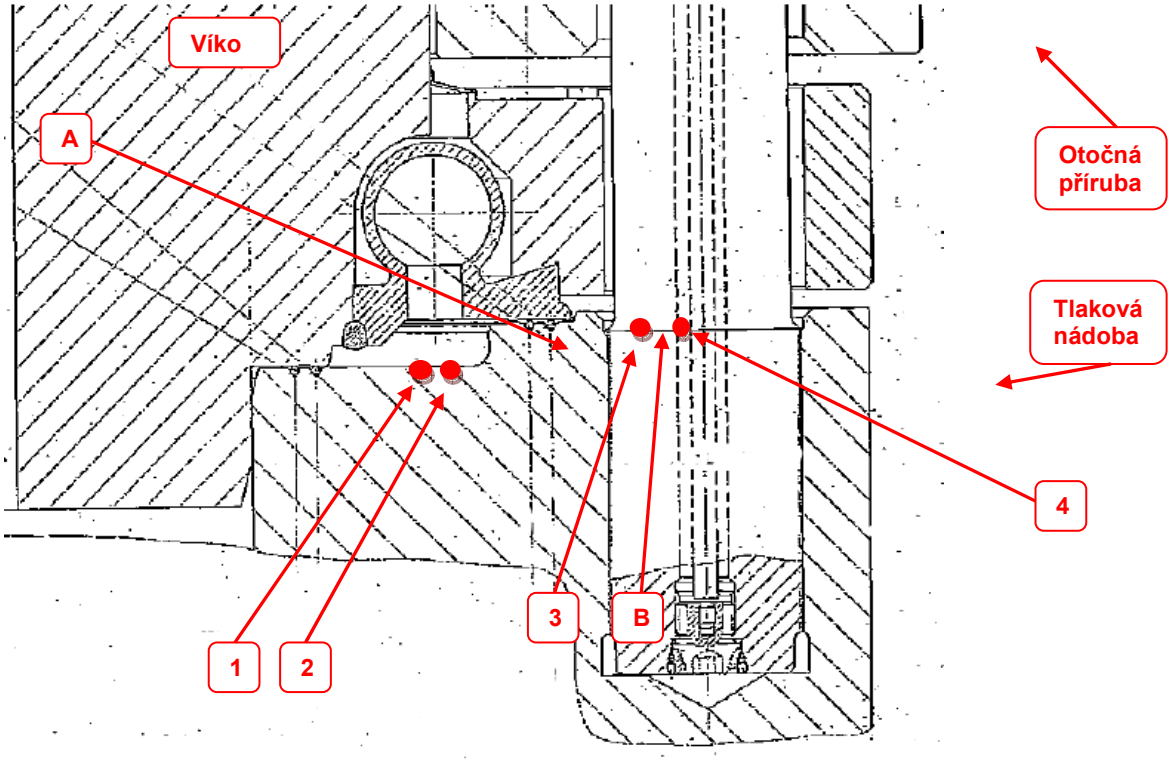
Obr. 1 - Utahovák hlavního přírubového spoje reaktoru VVER 440, JE Dukovany [1]

Pro zvýšení přesnosti montáže a zajištění rovnoměrného přítlaku na těsnění jsou na jaderných elektrárnách voleny metody s co nejnižším rozptylem utahovací síly. U většiny spíše menších spojů (např. dělící roviny armatur nebo spoje potrubí pomocných systémů HCČ) jsou používány momentové klíče, které mají rozptyl utahovací síly ±10 až 20 % [2] (záleží na kvalitě momentového klíče a zkušenosti pracovníka). U větších spojů a především u spojů zařazených do BT 1 (průlezy KO, HA, víka kolektorů PG nebo hlavní dělící rovina HCČ jsou utahovány zpravidla hydraulickým momentovým klíčem nebo hydraulickými utahovacími válečky. Zároveň je při tomto utahování kontrolované prodloužení svorníků, jehož přesná hodnota je předepsána. Tímto postupem je zajištěn rozptyl maximálně ±15%. Pro těsnění založená na grafitové bázi, kterých je dnes na našich jaderných elektrárnách většina, je bezpodmínečně důležité dbát také na rovnoměrnost utažení spoje. Té se dosahuje při montáži momentovým klíčem dotahováním do kříže a to v minimálně čtyřech cyklech 50%, 75%, 95% a 100% předepsaného montážního předpětí. Při použití hydraulických utahováků je vhodné použít utahovací hlavy na minimálně třech svornících zároveň. Nejvhodnější způsob utahování přírubového spoje je utahování všech svorníků současně a rovnoměrně. Tento postup je nyní (v ČR) uplatňován na přírubě hlavní dělící roviny tlakové nádoby reaktoru. Zařízení pro utahování přírubového spoje reaktoru víka reaktoru je zobrazeno na předchozím obrázku.

3. Provedení přírubových spojů na zařízeních primárního okruhu VVER

Popis přírubových spojů bude zaměřen zejména na spoje nacházející se na hlavních komponentách primárního okruhu jaderných elektráren v ČR a okolních státech. V podstatě jsou to větší a složitější spoje, jichž je většina zařazena do BT 1. Největším přírubovým spojem primárního okruhu je bezpochyby přírubový spoj víka tlakové nádoby reaktoru tzv. hlavní dělící rovina HDR. Montážní předpětí u tohoto spoje je kontrolováno prodloužením svorníků. Řešení na reaktoru VVER 440 se značně liší od řešení utěsnění HDR VVER 1000. Na následujícím obrázku je znázorněn řez HDR VVER 440. Hlavní dělící rovina u toho reaktoru je složitější a obsahuje celkem čtyři těsnící niklové kroužky usazené ve dvou rovinách oproti VVER 1000, kde jsou použity pouze dva niklové kroužky v jedné rovině. Z hlediska kontroly a možných bezpečnostních prvků je jistě vhodné použít více těsnících kroužků. Na druhou stranu je

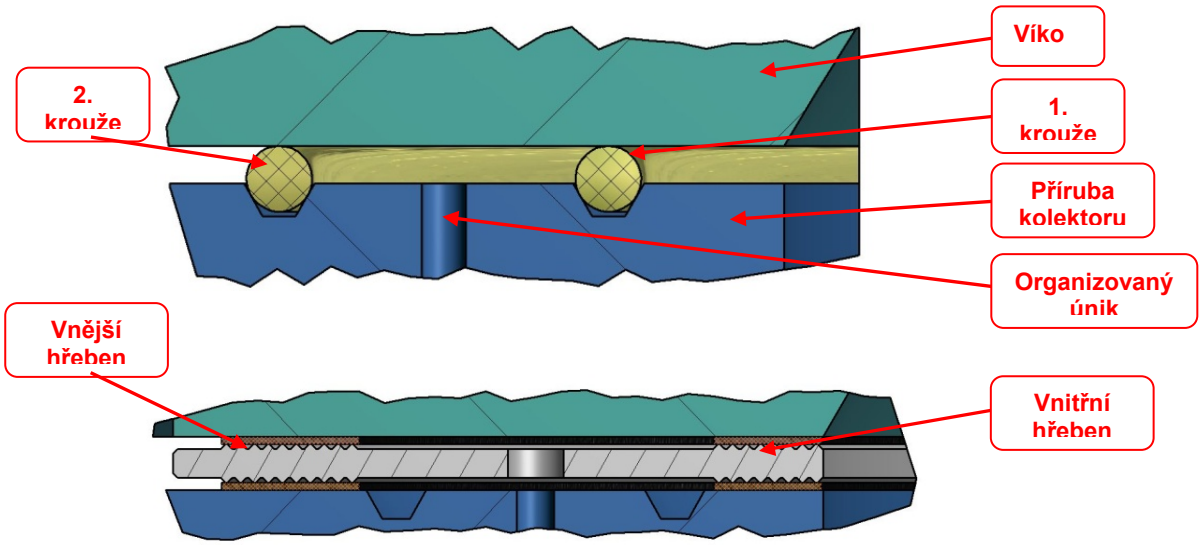
do tohoto spoje vneseno množstvím těsnících prvků více nejistot a potenciálně možných netěsností. Zároveň se tím komplikuje a prodlužuje doba kontrol po montáži. I když první idea uvažuje s tím, že lze přesněji zkontrolovat funkci jednotlivých těsnících prvků, nelze rozhodnout o správné těsnosti obou vnitřních kroužků, protože těsnostní zkouška prvního meziprostoru buď odhalí netěsnost obou kroužků zároveň, nebo potvrdí těsnost prvního nebo druhého nebo obou kroužků zároveň nikdy ale nerozhodne o tom, který z nich je těsný a který ne. Z tohoto důvodu je ztracena teoretická možnost zálohy prvního kroužku kroužkem druhým. Systém pouze dvou niklových kroužků umístěných v jedné rovině jako je na HDR VVER 1000 je pak používán i na dalších spojích jako je např. přírubový spoj víka kolektoru PG nebo na průlezech hydroakumulátorů a iontových filtrů.



A – Kontrolní prostor mezi 2. a 3. niklovým kroužkem
B - Kontrolní prostor mezi 3. a 4. niklovým kroužkem

Obr. 2 - Hlavní dělící rovina reaktoru typu VVER 440 [3]

Na obr. č. 3 je znázorněn přírubový spoj primárního víka kolektoru PG VVER 440. U těchto spojů je stejně jako u reaktoru montážní síla kontrolována prodloužením svorníků. Původní utěsnění tohoto spoje bylo realizováno dvěma niklovými kroužky, které byly horní rovnou těsnící plochou dotlačovány do klínové drážky. Prostor mezi prvním a druhým kroužkem je za provozu monitorován na případný nárůst tlaku. Po montáži se natlakováním tohoto prostoru ověřuje správnost montáže. V době rozvoje těsnění na grafitové bázi začali vznikat na mnoha elektrárnách požadavky na těsnění, která budou potřebovat nižší utahovací síly a lepší vlastnosti z hlediska kompenzace dilatačních pohybů víka. Proto byl původní systém zatěsnění zaměněn za dvojité hřebenové těsnění obložené expandovaným grafitem. Toto těsnění je používáno na mnoha těchto parogenerátorech, kde je umístěno na rovinných plochách přírubového spoje.

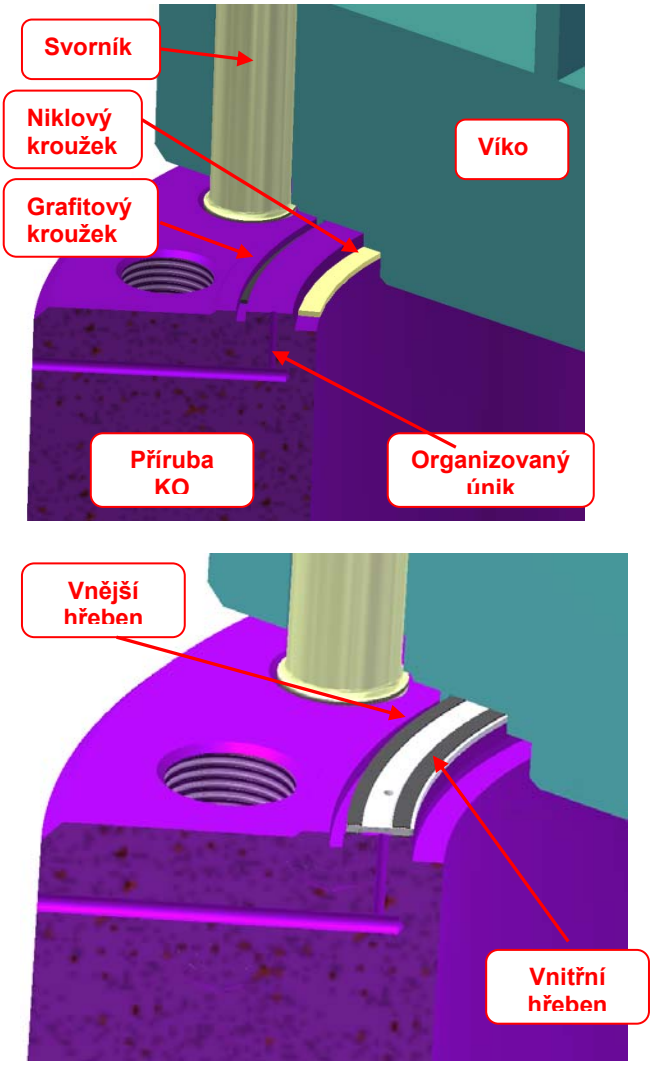


Obr. 3 - Systém utěsnění víka kolektoru PG VVER 440 [3]
(Nahoře: dva niklové kroužky ve „V" drážce
Dole: dvojité hřebenové těsnění s expandovaným grafitem)

Na nádobě kompenzátoru objemu KO VVER440 se nachází (kromě několika malých spojů) pouze jeden rozebíratelný spoj a to je průlez, který je umístěn v horním dně nádoby. Na KO VVER 1000 je tento spoj použit také s tím, že víko je masivnější. Dále jsou na nádobě KO umístěny bloky elektroohříváků jenž jsou utěsněny stejným systémem jako je víko průlezu KO. Těchto přírubových spojů je na nádobě celkem 28 a jsou umístěny ve spodní části nádoby kolmo k ose nádoby KO. U KO VVER 440 jsou bloky elektroohříváků menší, proto je těsnost zajištěna svarovým spojem. Původní projektový návrh uvažoval s použitím niklového plochého těsnění a azbestové (později) grafitové šňůry umístěné v jiné rovině než je umístěn plochý těsnící kroužek. Z několika důvodů (především těsnosti sekundárního těsnění) jsou na těchto spojích aplikovány opět dvojitá hřebenová těsnění s expandovaným grafitem – stejný systém jak byl popisován na předchozím spoji. Na následujícím obrázku je znázorněn přírubový spoj elektroohříváku KO VVER 1000.

Dále se v primárním okruhu nachází hlavní cirkulační čerpadlo HCČ, u kterého je hned několik rozebíratelných spojů. Zejména u vložených chladicích systémů. Největším rozebíratelným spojem u této komponenty je spojení ulity čerpadla s tělesem čerpadla. Je to v podstatě druhý největší přírubový spoj (po HDR reaktoru) nacházející se na hlavních komponentách primárního okruhu. Jedná se o nenormalizovaný kruhový přírubový spoj, který slouží k demontáži a následné opravě nebo servisu čerpadla. V tomto spoji je rovněž umožněna kontrola prodloužení svorníků pro správnou montáž přírubového spoje a těsnění.

Původní systém utěsnění této dělící roviny byl zajištěn nerezovým plochým těsněním a grafitovou šňůrou umístěnou v drážce v jiné rovině jako sekundárním těsněním. V průběhu doby bylo primární nerezové těsnění na mnoha jaderných elektrárnách nahrazeno hřebenovým těsněním s expandovaným grafitem. Hlavním důvodem této změny je rapidní snížení utahovacích sil a snížení tlaků působících na těsnění a na těsnící plochy. Tím se zároveň zvýšila životnost těsnících ploch resp. životnost celých přírub.



Obr. 4 - Systém utěsnění průlezu KO [3]
(Nahoře: ploché niklové těsnění + graf. šňůra)
(Dole: dvojité hřebenové těsnění s exp. grafitem)

4. Závěr

Uvážíme-li pouze základní komponenty primárního okruhu tj. reaktor, parogenerátor, hlavní cirkulační čerpadlo a kompenzátor objemu můžeme hovořit o relativně malém počtu rozebíratelných spojů, které mají vždy přímý vliv na jadernou bezpečnost. Z hlediska reaktoru se jedná o přírubový spoj hlavní dělící roviny a přírubové spoje pro připojení nátrubků lineálních krokových pohonů. Tyto spoje jsou nejrizikovějšími, protože jejich selhání může v krajním případě ovlivnit samotnou kritičnost reaktoru. HDR reaktoru přímo silově působí na blok ochranných trub a ten dotlačuje palivo uložené v aktivní zóně. Lineální krokové pohony ovládají regulační kazety resp. klastry, kterými je řízen výkon reaktoru. Selháním dalších spojů jako je víko primárního kolektoru PG, hlavní dělící rovina HCČ, víka elektroohříváků KO a průlez KO je riziko ztráty tlaku primárního chladiva a tím ohrožení chlazení aktivní zóny v reaktoru.

U dalších zařízení a systémů lze hovořit o nepřímém vlivu na jadernou bezpečnost, protože jsou minimálně 100% zálohovány. Tím se jejich vliv na jadernou bezpečnost sníží a riziko vniklé selháním některého přírubového spoje se snižuje. Příkladem jsou například systém ozn. TK tj. systém doplňování primárního okruhu a regulace kyselinou boritou. V tomto systému jsou aktivní komponenty řešeny dvojnásobným paralelním řazením.

5. Zdroje

[1] Utahováky [online] © 2009 ŠKODA JS a.s.; [cit. 2012-12-28]. Dostupné z: http://www.skoda-js.cz/cs/vyrobky-a-sluzby/zarizeni-pro-jaderne-elektrarny-typu-vver-a-rbmk/utahovaky.shtml

[2] Lukavský J., Montáž přírubových spojů tlakových zařízení., první vydání. Líbeznice. Medim spol. s r.o., Asociace pracovníků tlakových zařízení., 2012, 32 s. ISBN 978-80-87140-24-6

[3] Firemní podklady společnosti MICo, spol. s r. o.

SEPARACE A STANOVENÍ TRANSPLUTONIOVÝH PRVKŮ

Pavel Bartl, Jana Šuľaková, Jan John
ČVUT Praha
Katedra jaderné chemie

Abstrakt

Práce je zaměřena na přípravu vzorků pro α spektrometrii pomocí elektrodepozice, kde jsou tyto vzorky získané separací americia extrakční chromatografií za použití různých extrakčních činidel (DEHPA (kyselina di-2-ethylhexylfosforečná, TODGA (N,N,N‘,N‘-tetraoktyldiglykolamid) a H_2DEH[MDP] kyselina bis(2-ethylhexyl)methandifosforitá)). Na přípravu vzorků pro elektrodepozici mají vliv zejména hodnoty váhových distribučních koeficientů separovaného iontu v daném separačním systému. Průběh elektrodepozice je ovlivněn mimo jiné hodnotou pH roztoku elektrolytu, koncentrací elektrolytu a dobou elektrodepozice. V této práci byl elektrodepozitní systém nejprve optimalizován na výtěžku elektrodepozice uranu, a poté byla elektrodepozice americia prováděna v prostředí síranového a šťavelanového pufru. Pro americium byly dosažené tyto výtěžky elektrodepozice: v prostředí síranového pufru ~ 80 % a v případě šťavelanového pufru > 99 %.

1. Úvod

Mezi transplutoniové prvky řadíme všechny prvky s protonovým číslem Z větším než 94, tedy prvky následující v Mendělejově periodické soustavě prvků za plutoniem. Hlavní pozornost se pak věnuje především americiu a curiu, které běžně vznikají neutronovými záchyty a následnými β^- rozpady v jaderných reaktorech používajících uranové či plutoniové palivo. Am a Cm hrají významnou roli jak při zpracovávaní vysokoaktivních odpadů vzniklých během provozu jaderných elektráren, tak i při monitorování životního prostředí kontaminovaného v důsledku testů jaderných zbraní či jadernými haváriemi. O jejich využití se uvažuje i v rámci mezinárodního konceptu přípravy nových typů jaderných paliv pro reaktory IV. generace, ve kterém by mělo americium (a případně curium) figurovat jako jedna ze složek těchto paliv [1].

Z výše uvedených důvodů se tedy vyvíjí různé techniky pro jejich separace z nejrůznějších matric. Především důležité jsou separace od ostatních aktinoidů a od lanthanoidů, které se chovají jako neutronové jedy a tvoří se ve větším množství v jaderném palivu coby štěpné produkty. Proto jsou zkoumány především distribuční koeficienty Am a Eu jak pro metodu kapalinové extrakce, tak pro extrakční chromatografii (SPE). Používá se značné množství extrakčních činidel, které různě silně váží dané prvky.

Jelikož jsou izotopy těchto prvků především α zářiče, využívá se k jejich měření kromě kapalinové scintilační spektrometrie především spektrometrie α. Tato detekční metoda má však přísné požadavky pro vzorky [2]:

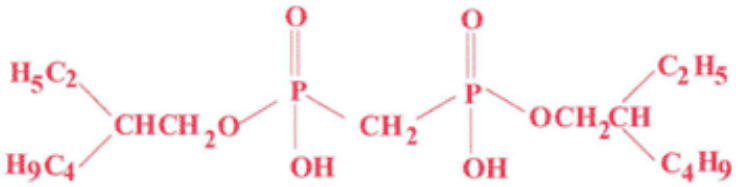
- Infinitezimální tenkost (prakticky < 10 μm)
- Uniformnost
- Plochost

Pro přípravu vzorků pro α spektrometrii existuje několik metod, jako odpaření, elektrosprejování, mikrospolusrážení či elektrodepozice. V našem systému je zvolena metoda elektrodepozice, která by měla dobře splňovat všechny tři podmínky pro α-spektrometrické vzorky[3].

2. Extrakční chromatografie

Extrakční chromatografie, nebo také extrakce na pevné fázi, je separační technika kombinující selektivitu kapalinové extrakce a jednoduchost kolonového uspořádání uplatňujícího se v chromatografii. Systém pro extrakční chromatografii sestává ze tří základních komponent – inertního nosiče, stacionární fáze a mobilní fáze. Inertní nosič může být povahy anorganické, např. silika gel, nebo organické, jako např. kopolymer polystyrenu a divinylbenzenu či polyakrylonitril (PAN). Tyto makroporézní materiály mají pevnou strukturu, vysoký měrný povrch (150 – 900 m^2/g), vysokou mechanickou odolnost a při impregnování jen nepatrně mění objem. Jejich porozita se zpravidla pohybuje mezi 0,4 – 0,6. Stacionární fázi obvykle tvoří organická extrakční činidla, která se používají i pro kapalinovou extrakci (cheláty, iontové asociáty..). Mobilní fáze je obvykle kyselý roztok (např. roztoky HNO_3 nebo HCl) někdy obsahující komplexotvorná činidla, jako jsou např. kyselina šťavelová, EDTA a jiné. Komplexační činidlo se užívá pro zvýšení selektivity nebo pro reextrakci silně vázaných kovových iontů v koloně.

V našich pracích nebyla SPE ještě zcela zavedena, ale v brzké budoucnosti budou zkoumány extrahenty DEHPA-PAN a TODGA-PAN, které již jsou v jistých oblastech úspěšně zavedeny, a H_2DEH[MDP]-PAN (obr. 1), u kterého bylo prokázáno, že má za určitých podmínek vysokou afinitu k Am i dalším aktinoidům. Konkrétně, váhové distribuční koeficienty pro Am v 0,1M HCl dosahují řádově až 10^8 mL/g. Takto vysoké distribuční koeficienty jsou, nicméně, mnohdy i na škodu, neboť s vysokou afinitou přichází i neochota eluovat se, a tak se případně musí zachycené ionty získat celkovou mineralizací sorbentu [4].



Obr. 1 - Struktura H_2DEH[MDP] (kys. bis(2-diethylhexyl)metandifosforité)

3. Elektrodepozice

Elektrodepozice je v současné době jedna z nejvíce studovaných metod přípravy vzorků pro α spektrometrii. Radionuklidy jsou elektrolyticky naneseny na kovovou planžetu (z nerezové oceli, tantalu či platiny). Běžně je elektrodepozice prováděna z vodného roztoku elektrolytů. Nejčastěji používané elektrolyty jsou buď amonné soli (síran, chlorid, šťavelan, mravenčan aj.) nebo pufry (octanový, síranový aj.). Funkci katody zastává kovová planžeta (např. z nerezové oceli). Jako anoda se nejčastěji používá platinový drátek.

Vzhledem k tomu, že byl elektrodepoziční systém při zavedení metody elektrodepozice zcela nový, optimalizoval se nejprve na přírodním uranu, který, jak byl později ukázáno, se v použitém prostředí chová obdobně jako americium [5].

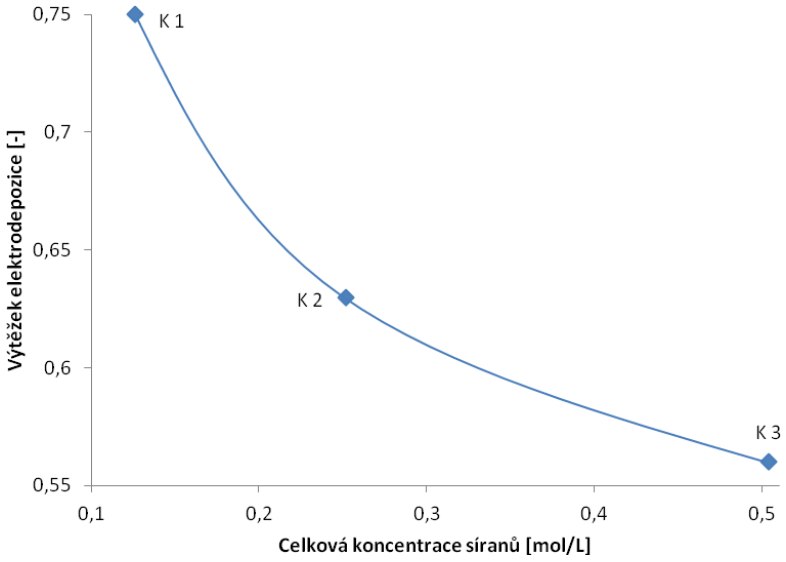
Elektrodepozice uranu byla prováděna v síranovém pufru, sestávajícího z Na_2SO_4 a $NaHSO_4$, za konstantního proudu 675 mA, proměnné koncentrace síranového pufru a proměnného času. Do cely byly přidávány 2 mL roztoku $UO_2(NO_3)_2$ o měrné aktivitě 6,2 Bq/mL a 8 mL roztoku pufru. Souprava na elektrodepozici – Electrodeposition System Alpha-Elec-2/25 - byla vyrobena firmou TRACERLAB GmbH a skládala se z elektrolyzéru TT*i* EL302RD Dual Power Supply s nastavitelným napětím (max 30 V) i proudem (max 2 A), elektrodepoziční cely z plexiskla vybavené ještě vnitřním plastovým trychtýřkem, katody z nerezové oceli (Ø 25 mm), cylindrické platinové anody a spojovacích kabelů.

Americium bylo deponováno ze síranového pufru za stejných podmínek jako uran, pouze do cely bylo k 10 mL elektrolytu přidáno 10 µL $Am(NO_3)_3$ o měrné aktivitě 2 Bq/µL. Elektrodepozice Am ze síran-šťavelanového pufru byla prováděna za konstantního proudu 1376 mA, při koncentraci elektrolytu 43 g/L $(NH_4)_2(COO)_2$, 53 g/L $(NH_4)_2SO_4$ a 18 g/L $(NH_3OH)_2SO_4$, a po dobu 1 h. Elektrolyt byl okyselen na pH 1,8. Do 10 mL elektrolytu bylo taktéž přidáno 10 µL Am.

Měření aktivity deponovaných vzorků bylo provedeno pomocí α spektrometru Ortec Octete Plus s detektorem Ortec Model BU.020.450:AS. Na vyhodnocení spekter byl použit program AlphaVision 5.3.

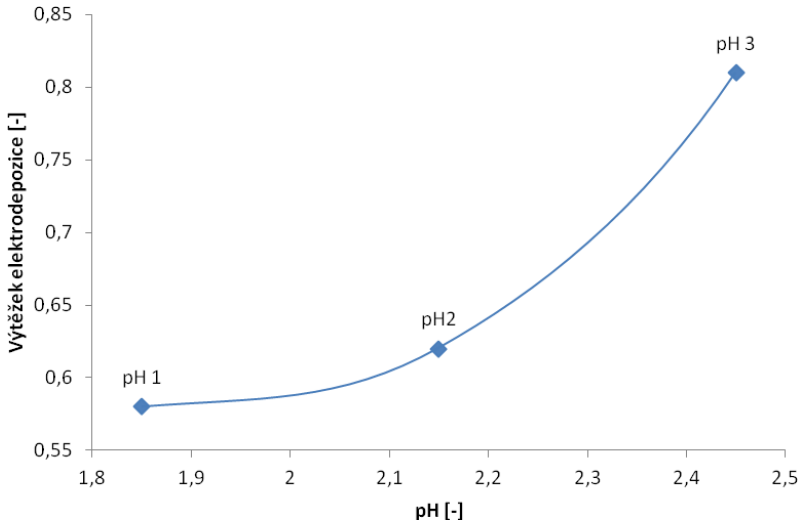
4. Výsledky

Nejprve byl studován vliv koncentrace elektrolytu při konstantním poměru $(SO_4)^{2-}/(HSO_4)^-$ aniontů a tedy i konstantním pH (viz obr. 2) na výtěžek elektrodepozice uranu. Byly provedeny 3 série experimentů s následujícími koncentracemi elektrolytu: 0,424M Na_2SO_4 + 0,080M $NaHSO_4$ (0,504 M v celkové koncentraci síranů), 0,212M Na_2SO_4 + 0,040M $NaHSO_4$ (0,252 M v celkové koncentraci síranů) a 0,106M Na_2SO_4 + 0,020M $NaHSO_4$ (0,126 M v celkové koncentraci síranů). Doba elektrodepozice byla 60 min a počáteční napětí rostlo v sérii experimentů s klesající celkovou koncentrací síranů – napětí na konci depozice bylo 6, 7 respektive 8,5 V. Z obr. 2 je patrné, že výtěžek elektrodepozice rostla s klesající celkovou koncentrací síranů. Nicméně není možné neustále snižovat síranovou koncentraci za dosažení stále vyššího výtěžku, neboť již při dalším dvojnásobném poklesu koncentrace neteče systémem prakticky žádný proud (řádově jednotky µA).

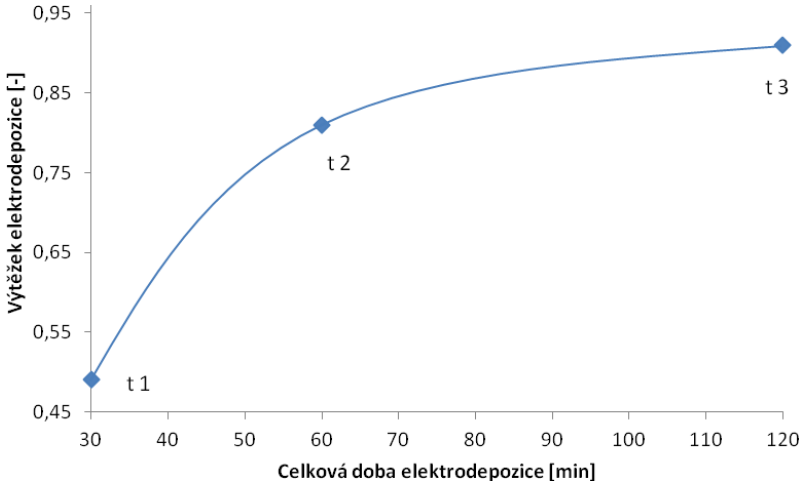


Obr. 2 - Graf závislosti výtěžku elektrodepozice uranu na celkové koncentraci síranů

Bylo zjištěno, že v systému složeného z 0,068M Na_2SO_4 a 0,020M $NaHSO_4$ je výtěžek elektrodepozice uranu ještě vyšší, konkrétně 81 %. Takovýto roztok měl již nižší pH než roztoky předchozí, a tak probíhala další optimalizace změnou, konkrétně poklesem, pH (viz obr. 3). Roztoky uranu o různých pH byly připraveny pomocí měnění koncentrace kyselé složky pufru, tedy $NaHSO_4$. Stejně jako u předchozích byly provedeny 3 série experimentů, přičemž během každého byla držena koncentrace Na_2SO_4 konstantně na 0,068 M. Koncentrace $NaHSO_4$ byly následující: 0,020 M, 0,040 M a 0,080 M. Z obr. 3 je zřejmé, že dalším snižováním pH (a zároveň zvyšováním koncentrace $NaHSO_4$) výtěžek elektrodepozice uranu klesal. Je možné, že nízkých výtěžků pro vyšší pH bylo dosaženo v důsledku zvýšené celkové síranové koncentrace, což by korespondovalo s obr. 2. Trend z obr. 2 je uplatněn i na obr. 3, neboť bod „pH 3“ má ještě nižší celkovou síranovou koncentraci než bod „K 1“ na obr. 2, konkrétně 0,088 M. Grafy na obr. 2 a 3 nám tedy říkají, že spíše než pH je určující pro nejlepší výtěžek elektrodepozice uranu mít co nejnižší celkovou koncentraci síranů.



Obr. 3 - Graf závislosti výtěžku elektrodepozice uranu na pH



Obr. 4 - Graf závislosti výtěžku elektrodepozice na celkové její době

Jako prozatím nejlepší roztok pro elektrodepozici uranu byl tedy určen ten, který odpovídá bodu „pH 3“ na obr. 3, tj. 0,068M Na_2SO_4 a 0,020M $NaHSO_4$. Za tohoto složení se pak provedly opět 3 série experimentů s rozdílnou dobou elektrodepozice uranu, a sice 30, 60 a 120 min (viz obr. 4). Tento experiment nám ukázal, že s rostoucí dobou elektrodepozice uranu roste i její výtěžek, neboť po 120 minutách elektrodepozice z výše uvedeného roztoku bylo dosaženo vůbec nejlepšího výtěžku – 91 %.

Při zjištěných podmínkách nejvyššího výtěžku elektrodepozice uranu, tj. 0,068M Na_2SO_4 + 0,020M $NaHSO_4$, bylo poté stanoveno americium. Výsledkem byl výtěžek elektrodepozice americia 80 %, což je pro stejné podmínky přibližně stejná hodnota jako pro uran (81 %). Potvrdil se tedy předpoklad, který byl uveden v úvodu.

Elektrodepozice ze síran-šťavelanového pufru se však prokázala ještě efektivnější, neboť výtěžek pro americium činil > 99 % již pro dobu 1 hodiny. Takto vysoký výtěžek přikládáme jednak absenci interferujících Na^+ iontů a jednak vyšší proudové hustotě. Navíc bylo v tomto systému zjištěno, že značný vliv na výtěžek elektrodepozice má vzdálenost mezi anodou a katodou, a tedy i napětí v systému. Uvedený výtěžek byl dosažen při vyšším napětí (~ 10 V, $d_{an\text{-}ka}$ ~ 5 mm), kdežto při napětí nižší (~ 9 V a méně) se pohybovaly výtěžky pod hranicí 90 %.

5. Závěr

Vzorky Am pro α spektrometrii lze kvantitativně i kvalitativně připravit pomocí elektrodepozice z výše uvedených systémů. Lepší vlastnosti přitom vykazuje systém s amonnými a hydroxylamonnými kationty, ze kterého je deponováno více než 99 % přítomného Am. V budoucnu budou ještě zkoumány další systémy a to především ty, které by mohly výhodně navazovat na eluci americia ze SPE kolonky, jako kyselina glykolová, kyselina citronová, dusičnany, trhiokyanatany aj. Dále bylo potvrzeno, že se v systému síranového pufru chová americium obdobně jako uran a to tak, že s rostoucí dobou elektrodepozice a se snižující se koncentrací elektrolytu roste její výtěžek.

Pozornost bude také věnována SPE jako takové. Již započaly práce s extrahenty DEHPA-PAN a TODGA-PAN, a od nového roku také s H_2DEH[MDP]-PAN, při separaci Am z provozních vzorků JE (prostředí H_3BO_3) a vzorků životního prostředí (mechy).

6. Literatura

[1] BARTL, P. *Separace a stanovení transplutoniových prvků*. Bakalářská práce. ČVUT v Praze, 2012.

[2] VAJDA, N.; KIM, Ch. - Y. *Determination of ^{241}Am isotope: a review of analytical methodology*. J Radioanal Nucl Chem (2010) 284:341-366.

[3] LALLY, A. E.; GLOVER, K. M. *Source Preparation in Alpha Spectrometry*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research (1984) 223:259-265.

[4] HORWITZ, E. P.; CHIARIZIA, R.; DIETZ, M. L. *DIPEX: A new extraction chromatografphic material for the separation and preconcentration of actinides from aqueous solution*. React Funct Polym (1997) 33:25-36.

[5] PLINOIS, A.; HAAS, D.; LANDSBERGER, S.; BROOKS, G. *A robust, field-deployable method for the electrodeposition of actinides*. J Radioanal Nuc Chem (2008) 276:2.

ANALÝZA VLIVU NEJISTOT URČENÍ KOEFICIENTU NÁSOBENÍ PRO PALIVA S VYHOŘÍVAJÍCÍM ABSORBÁTOREM

Jan Frýbort
ČVUT Praha
Katedra jaderných reaktorů, FJFI

1. Abstrakt

Výpočet průběhu vyhořívání paliva v aktivní zóně reaktoru je nezbytnou součástí bezpečnostních analýz. Výsledky jsou vždy zatíženy nejistotami plynoucími z použitého numerického řešení transportu neutronů a bilance materiálů. Nedílnou součástí jsou ovšem také nejistoty určení jaderných dat. Výsledná přesnost výpočtu koeficientu násobení v průběhu vyhořívání paliva byla analyzována pro palivo reaktoru VVER-1000. Byly kvantifikovány nejistoty jaderných dat a jejich vývoj v průběhu vyhořívání paliva. Zvláštní část je dále věnována citlivosti výsledků na obsažené vyhořívající absorbátory. Pro analýzu byl použit nástroj TSUNAMI-2D vyvíjený v Oak Ridge National Laboratory jako součást balíku SCALE.

2. Výpočty neurčitostí

Pokrok v numerických metodách výpočtu parametrů jaderných reaktorů během jejich provozu umožňuje zabývat se více spolehlivostí uvedených výpočtů a především jejich neurčitostmi. Ty mohou jednak vyplývat ze samotné numerické metody, případně její nevhodné aplikace. Další kapitolou jsou nejistoty v jaderných datech, které způsobují, že i přesný numerický výpočet je zatížen chybou, kterou není možné odstranit delším či podrobnějším výpočtem.

Aby byla zajištěna bezpečnost výpočtů kritičnosti jaderných reaktorů a násobících soustav, uvažuje se při bezpečnostních analýzách s nejistotami v jaderných datech. Protože velikost této neurčitosti je obtížné kvantifikovat, volí se konzervativní kritérium 5 %.

Nový nástroj pro automatickou analýzu nejistot výpočtu vycházejících z jaderných dat je vyvíjen v Oak Ridge National Laboratory v USA. Pod názvem TSUNAMI [1] je distribuován jako součást balíku SCALE. V závislosti na povaze úlohy je možné využít 1D či 2D deterministické řešení transportní rovnice, nebo 3D Monte Carlo přístup. Výsledky transportních výpočtů jsou automaticky zpracovány a nejistota výpočtu koeficientu násobení je vypočtena. Dále je možné definovat nové systémové odezvy (např. rozložení výkonu v palivovém soubory) a sledovat jejich citlivost na jaderná data v závislosti na energii. Ilustrace tohoto přístupu byla připravena pro 2D výpočet koeficientu násobení palivového souboru reaktoru VVER-1000 v průběhu vyhořívání v reaktoru.

Vyhořívající absorbátor v podobě Gd_2O_3 se používá k potlačení přebytku reaktivity v počátku provozu čerstvého paliva v reaktoru. Palivové tyče s přidaným Gd_2O_3 se umísťují do vybraných pozic v palivovém souboru a celkem se jejich počet pohybuje mezi 6 až 18 v souboru celkem 312 palivových tyčí. Vliv přítomnosti vyhořívajícího absorbátoru na neurčitosti výpočtu byl sledován.

3. Postup výpočtu

Původní zaměření modulu TSUNAMI na výpočty neurčitostí a citlivosti výsledků koeficientu násobení na změnu jaderných dat bylo značně rozšířeno s vydáním verze SCALE6.1. TSUNAMI provádí automatické zpracování informací o materiálovém složení definované ve vstupním souboru, zpracování údajů o účinných průřezech a výpočet účinných průřezů vážených přes jednotlivé buňky geometrie, dále výpočet transportu neutronů, citlivosti výsledků a jejich nejistot v důsledku variací účinných průřezů.

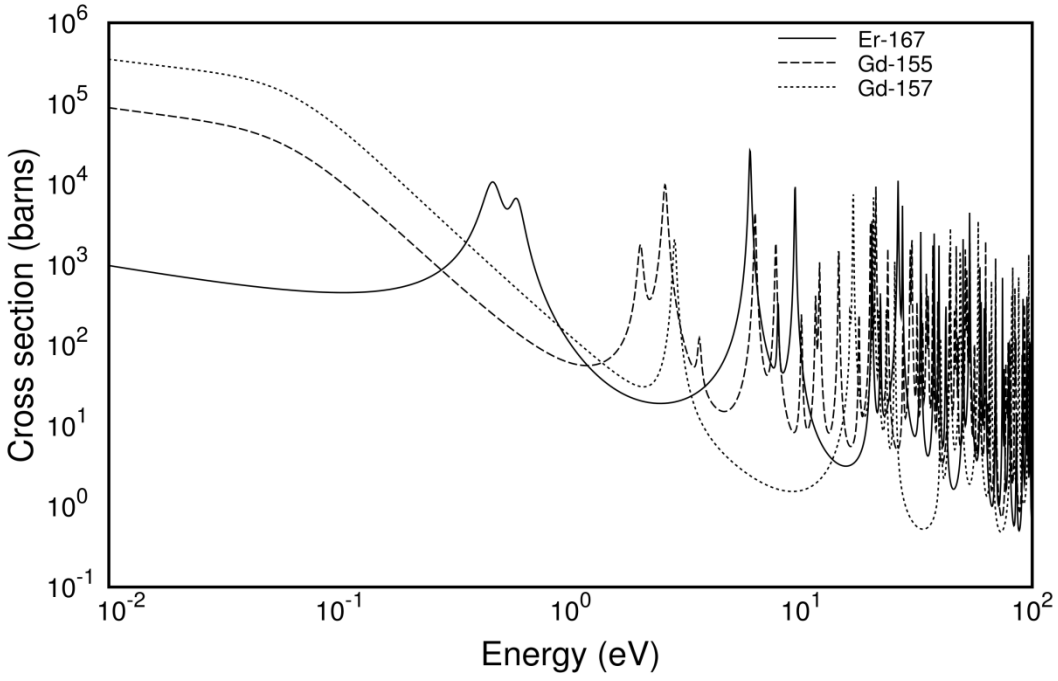
Samotný výpočet neurčitostí a citlivostí provádí modul SAMS, který vychází z výsledků dopředného a sdruženého transportního výpočtu. Jeho výpočet vychází z dlouho udržované a doplňované knihovny jaderných dat, která obsahuje informace o kovariancích [2]. Tyto údaje vychází přímo z údajů evaluátorů jaderných dat, nebo z rozboru metodiky použité pro měření účinných průřezů. Výstupy z modulu SAMS jsou finálně zpracovány do strukturovaného html souboru, který významně usnadňuje získávání a zpracování výsledků.

Kompletní dokumentace balíku SCALE obsahuje informace o vstupních parametrech modulu SAMS. ve výchozím nastavení počítá neurčitosti stanovení koeficientu násobení a citlivost tohoto výsledku na jaderná data jednotlivých nuklidů. je možné dále definovat další systémové odezvy, které ovšem musí mít formát poměru zvolených charakteristik (např. poměr aktuální a střední hodnoty výkonu palivové tyče).

4. Palivo VVER-1000 a vyhořívající absorbátory

Ve snaze o dosažení lepšího využití jaderného paliva dochází k prodlužování palivových cyklů a prodlužování intervalů mezi překládkami paliva. To si vynucuje použití vyššího obohacení paliva. Jako důsledek se zvyšuje reaktivita čerstvého paliva, kterou je nutné kompenzovat. Klasická kompenzace absorpčními tyčemi a rozpuštěnými absorbátory není dostatečná a proto se dnes široce uplatňují vyhořívající absorbátory.

Vyhořívající absorbátor musí splňovat dvě základní charakteristiky. Předně musí mít dostatečně vysoký účinný průřez pro absorpci neutronů (minimálně na úrovni U-235) a dále se musí pohlcením neutronu měnit na nový izotop, s výrazně nižším účinným průřezem (podobně jako U-238). Tyto předpoklady splňuje několik materiálů, z nichž se v tlakovodních energetických reaktorech nejčastěji používá gadolinium. Možnou alternativou je erbium.
Následující graf na Obr. 10 ukazuje průběh účinného průřezu pro radiační záchyt neutronů v rozmezí 0,01 až 100 eV při teplotě 900 K. Zachyceny jsou dva izotopy gadolinia a Er-167.



Obr. 10 - Účinný průřez pro absorpci v nuklidech vyhořívajících absorbátorů

Pokud se provede zvážení výše uvedeného účinného průřezu přes tepelné Maxwellowo spektrum, získáme pro Er-167 hodnotu 650 b a pro izotopy gadolinia 61000 b, resp. 253000 b pro Gd-155, resp. Gd-157.

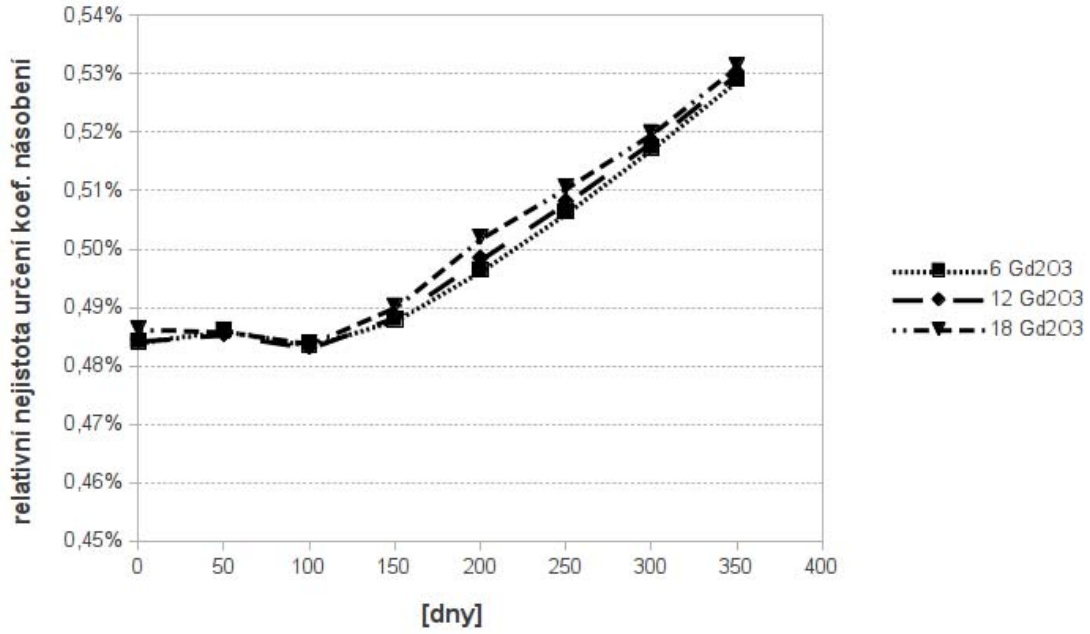
Velikost účinného průřezu v případě gadolinia vede k jeho ohromné efektivitě v potlačení přebytku reaktivity, ale omezuje jeho efektivní využití pouze na počátek provozu daného paliva, protože velmi rychle dochází k jeho vyhoření.

5. Výsledky výpočtu neurčitostí

Pro potřeby této analýzy byl připraven zjednodušený 2D model palivového souboru VVER-1000 s čerstvým palivem. Pro zjednodušení geometrického modelu byla vynechána mezera mezi palivem a pokrytím a centrální dutina. Rozměry palivové části byly zvětšeny tak, aby zaujímaly celý vnitřní poloměr pokrytí. Hustota paliva byla patřičně snížena, aby byla zachována hmotnost paliva v souboru.

Samotný výpočet byl proveden v nekonečné mříži simulované pomocí bílé okrajové podmínky na hranicích souboru. Dostupný 2D transportní kód NEWT z stále neumožňuje aplikovat na nepravoúhlé stěny podmínku odrazu neutronů při zachování úhlů dopadu a odrazu. Všechny palivové tyče byly dále rozděleny do 5 radiálních elementů s identickými objemy. To umožňuje lépe postihnout efekt samostínění významný pro palivové tyče obsahující gadolinium. Základní výpočet neurčitostí stanovení koeficientu násobení v této nekonečné soustavě a citlivosti modelu na hodnotu účinných průřezů byl proveden.

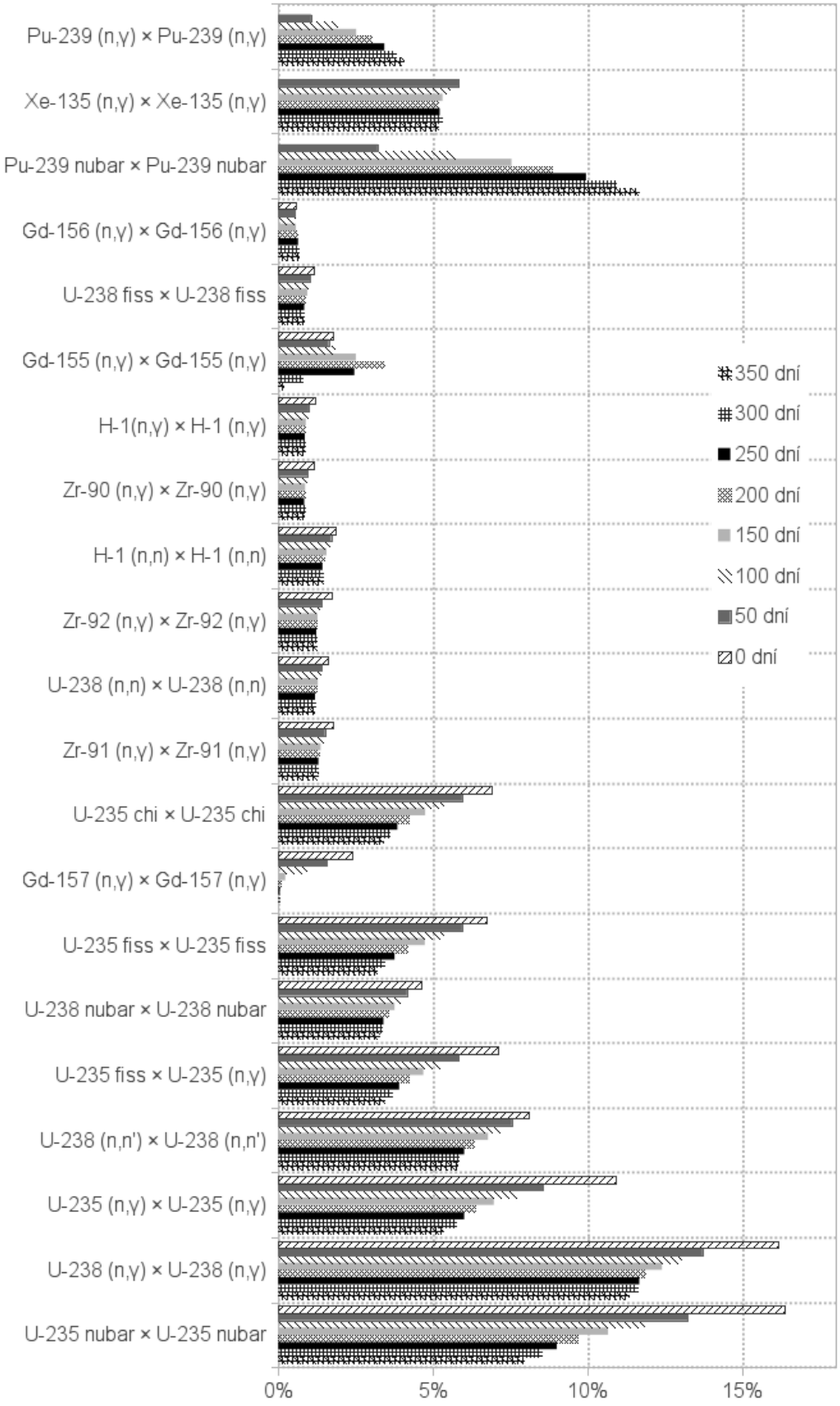
Výsledky byly zaznamenány v průběhu vyhořívání paliva v úsecích po 50 dnech v rozmezí 0 až 350 dní. To odpovídá prvnímu roku provozu daného paliva, kdy je jeho váha v aktivní zóně reaktoru nejvyšší. Výpočet byl dále proveden pro paliva obsahují 6, 12 a 18 gadoliniových tyčí.



Obr. 11 - Vývoj nejistoty výpočtu s časem vyhořívání paliva

Nejistota určení koeficientu násobení uvedená v grafu na Obr. 11 se zvyšuje s rostoucím množstvím gadolinia v modelu. Toto zvýšení neurčitosti se přenáší i do období v průběhu vyhořívání, kdy se již neprojevuje vliv silně absorbujících nuklidů Gd-157 a Gd-155.

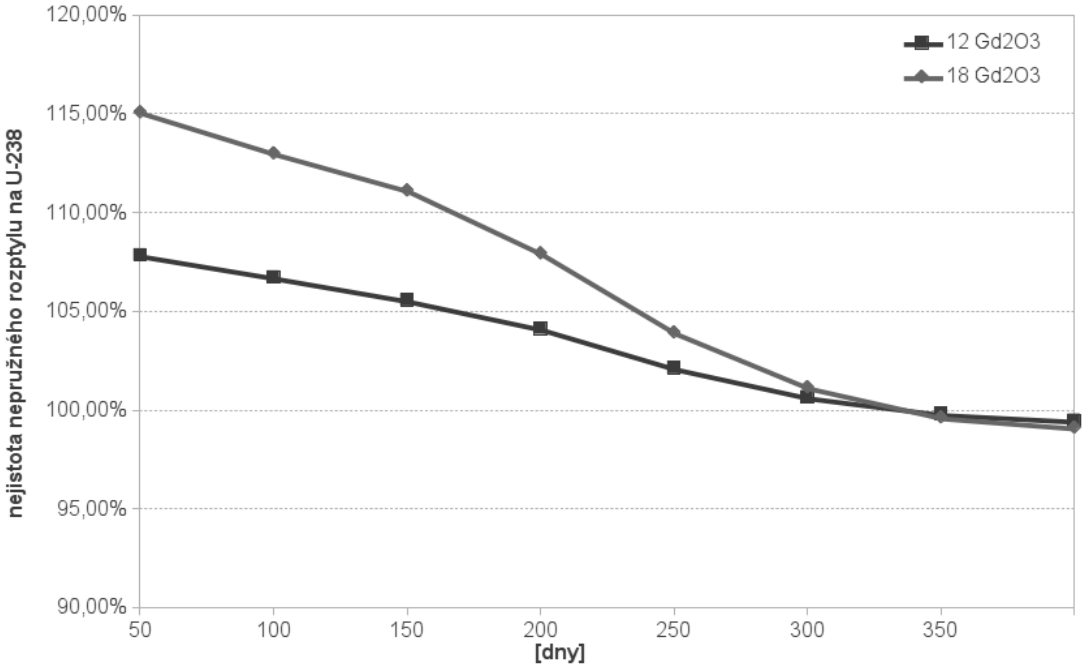
Další graf na Obr. 12 ukazuje skladbu celkové nejistoty určení koeficientu násobení. V čerstvém palivu jsou dominantními efekty nejistoty stanovení základních reakcí neutronů s U-235 a U-238. Velmi silný je efekt nejistoty stanovení výtěžku štěpných neutronů. V závislosti na množství palivových tyčí s Gd_2O_3 tvoří přibližně 4 % celkové míry nejistoty gadolinium. Vliv gadolinia roste přímo úměrně počtu gadoliniových tyčí.



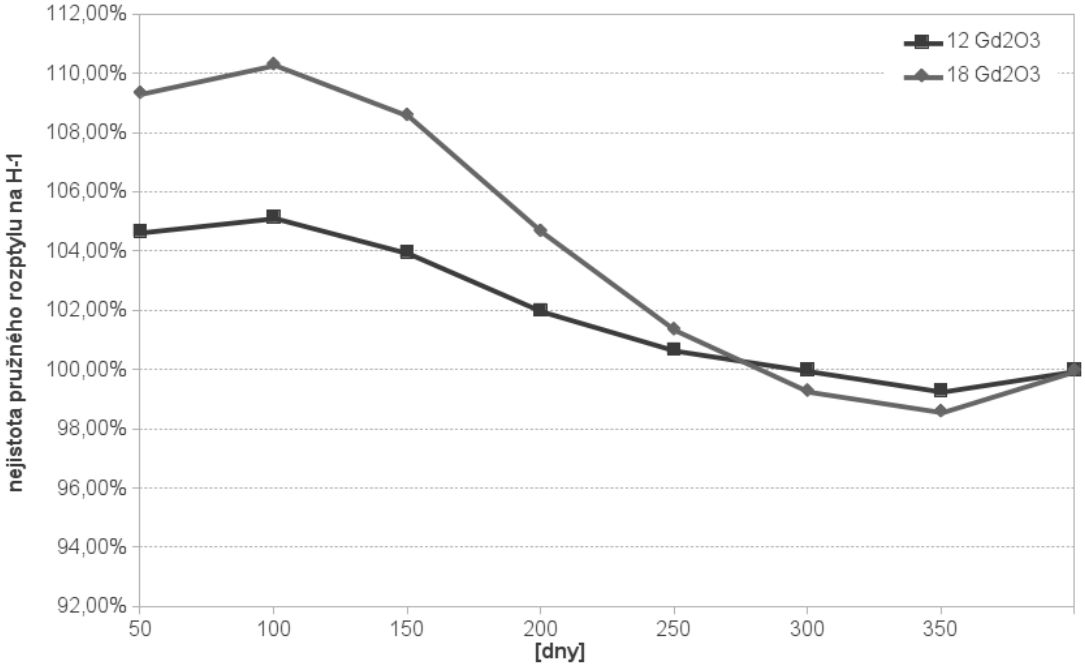
Obr. 12 - Relativní podíly významných reakcí na celkové míře neurčitostí

S postupujícím vyhořováním paliva se projevuje vliv nově vznikajících aktinoidů a štěpných produktů. Zde je nejvýznamnější efekt nejistot reakcí Pu-239 a Xe-135.

Stabilní v čase je míra neurčitosti vztažená k pružnému rozptylu na vodíku. S tím souvisí i vysoká míra podílu nepružného rozptylu na U-238 na neurčitosti stanovení koeficientu násobení.



Obr. 13 - Relativní nárůst podílu nepružného rozptylu na U-238 na nejistotě výpočtu vztažený k modelu s 6 tyčemi obsahujícími Gd_2O_3



Obr. 14 - Relativní nárůst podílu pružného rozptylu na H-1 na nejistotě výpočtu vztažený k modelu s 6 tyčemi obsahujícími Gd_2O_3

Neurčitosti v pružném rozptylu na vodíku a nepružném rozptylu na U-238 znázorněné v grafech na Obr. 13 a Obr. 14 mají velký význam vzhledem k přítomnosti silného absorbátoru v palivu. Přesné stanovení zpomalování neutronů má významný vliv na koeficient násobení.

6. Závěr

N8stroj TSUNAMI z balíku výpočetních kódů SCALE představuje inovativní nástroj pro automatizovanou a podrobnou analýzu nejistot numerických výpočtů vzhledem k neurčitostem stanovení jaderných dat. Umožňuje stanovit potřebnou míru konzervatismu při interpretaci kritických výpočtů.

Analýza prokázala, že nejistota stanovení koeficientu násobení závisí přímo úměrně na množství gadoliniových tyčí v palivu. Tento nárůst ovšem není limitující pro výpočetní spolehlivost. Provedená analýza umožňuje lépe pochopit vzájemné souvislosti mezi reakcemi neutronů na jednotlivých obsažených nuklidech.

7. Literatura

[1] Rearden B. T., et al., *TSUNAMI-1D: Control Module for One-Dimensional Cross-Section Sensitivity and Uncertainty*, ORNL, Oak Ridge Tennessee, USA, June 2011

[2] Chadwick M. B., et al., *ENDF/B-VII.1: Cross sections, covariances, fission product yields and decay data*, Nuclear Data Sheets, (2011)

MODELOVÁNÍ TRANSPORTU NEUTRONŮ S VYUŽITÍM PDR SUDÝCH ŘÁDŮ

Milan Hanuš
ZČU Plzeň
Katedra matematiky FAV

Abstrakt

V příspěvku se budeme věnovat aproximaci transportní rovnice neutronů pomocí parciálních diferenciálních rovnic sudých řádů. Příkladem je difúzní aproximace či její asymptotické zpřesnění v podobě soustavy SPN rovnic. Výhodou těchto aproximací je možnost použití vysoce efektivních numerických metod pro diskretizaci a řešení příslušných soustav lineárních algebraických rovnic. Předpoklady kladené na oba zmíněné modely je ovšem předurčují zejména pro výpočty, v nichž nedochází k výrazným lokálním změnám neutronových toků. V příspěvku bude představen nový způsob konstrukce aproximací tohoto typu, který umožňuje rozšířit oblast jejich použití i na úlohy s výraznějšími transportními efekty, včetně numerických metod vhodných pro jejich praktické použití.

1. Úvod

Numerické modelování transportu neutronů v daném prostředí je nedílnou součástí návrhu jaderných reaktorů, jejich palivových článků i optimálních plánů jejich obměny nebo např. radiačního stínění a pokročilých neinvazivních technik léčení rakovinných nádorů. Z hlediska výpočetních nároků nejefektivnější numerické modely jsou založené na diskretizaci rovnice transportu neutronů (RTN) a rychlém řešení výsledné soustavy algebraických rovnic.

Protože stav neutronu je určen jeho polohou (3 souřadnice), směrem pohybu (2 úhly) a kinetickou energií, je nutné diskretizaci RTN provést vzhledem k celkem 7 nezávisle proměnným. Pro zjednodušení se nebudeme věnovat energetické diskretizaci (budeme uvažovat jednotnou rychlost všech neutronů v systému) a podrobněji se zaměříme na diskretizaci směrovou. Jejím výsledkem je hyperbolická soustava parciálních diferenciálních rovnic v prostorové proměnné, pro jejíž finální diskretizaci existuje velké množství známých numerických metod (konečných objemů, prvků, apod.).

2. Rovnice transportu neutronů

Stacionární rozložení neutronů jednotkové rychlosti v oblasti $V \subset \mathbb{R}^3$ popisuje funkce $\psi = \psi(\mathbf{x}, \mathbf{\Omega})$ prostorové proměnné $\mathbf{x} \in \overline{V}$ a směrové proměnné $\mathbf{\Omega} \in \mathcal{S}_2$ (jednotková sféra)[10], nazývaná *směrový neutronový tok*, která je řešením následující *rovnice transportu neutronů*:

$$\mathbf{\Omega} \cdot \nabla\psi(\mathbf{x}, \mathbf{\Omega}) + \sigma_t(\mathbf{x})\psi(\mathbf{x}, \mathbf{\Omega}) = \int_{\mathcal{S}_2} \kappa(\mathbf{x}, \mathbf{\Omega} \cdot \mathbf{\Omega}')\psi(\mathbf{x}, \mathbf{\Omega}')\,\mathrm{d}\mathbf{\Omega}' + q(\mathbf{x}, \mathbf{\Omega}) \qquad (1)$$

uvnitř oblasti ($\mathbf{x} \in V$) a splňuje okrajové podmínky předepsané na vstupní hranici oblasti ($\mathbf{x} \in \partial V,\ \mathbf{\Omega} \cdot \mathbf{n} < 0$, kde $\mathbf{n}$ označuje vnější normálový vektor k ∂V v bodě $\mathbf{x}$). V rovnici (1) představuje parametr σ_t celkový (totální) makroskopický účinný průřez pro všechny reakce, první člen na pravé straně vyjadřuje implicitní (závislé na řešení) neutronové zdroje (rozptyl do svazku + štěpení) a q reprezentuje explicitní neutronové zdroje.

[10] $\mathbf{\Omega} = \begin{bmatrix} \Omega_x \\ \Omega_y \\ \Omega_z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \sin\vartheta\cos\varphi \\ \sin\vartheta\sin\varphi \\ \cos\vartheta \end{bmatrix} = \mathbf{\Omega}(\vartheta, \varphi), \quad \vartheta \in [0, \pi],\ \varphi \in [0, 2\pi)$

3. Standardní diskretizace směrové závislosti

Nejčastěji používané deterministické výpočetní metody pro řešení transportních úloh provádějí semi-diskretizaci RTN vzhledem ke směrové proměnné pomocí zobecněné Fourierovy metody, jejímž základním stavebním kamenem je vyjádření směrové závislosti neutronového toku konečným rozvojem podle vhodně zvoleného systému bázových funkcí:

$$\psi(\mathbf{x},\mathbf{\Omega}) \approx \sum_{m=0}^{M} \psi_m(\mathbf{x}) F_m(\mathbf{\Omega}). \qquad (2)$$

Metoda diskrétních ordinát (označovaná zkratkou S_N) používá bázové funkce $F_m(\mathbf{\Omega}) = \delta(\mathbf{\Omega} - \mathbf{\Omega}_m)$, kde δ je Diracova delta funkce a $\{\mathbf{\Omega}_m\}_{m=0}^{M}$ zvolená množina směrů (ordinát)[11], která spolu s odpovídající množinou vah tvoří kvadraturu pro numerický výpočet integrálu přes $\mathcal{S}_2$ vystupujícího na pravé straně RTN v členu implicitních zdrojů.

V *metodě sférických harmonických funkcí* (P_N [12]) jsou jako báze Fourierova rozvoje použity sférické harmonické funkce (zkr. SHF), které v případě spojité závislosti $\psi(\cdot,\mathbf{\Omega})$ umožňují rychlejší konvergenci řady (2) pro $M \to \infty$, ovšem mají horší aproximační vlastnosti v případě směrových nespojitostí neutronového toku.

Obě zmíněné volby bázových funkcí vedou na soustavu PDR v prostorové proměnné, již lze zapsat v obecném tvaru

$$\mathbf{A}_x \frac{\partial \mathbf{\Psi}}{\partial x} + \mathbf{A}_y \frac{\partial \mathbf{\Psi}}{\partial y} + \mathbf{A}_z \frac{\partial \mathbf{\Psi}}{\partial z} + \sigma_t \mathbf{\Psi} = \mathbf{K}\mathbf{\Psi} + \mathbf{Q}, \quad \mathbf{\Psi} = [\psi_0, \psi_1, \ldots, \psi_M]^T. \qquad (3)$$

Pro metodu S_N jsou matice $\mathbf{A}_x$, $\mathbf{A}_y$, $\mathbf{A}_z$ diagonální (jejich prvky tvoří kartézské souřadnice jednotlivých ordinát) a rovnice jsou v soustavě provázané prostřednictvím matice $\mathbf{K}$. Metoda P_N vede na soustavu rovnic provázaných skrze diferenciální členy (matice $\mathbf{A}_*$ mají nenulové mimodiagonální prvky).

4. Aproximace pomocí PDR sudých řádů

Pro velké množství aplikací není podstatná detailní znalost směrové závislosti neutronového toku, nýbrž integrovaný *skalární neutronový tok*:

$$\phi(\mathbf{x}) = \int_{\mathcal{S}_2} \psi(\mathbf{x},\mathbf{\Omega})\,\mathrm{d}\mathbf{\Omega}.$$

Nejčastěji používanou rovnicí, jejímž řešením je přímo aproximace této veličiny, je difúzní rovnice neutronů, kterou lze jednoduchými manipulacemi odvodit z P_1 modelu. Analogickými manipulacemi lze z P_N rovnic v 1D odvodit soustavu vzájemně provázaných difúzních rovnic pro obecné $N \geq 1$. Jejím rozšířením do 3D získáme populární SP_N aproximaci:

$$\nabla \cdot \mathbf{D}\nabla\mathbf{\Phi} + \mathbf{S}\mathbf{\Phi} = \mathbf{Q}, \qquad (4)$$

kde **D** je diagonální matice řádu $(N+1)/2$ a S je plná matice stejného řádu. Řešením této slabě provázané soustavy rovnic difúzního typu je vektor $\mathbf{\Phi}$ s $(N+1)/2$ složkami (které ovšem nemají přímý fyzikální význam), jejichž lineární kombinací získáme aproximaci skutečného skalárního toku ϕ.

I když SP_N rovnice byly původně ([2]) odvozeny čistě formálním nahrazením jednorozměrných diferenciálních operátorů v P_N rovnicích za vícerozměrné ($\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}z} \longrightarrow \nabla\cdot$, ∇, či $\mathbf{n}\cdot\nabla$ u okrajových podmínek) a jejich validita nebyla tudíž nijak teoreticky podložená, asymptotickou analýzou bylo později zjištěno ([4]), že přesné řešení transportní rovnice vyhovuje SP_N rovnicím až na chybu řádu ε^{2N+1}, kde $\varepsilon \to 0$ s rostoucí „difuzivitou" daného prostředí (rozptyl převažuje nad absorpcí a je dostatečně „všesměrový“, slabé

[11] Počet směrů použitých v S_N aproximaci je určen stupněm aproximace *N*: $M = M(N)$ podle symetrie úlohy (pro konkrétní příklady sférické symetrie, 2D transportu, apod. viz např. [1, kap. 8]).

[12] *N* zde určuje nejvyšší stupeň sférických harmonických funkcí použitých v rozvoji a opět $M = M(N)$.

explicitní neutronové zdroje, geometrické rozměry oblasti řádově větší než střední volná dráha neutronů, apod.). V difuzivním prostředí (ve výše uvedeném smyslu) je tedy skalární tok vypočtený pomocí SP_N aproximace vyššího stupně přesnější než skalární tok vypočtený pomocí difúzní (SP_1) aproximace. Je ovšem potřeba mít na paměti, že pro $\varepsilon \to 1$ (mimo asymptotický režim) může být řešení SP_N aproximací teoreticky zcela odlišné od přesného transportního řešení i pro $N \to \infty$.

5. Návrh nové aproximace skalárního toku neutronů

V článku [3] je uveden nový způsob odvození PDR sudých řádů pro skalární tok ze soustavy představující alternativu k P_N aproximaci. Místo standardních SHF jsou v rozvoji (2) použity speciální kartézské tenzory, složené z vhodných lineárních kombinací SHF. Tento postup vede na soustavu PDR 1. řádu, jejíž tvar je přímou analogií P_N soustavy v 1D a jež je invariantní vůči změně souřadnicových os. Vlastnosti použitých tenzorů pak umožňují spolu s patřičnými algebraickými úpravami tuto soustavu redukovat na jedinou PDR vyššího (sudého) řádu pro skalární tok. Pro jednoduchost uveďme příklad této rovnice, kdy uvažujeme $N = 3$ a izotropní rozptyl a zdroje:

$$\frac{3}{35\sigma_t^3}\nabla^4\phi + \frac{11}{21\sigma_t^2}\nabla^2(q_0 - \sigma_a\phi) - \frac{1}{3\sigma_t}\nabla^2\phi = q_0 - \sigma_a\phi,$$

(σ_a je makroskopický účinný průřez pro absorpci). Tuto rovnici lze snadno převést na tvar (4), avšak na rozdíl od SP_3 aproximace není její platnost omezena podmínkami difuzivního prostředí (tj. podmínkami na geometrii a materiálová data) – jejím řešením je skalární tok odpovídající skalárnímu toku získanému z řešení P_3 soustavy. V současné době probíhá zkoumání této aproximace, především formulace korektních okrajových podmínek a podmínek na rozhraních heterogenních podoblastí.

6. Efektivní numerické řešení eliptických soustav PDR

Pro data splňující klasické předpoklady pro existenci jednoznačného řešení rovnice transportu neutronů lze dokázat, že soustava (4) je eliptická pro libovolný stupeň SP_N aproximace. V porovnání s hyperbolickými soustavami typu (3) mají eliptické soustavy lepší vlastnosti pro numerické zpracování. Kromě vyšší stability vede prostorová diskretizace těchto soustav na lineární algebraické problémy $\mathbf{A}\mathbf{x} = \mathbf{b}$ se symetrickou pozitivně definitní (SPD) maticí $\mathbf{A}$, pro něž existují efektivní řešiče založené na pevných teoretických základech, jako např. metoda sdružených gradientů s předpodmíněním.

V současnosti je autor zapojen do vývoje iteračního řešiče s víceúrovňovým předpodmíněním pomocí algebraické metody více sítí (AMG) s agresivním zhrubováním a masivním polynomiálním hlazením ([5]). Tato metoda se pro SPD problémy vyznačuje optimální výpočetní náročností, výbornou škálovatelností s rostoucí velikostí matice $\mathbf{A}$ a umožňuje masivní paralelizaci na tradičních víceprocesorových systémech i moderních grafických kartách.

Algebraická metoda více sítí vychází z faktu, že při řešení soustavy lineárních algebraických rovnic s maticí $\mathbf{A} \in \mathbb{R}^{n\times n}$ některou z klasických iteračních metod dochází k rychlé eliminaci pouze některých složek Fourierova rozvoje iterační chyby. Metoda dvou sítí proto kombinuje tuto iterační metodu s korekcí na hrubé úrovni, jejímž cílem je eliminace zbývajících složek chyby. Výpočet korekce spočívá v řešení soustavy se speciálně konstruovanou maticí $\mathbf{C} \in \mathbb{R}^{m\times m}$, kde $m < n$. Metoda více sítí pak popsanou proceduru aplikuje rekurzivně na problém na hrubé úrovni.

Tento postup již vede k významnému urychlení použité iterační metody, ještě většího urychlení je však možné dosáhnout použitím popsané AMG ne jako samotného řešiče dané soustavy, nýbrž jako předpodmiňovače pro Krylovovskou iterační metodu (např. již zmíněnou metodu sdružených gradientů).

7. Kombinace asymptotických a transportních modelů

Nejjednodušší, avšak také jeden z nejčastěji používaných způsobů řešení soustavy (3) s implicitními neutronovými zdroji je vyjádřen iteračním schématem

$$\mathbf{L}\Psi_{i+1} = \mathbf{K}\Psi_i + \mathbf{Q}, \qquad (5)$$

kde $\mathbf{L}$ reprezentuje levou stranu soustavy[13]. Obdobnými úvahami jako při odvozování AMG lze ukázat, že tato iterační metoda efektivně eliminuje jen některé složky celkové chyby. Zbývající složky, které zpomalují konvergenci schématu, odpovídají asymptotickému difúznímu rozložení a jsou každou iterací redukovány faktorem $1 - \mathcal{O}(\varepsilon^2)$. Tedy v difuzivním prostředí je redukce chyby v každé iteraci velmi malá a metoda založená na předpisu (5) konverguje pomalu. Analogie s AMG však ukazuje, že je možné tuto metodu významně urychlit prováděním korekce na hrubé úrovni. Vzhledem k tomu, že problematické složky chyby lze na základě asymptotické analýzy popsané v odstavci 4 velmi přesně určit řešením SP_N rovnic, je definice úlohy na hrubé úrovni (analogie matice $\mathbf{C}$ z odstavce 6) zřejmá. Díky tvaru SP_N soustavy je navíc i pro výpočet korekce na hrubé úrovni opět možné s výhodou použít AMG.

8. Závěr

V příspěvku byly stručně představeny některé alternativy ke standardním výpočetním metodám pro řešení úloh transportu neutronů, které jsou v současné době vyvíjené na Katedře matematiky Západočeské univerzity v Plzni.

První z nich je založena na formulaci parciální diferenciální rovnice sudého řádu pro skalární neutronový tok a má potenciál poskytnout aproximaci této veličiny se srovnatelnou přesností jako plně transportní P_N model, ovšem bez nutnosti řešení komplikované a rozsáhlé soustavy P_N rovnic nutné pro určení vyšších momentů sférických harmonických funkcí.

V druhé je vhodným způsobem zkombinováno iterační řešení rovnice transportu neutronů pomocí metody diskrétních ordinát s řešením asymptotického modelu pro optimální korekci iterační chyby. Výsledkem je metoda, která neztrácí efektivitu v difuzivních oblastech (na rozdíl od samostatné metody diskrétních ordinát), ani přesnost v oblastech s výraznějšími transportními efekty (na rozdíl od samostatné asymptotické metody typu SP_N). Ačkoliv je tato kombinace obou metod známá již poměrně dlouhou dobu (pod názvem *diffusion synthetic acceleration*, zkráceně *DSA*), její vztah k moderním verzím algebraické metody více sítí není dostatečně prozkoumán a mohl by vést k dalšímu zefektivnění iteračních transportních výpočtů.

Samotná algebraická metoda více sítí je pak optimální metodou pro řešení soustav vzniklých diskretizací jak výše zmíněné aproximace skalárního toku pomocí PDR sudého řádu, tak i diskretizací SP_N rovnic, a tvoří tak neméně důležitou ingredienci efektivního a současně robustního řešiče rovnice transportu neutronů.

9. Poděkování

Tato práce vznikla za finanční podpory programu ALFA Technologické Agentury ČR (projekt TA01020352).
This work relates to Department of the Navy Grant N62909-11-1-7032 issued by Office of Naval Research Global.

[13] Poznamenejme, že zejména pro S_N metodu je výpočet $\mathbf{L}^{-1}$ velmi efektivní a dobře paralelizovatelný.

10. Literatura

[1] Cacuci, D. G.: *Handbook of Nuclear Engineering, Volume I: Nuclear Engineering Fundamentals*. Springer Science + Business Media LLC, 2010.

[2] Gelbard, E. M.: *Application of spherical harmonics methods to reactor problems*. Tech. Rep. WAPD-BT-20, Bettis Atomic Power Laboratory, 1960.

[3] Hanuš, M.: *A new perspective on some approximations used in neutron transport modeling*. To appear in Proceedings of PANM (Programs and Algorithms of Numerical Mathematics) 16, 2012.

[4] Larsen, E. W., Morel, J. E., McGhee, J.M.: *Asymptotic derivation of the multigroup P_1 and simplified P_N equations with anisotropic scattering*. Intl. Conference on Mathematics and Computations – Reactor Physics and Environmental Analyses. Portland, Oregon, 1995.

[5] Vaněk, P., Brezina, M., Mandel, J.: *Convergence of Algebraic Multigrid Based on Smoothed Aggregation*. Numer. Math. (2001) 88: 559-579.

ELEKTROCHEMICKÝ MONITORING KOROZE OCELI 1.4551 VE VODNÉM PROSTŘEDÍ

[a]Libuše Trnková, [a]Lucie Šimoníková, [a]Viktor Kanický,
[b]Ctibor Kaláb, [b]Lukáš Nesvadba, [b]Oldřich Matal, [b]Josef Žaloudek
a) Přírodovědecká fakulta, Masarykova univerzita v Brně
b) Energovýzkum, spol. s r.o.

Abstrakt

Na pracovištích Přírodovědecké fakulty Masarykovy univerzity a firmy Energovýzkum byly v letošním roce zahájeny první ověřovací experimenty koroze konstrukčních materiálů.

Elektrochemický monitoring koroze materiálu (oceli) využívá závislostí mezi korozním potenciálem a proudem procházejícím přes kovový povrch. Korozní potenciál je měřítkem oxidačních změn na povrchu oceli, který je ve styku se sledovaným prostředím. Odpovídá napětí vůči srovnávací neboli referenční elektrodě. Potenciál kovu se průchodem proudu mění a z této změny lze určit korozní rychlost a pasivovatelnost kovu.

V laboratorních podmínkách byly snímány tzv. potenciodynamické křivky, při kterých je zaznamenávána proudová odezva na plynulou změnu potenciálu (lineární polarizace). K tomuto účelu slouží potenciostatické tříelektrodové zapojení skládající se z elektrody pracovní (vzorek oceli), pomocné (platinový plíšek nebo drát) a elektrody referenční. Potenciostat zaručuje správnou a nastavitelnou hodnotu vkládaného potenciálu mezi pracovní a referenční elektrodu. Na základě sledování voltametrických (proudonapěťových křivek) a použití Tafelových rovnic bylo možno testovat korozi daného materiálu, v našem případě oceli.

1. Experimentální zařízení

Měření bylo provedeno prostřednictvím potenciostatu o typovém označení AUTOLAB 100. Dále byl použit předzesilovač PGSTAT100 DIFFERENTIAL ELECTROMETER AMPLIFIER a analogově-digitální převodník AUTOLAB - USB Interface.

Pro měření byly připraveny dva plastové kelímky (PP) do kterých byly umístěny potřebné elektrody a prostředí pro testy.

Pro vyhodnocování byl použit software GPES. General Purpose Electrochemical Systém version 4.9.

2. Použitá ocel

Pro výrobu pracovní elektrody, na které byl sledován korozní úbytek, byl použit ocelový drát z materiálu 1.4551. Jedná se o nerezovou ocel s chemickým složením viz Tab. 1.

C	Si	Mn	Cr	Ni	Nb
0,06	0,80	1,80	20,0	10,0	0,70

Tab. 1 - Typické chemické složení oceli 1.4551

3. Modelová voda

Pro pokus byla namíchána modelová voda, která se svým složením blíží vodě granitické. Parametry granitické vody a složení jedné z použitých modelových vod je uvedeno v Tab. 2 (koncentrace kationtů byly stanoveny metodou ICP-OES na přístroji Thermo iCAP 6500, koncentrace aniontů byly dopočítány).

Je zde rozdíl v obsahu chloridových aniontů v naší modelové vodě oproti granitické, a to z důvodu úpravy pH na požadovanou hodnotu. Pro úpravu pH byla použita 0,1 M HCl.

Soli použité pro přípravu modelové vody byly tyto: $KHCO_3$, $NaHCO_3$, $CaCl_2$, $MgSO_4$. Postupně byly připraveny vody s pořadovým číslem 1 až 4.

Pro tento konkrétní test byly použity vody 3 a 4. Složení vod se nepatrně lišilo v závislosti na navážce jednotlivých solí (vzhledem k tomu, že se připravovalo vždy pouze malé množství - 2 litry, tak se nepodařilo vždy navážit soli na mg přesně. Pokud by se voda připravovala ve velkém množství, tak tento problém odpadá).

Vzhledem k tomu, že test byl prováděn v uzavřeném systému a voda neprotékala, docházelo k postupnému srážení vápenatých iontů na nerozpustné uhličitany (jev zvaný „přechodná tvrdost vody“) a modelová voda mění svoje vlastnosti.

Během experimentu bylo ověřováno složení modelové vody č. 3 a č. 4. Bylo zjištěno, že voda č. 3, v níž se prováděl elektrochemický experiment, obsahovala mnohem nižší obsah Ca^{2+} iontů než v modelové vodě č. 3, která přímo pro experiment použita nebyla.

	granitická voda	***připravená voda č.3***	
	obsah [mg/l]	**obsah [mg/l]**	**nejistota [mg/l]**
Ca^{2+}	20	21,98	0,24
K^{+}	11	12,88	0,22
Mg^{2+}	5	4,447	0,024
Na^{+}	145	152,5	2,8
HCO_3^{-}	400	425	25
SO_4^{2-}	20	17,6	1,1
Cl^{-}	12	67,3	4,0

Tab. 2 - Srovnání složení granitické a modelové vody

4. Teorie výpočtu korozních úbytků

Korozní rychlost závisí na kinetice obou procesů, jak katodického, tak anodického. Podle Faradayova zákona lze vyjádřit vztah mezi korozní rychlostí v_{corr} a korozním proudem I_{corr} nebo lépe korozní proudovou hustotou i_{corr}

$$v_{corr} = \frac{M}{n \cdot F \cdot \rho} \cdot i_{corr} \qquad (1)$$

kde M je atomová hmotnost kovu, ρ je jeho hustota, n je počet elektronů vyměňovaných při korozi, F je Faradayova konstanta (96 485 C/mol). Poměr M/n je označován jako váhový ekvivalent. Ke stanovení korozního proudu je využívána Tafelova analýza (Tafel slope analysis), která vyjadřuje vztah mezi proudovou hustotou a přepětím. Základem pro Tafela je Butler-Volmerova rovnice:

$$i = i_{corr} \cdot \left(e^{2{,}303\frac{\eta}{b_a}} - e^{2{,}303\frac{\eta}{b_c}} \right) \qquad (2)$$

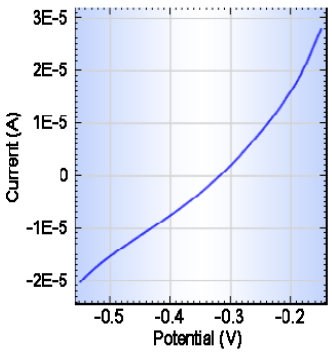
kde η je přepětí a odpovídá rozdílu aplikovaného potenciálu E a korozního potenciálu E_{corr}:

$$\eta = E - E_{corr} \qquad (3)$$

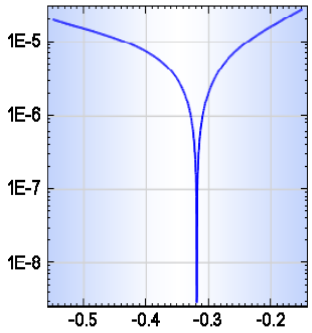
i je měřená proudová hustota, b_a *a* b_c jsou Tafelovy konstanty.
Pro velká anodická přepětí $(\eta / b_a >> 1)$ a analogicky pro velká katodická přepětí $(\eta / b_c << -1)$ se B-V rovnice (2) podstatně zjednoduší a získá podobu semilogaritmických Tafelovských rovnic:

$$\eta = \log(i_{corr}) + b_a \cdot \log i \qquad (4a)$$

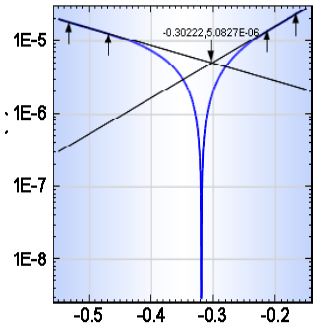
$$\eta = \log(i_{corr}) - b_c \cdot \log|i| \qquad (4b)$$



Obr. 1 - Polarizační křivka



Obr. 2 - Tafelova transformace



Obr. 3 - Vyhodnocení b_a, b_c a R_p

Z Tafelovských závislostí (Tafel plot) je možné určit polarizační odpor a korozní proudovou hustotu, pokud známe hodnotu povrchu pracovní elektrody.

5. Experiment a jeho výsledky

Experiment, jak bylo již uvedeno výše, byl proveden na Autolabu 100 fimy Ecochemie (Metrohm) s využitím potenciostatického režimu pro tříelektrodový set. Byly snímány voltametrické křivky rychlostí polarizace 10 mV/s, potenciálový krok byl 2 mV a potenciálové okno od +0,8 V do -0,8V. Teplota se pohybovala v rozmezí 22-23° C.

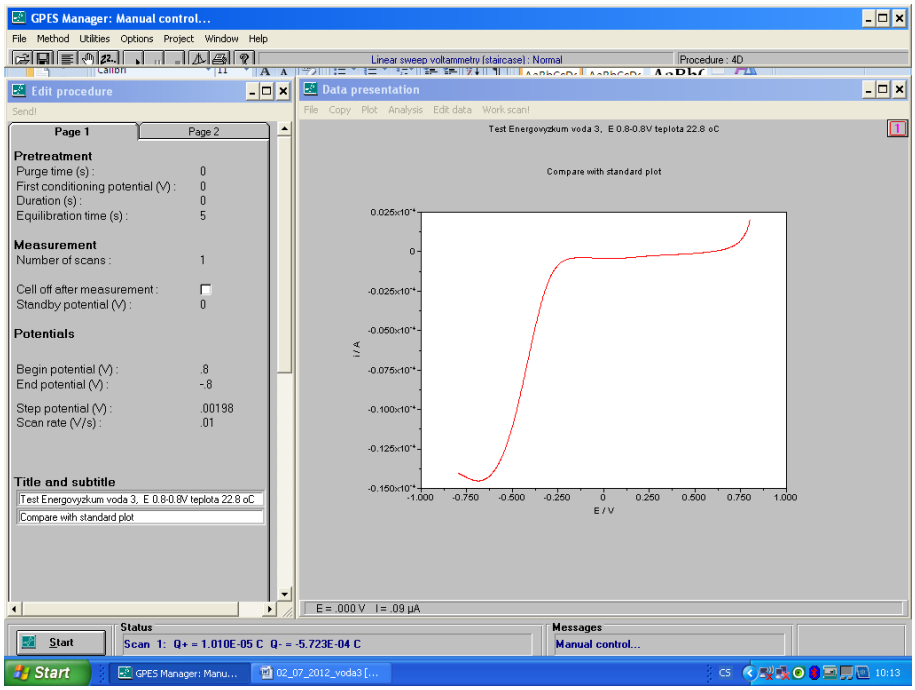
Použitý software GPES (General Purpose Electrochemical System) sloužil nejen k záznamu polarizačních křivek, ale i k analýze dat (Tafel plot). Ukázka experimentu a analýzy dat je na následujících obrázcích (Obr. 4, Obr. 5).

Pro dvě sady měření (voda č. 3 a voda č. 4, průměrné hodnoty) byly vyhodnoceny Tafelovské parametry a pak vypočteny korozní rychlosti (Tab.3) a to po expozici voda č. 3 – 240 hod. a voda č. 4 – 2400 hod.

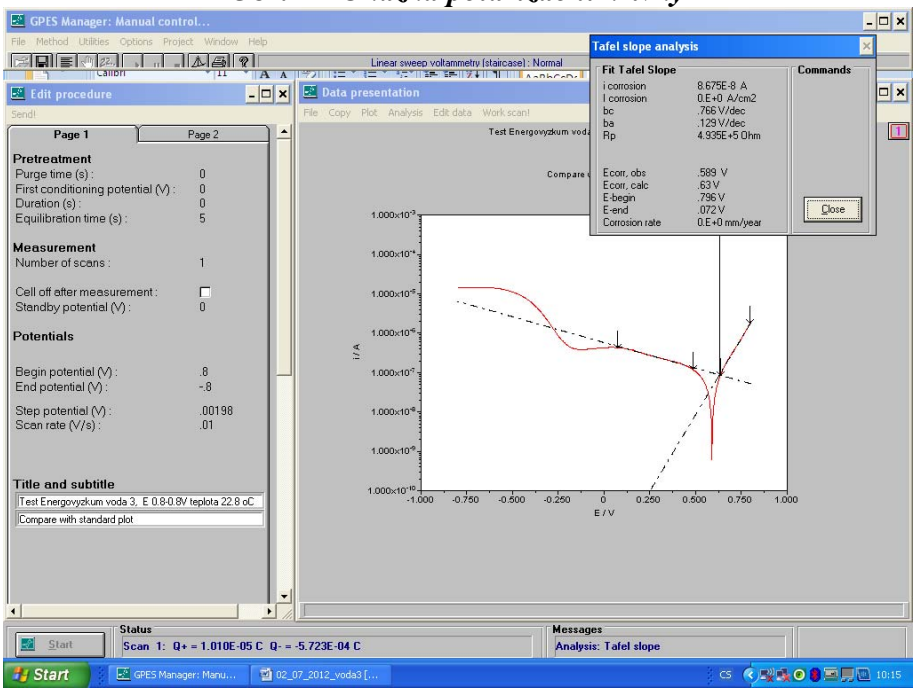
Na základě rovnic (2) a (1) byly vyčísleny hodnoty korozních rychlostí v_{corr} (mm/rok).

	VODA 3	*VODA 4*
b_a (mV/dec)	146	128
b_c (mV/dec)	687	874
E_{corr} (mV)	- 556	-596
E_{corr} (mV)	- 585	-635
i_{corr} (μA/cm^2)	3,46	4,97
R_p (kΩ)	738	571
doba expozice (hod)	240	2400
v_{corr} (mm/rok)	0,103	0,088

Tab. 3 - Vyhodnocené Tafelovy parametry a vypočítaná korozní rychlost



Obr. 4 - Ukázka polarizační křivky



Obr. 5 - Ukázka Tafelovy transformace s vyhodnocením

6. Závěr

Byly provedeny prvotní ověřovací experimenty (cca 100 měření) koroze daného konstrukčního materiálu v namíchané modelové vodě.

Na základě elektrochemického experimentu bylo možno určit korozní rychlost použitého materiálu v namíchané modelové vodě.

V budoucnu se budeme muset více zaměřit na výrobu modelové vody a její chování při samotném experimentu (problémy s vysrážením uhličitanů, atp.) a dořešit možnosti provádění experimentů při vyšších teplotách.

Literatura

[1] Výzkumná zpráva, QR-EM-008-12, Energovýzkum, 2012
[2] Výzkumná zpráva, QR-EM-010-12, Energovýzkum, 2012
[3] Measurement of Corrosion Rates, Autolab Application Note, Appl017-1+2, www.ecochemie.nl

POZITRÓNOVÁ ŠTÚDIA FE-CR OCELÍ

Veronika Sabelová[1], Martin Petriska[1], Michal Skarba[2], Jana Veterníková[1], Vladimír Slugeň[1], Jarmila Degmová[1], Stanislav Sojak[1]
[1] Fakulta elektrotechniky a informatiky STU v Bratislave
[2]Materiálovotechnologická fakulta STU v Bratislave, Trnava

Abstrakt

Na výskum Fe-Cr ocelí bola použitá spektroskopia Dopplerovského rozšírenia pozitrónovej anihilácie. Táto metóda v štúdii popisuje chemické prostredie implantovaných Fe-Cr ocelí s rôznym obsahom chrómu. Výsledkom je charakterizácia vplyvu implantovaných prvkov na ocele.

1. Úvod

Štúdium radiačne poškodených Fe-Cr zliatin bolo realizované technikou pozitrónovej anihilácie dopplerovského rozšírenia spektra. Táto technika dokáže detekovať s vysokou citlivosťou defekty (vakancie) v mikroštruktúre materiálu. Na porovnanie vlastností a radiačnej odolnosti sa vybrali materiály s rôznym obsahom chrómu.

Radiačné poškodenie bolo experimentálne simulované implantáciou iónmi hélia v lineárnom urýchľovači s rôznymi implantačnými úrovňami. Použitie implantácie spôsobilo vznik vakancií, ich akumuláciu, a tým aj zmenu mikroštruktúry zliatin. Tieto zmeny boli detekované použitím spektroskopie dopplerovského rozšírenia spektra.

Mikroštrukturálne zmeny po implantácii boli detekované použitím zariadenia na univerzite Aalto v Helsinkách. Táto technika využíva zväzok pomalých pozitrónov, pomocou ktorého boli získané hĺbkové profily materiálov do 1,5 μm.

Použitím zariadenia koincidenčnej techniky na Slovenskej Technickej Univerzite boli získané hodnoty hustoty momentov pri anihilácii elektrón-pozitrónových párov vo vakanciách. Z výsledkov sa preukázala kvantitanívna citlivosť geometrie na anihiláciu pozitrónov.

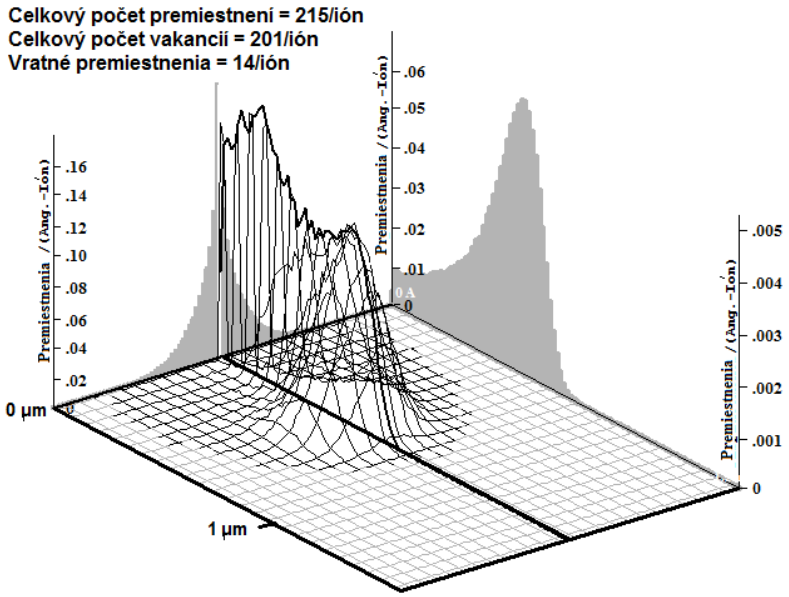
2. Materiály

Na detailné skúmanie implantovaných prvkov boli vybrané železo-chrómové zliatiny (3 a 12 % hm. Cr). Materiály boli získané tavením z priemyselne čistého Fe a Cr. Zo získaných odliatych ingotov boli za studena tvárnené v ochrannej atmosfére na hrúbku 9 mm. Po týchto procedúrach boli zliatiny umiestnené na 1 hod. do vysokého vákua pri 1050°C za účelom stabilizácie. Následne bolo počas 4 hod. vykonané popúštanie pri 730°C a pri chladení vzduchom.

Mikroštruktúra takto pripraveného Fe–Cr materiálu sa so zvyšujúcim obsahom chrómu mení z čistého feritu na ferit a bainit. Feritové zrná sú orientované náhodne a ich hranice zodpovedajú rýchlemu chladeniu [1].

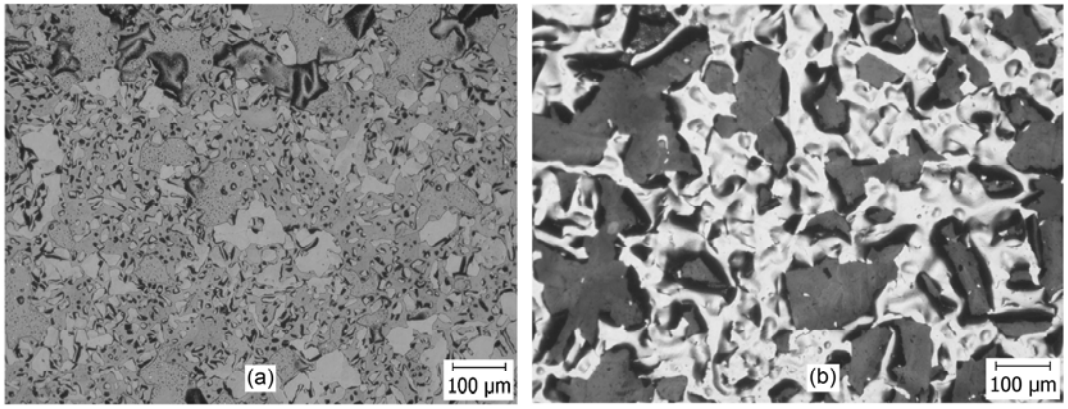
3. Implantácia

Hlavným významom tejto štúdie bolo popísanie vplyvu implantovaného prvku (hélia) v povrchových vrstvách Fe-Cr zliatin do hĺbky 1 μm. Implantácie sa realizovali pomocou lineárneho urýchľovača iónov (pracuje s energiami až 900 keV). Implantačné úrovne boli v rozsahu od 1.3×10^{18}cm^{-2} do 3.1×10^{18}cm^{-2}. Použitá implantačná energia bola 250 keV.



Obr. 1 - Implantačný profil materiálu Fe-3%(hm.)Cr (implantovaný héliom, 250keV) vypočítaný programom SRIM. Z celkového množstva premiestnení je 201 vakancií na ión a 14 premiestnení na ión späť na "pôvodné" miesto.

Obr. 1 zobrazuje vypočítaný implantačný profil Fe-Cr zliatiny. Z obrázku vidno, že implantácia pri daných parametroch a vlastnostiach hélia nepresiahne hĺbku 1 µm. V tejto povrchovej vrstve He spôsobuje značné poškodenie vyrážaním pôvodných atómov mriežky; dochádza k tvoreniu kaskád.



Obr. 2 - Voľným okom pozorovateľný blistering na povrchových vrstvách materiálov Fe-3%(hm.)Cr (a) a Fe-12%(hm.)Cr (b); implantovaných héliom, 250keV, $1.3x10^{18}cm^{-2}$ (0.2 C/cm^2)

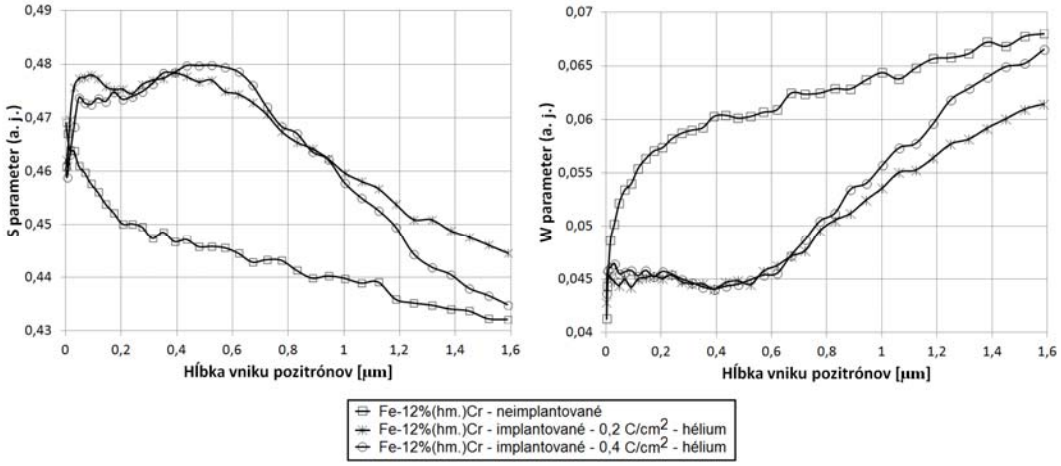
Vysoká koncentrácia hélia už pri implantačných úrovniach rádovo $10^{18}cm^{-2}$ spôsobuje tvorenie bublín, napúchanie a následne odlupovanie povrchových vrstiev materiálu. Výsledkom daného javu je značné poškodenie, ktoré je zobrazené na Obr. 2. Popísaný efekt sa nazýva blistering [2].

4. Experimentálne metódy + výsledky

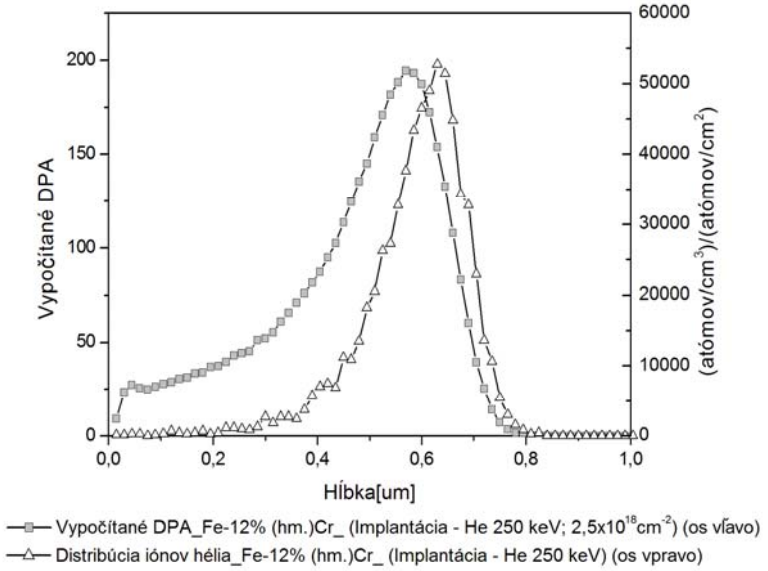
4.1. Metóda pomalého pozitrónového lúča

Prvá experimentálna metóda funguje na princípe pomalého pozitrónového lúča (moderačná účinnosť je 10^{-4}, používa jeden HPG (High-Purity Germanium) polovodičový detektor). Zdroj pozitrónov je ^{22}Na s aktivitou 740MBq. Hĺbka vnikajúcich pozitrónov do materiálu sa mení s nastaviteľnou energiou (0.5 keV - 38 keV) monoenergetického lúča s urýchľovačom. Vypočítané parametre S a W sú merané ako funkcia energie pozitrónového lúča. S parameter kvantifikuje anihiláciu pozitrónov s valenčnými/vodivostnými

(nízko-momentovými) elektrónmi a tým popisuje anihiláciu vo vakančných defektoch mriežky. Naopak W parameter charakterizuje anihiláciu s jadrovými (vysoko-momentovými) elektrónmi a odráža vlastnosti bezdefektnej mriežky [3] (Obr. 3).



Obr. 3 - Hĺbkový profil S a W parametrov materiálu Fe-12%(hm.)Cr; neimplantovaného, implantovaného héliom - $1.3\times10^{18}cm^{-2}$ (0.2 C/cm^2) a $2.5\times10^{18}cm^{-2}$ (0.4 C/cm^2)

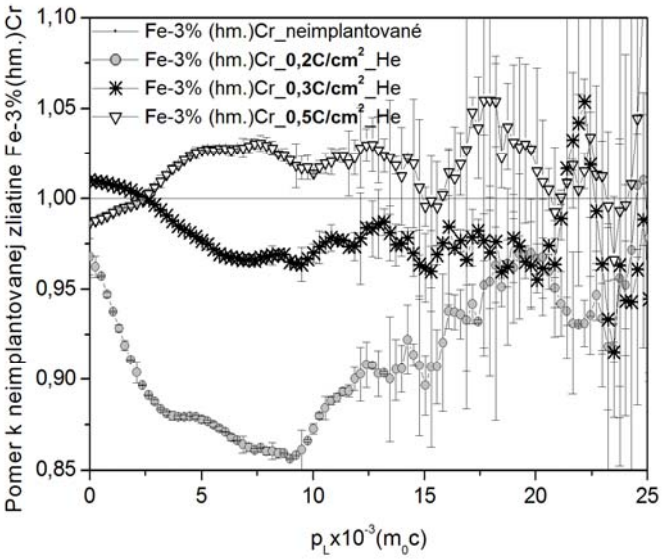


Obr. 4 - Vypočítané DPA (Displacement Per Atom) a implantačný hĺbkový profil hélia programom SRIM.

Na Obr. 4 je zobrazená krivka vypočítaného parametra DPA, ktorá ma zodpovedať priebehu S parametra (Obr. 3). Ten je ale deformovaný a posunutý do nižšej hĺbky. Za tento posun zodpovedá prítomnosť implantovaného hélia, ktoré zaplňuje vakančné defekty a tým zabraňuje distribúciu vodivostných elektrónov do týchto prázdnych miest v mriežke a následne anihiláciu v nich. Vypočítaný hĺbkový profil distribúcie iónov hélia je zobrazený na Obr. 4.

4.2. Koincidenčná metóda Dopplerovského rozšírenia spektra

Táto experimentálna metóda využíva dva (CDBS - Coincidence Doppler Broadening Spectroscopy) HPG detektory na detekovanie vyžiarených energetických kvánt anihilácie nemoderovaných pozitrónov. Daným zapojením je možné dosiahnuť značnú redukciu nežiadúceho pozadia. Zdrojom pozitrónov je taktiež ^{22}Na (635MBq) ako v prvej experimentálnej metóde. Metodikou získaná p_L- pozdĺžna zložka hybnosti [4] v smere emisie energetických kvánt vytvára jedno-dimenzionálnu distribúciu hybnosti (Obr. 5).



Obr. 5 - Jedno-dimenzionálna distribúcia hybnosti získaná z CDBS meraní materiálu Fe-3%(hm.)Cr. Zliatina bola implantovaná iónmi hélia s troma implantačnými úrovňami ($1.3x10^{18}cm^{-2}$ (0.2 C/cm^2), $1.9x10^{18}cm^{-2}$ (0.3 C/cm^2) a $3.1x10^{18}cm^{-2}$ (0.5 C/cm^2). Na osi y je škála pomeru meraného spektra implantovaného materiálu k spektru neimplantovaného.

Jedno-dimenzionálna distribúcia hybnosti materiálu Fe-3%(hm.)Cr s rastúcimi implantačnými úrovňami je zobrazená na Obr. 5. Hodnoty pomerov v oblasti nízkej hybnosti ($0 – 2.5 \times 10^{-3}$ m_0c) sú deformované vplyvom blistering efektu. V oblasti $5 – 12 \times 10^{-3}$ m_0c vidieť určitú analógiu medzi rastúcou fluenciou implantácie a rastúcimi pomermi. V tejto oblasti sa pravdepodobne prejavuje vplyv prítomnosti hélia vo vytvorených vakanciách. Plocha pod krivkami vo vysoko-momentovej oblasti ($15 – 25 \times 10^{-3}$ m_0c) zodpovedá parametru W a tým aj zmenám mikroštruktúry skúmaného materiálu.

5. Záver

Vplyv implantácie hélia je dobre zistiteľný oboma uvedenými experimentálnymi metódami. Hĺbkové profily vytvoreného poškodenia zodpovedajú vypočítaným hodnotám. Malé posunutie maxima nameraného S parametra je zapríčinené pravdepodobne prítomnosťou hélia v implantovaných povrchových vrstvách, napriek výskytu blistering efektu. V prípade jedno-dimenzionálnej distribúcie hybnosti získanej z CDBS meraní je zmena spektier v závislosti od zmeny úrovne implantácie analogická. Každá oblasť hybnosti zodpovedá určitej charakterizácii materiálu a tým sa stáva CDBS citlivou analytickou metódou k popísaniu štrukturálnych zmien skúmaných Fe-Cr zliatin.

6. Poďakovanie

Autori by sa chceli poďakovať projektu VEGA č. 1/0366/12 a prof. Filipovi Tuomistovi z univerzity Aalto v Helsinkách za podporu štúdie.

7. Literatúra

[1] MATIJASEVIC, M., ALMAZOUZI, A., Journal of Nuclear Materials 377 (2008) 147–154.
[2] GILLIAM, S. B., et al., Journal of Nuclear Materials 347 (2005) 289–297.
[3] EICHLER S, et al., Phys. Rev. B 56 (1997) 1393-1403.
[4] VAN PETEGEM S., VAN WAEYENBERGE B., SEGERS D., DAUWE C., Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 513 (2003) 622–630.

VÝPOČET NAPJATOSTI PŘÍRUBOVÉHO SPOJE A TĚSNĚNÍ VÍKA PRIMÁRNÍHO KOLEKTORU PARNÍHO GENERÁTORU JADERNÉ ELEKTRÁRNY VVER 440

Ing. Hugo Šen
Vysoké učení technické v Brně
Energetický ústav, Fakulta strojního inženýrství

Anotace

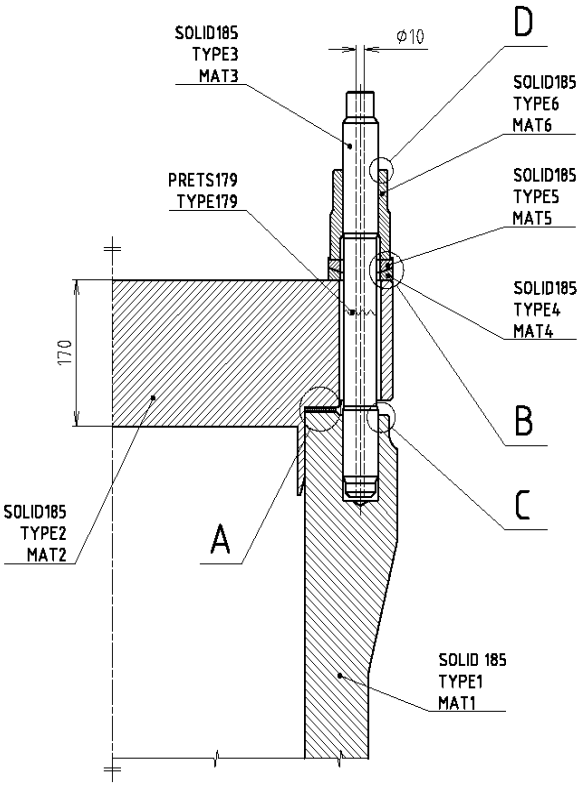
Příspěvek pojednává o problematice záměny těsnění na primárních kolektorech parního generátoru elektrárny typu VVER 440, především však vyhodnocení těsnicího tlaku ve spáře přírubového spoje pro novou konfiguraci spoje s těsněním z expandovaného grafitu.

Úvod

Na jaderné elektrárně s reaktorem typu VVER pracují horizontální parní generátory původní sovětské koncepce. Potrubí primárních smyček je připojeno k hrdlům dvou kolektorů parogenerátoru, do kterých jsou zakotveny a zaústěny teplosměnné trubky trubkového svazku. V horní části jsou oba kolektory uzavřeny primárními víky a přitaženy 20 svorníky M46 x 5. Provedení spoje je vidět na Obr. 15. V původním projektovém provedení je dělicí rovina přírubového spoje kolektorů utěsněna dvěma niklovými kroužky, vloženými do lichoběžníkových drážek v hrdle kolektoru. V souladu s požadavky na zvyšování jaderné bezpečnosti a prodloužení životnosti komponent primárního okruhu se ukázalo původní řešení těsnění nevyhovující. K zajištění požadované těsnosti spoje musí být niklové kroužky zatíženy silami, které vyvolají jejich plastické deformace. Úroveň kontaktních tlaků i napjatost spoje je vysoká; těsnost spoje při některých nestacionárních režimech provozu, spojených se změnami teplotních polí přírubového spoje se projevila oslabená. Proto se ukázalo jako žádoucí nahradit niklové kroužky jiným typem těsnění; jedná se o těsnění s expandovaným grafitem firmy MICo Třebíč. Na ocelovém kroužku s povrchem tvaru hřebene jsou po obou stranách nalepeny příložky z expandovaného grafitu. Závislost míry stlačení a působícího tlaku v těsnění je silně nelineární s hysterezním chováním; křivky průběhu tlaku při zatěžování a odlehčování v závislosti na stlačení jsou patrné z Obr. 16.

Přírubový spoj a účel výpočtu

Přírubový spoj kolektoru je za provozu zatěžován silami od svorníků, tlakem pracovních látek primárního a sekundárního okruhu a teplotním polem. Účelem výpočtu bylo zjistit především kontaktní tlak na těsnění v dělicí rovině při vybraných zátěžných s tavech, které se během provozu parního generátoru vyskytují. Dle hodnoty tlaku v těsnění lze posoudit, bude-li těsnost spoje dostatečně velká pro dané utahovací síly svorníků. Ve výpočtu bylo zohledněno pouze mechanické zatěžování při vybraných provozních stavech, které jsou patrné z Tab. 2.



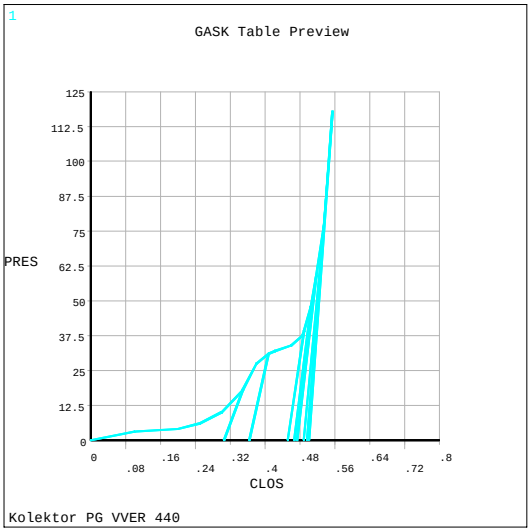
Obr. 15 - Přírubový spoj víka kolektoru PG VVER 440

LOAD STEP	TIME	Zátěžný stav	Přetlak IO [MPa]	Stav PRETS179 (předpětí svorníků)
1	0,5	Ustavení kontaktních párů	0	UX = 0,005 mm
2	1	Předepnutí svorníků při montáži	0	FX = (194 307)/2 N
3	2	Těsnostní zkouška IO	13,72	LOCK
4	3	Odlehčení	0	LOCK
5	4	Provozní stav	12,26	LOCK
6	5	Odlehčení	0	LOCK
7	6	Pevnostní zkouška IO	16,34	LOCK

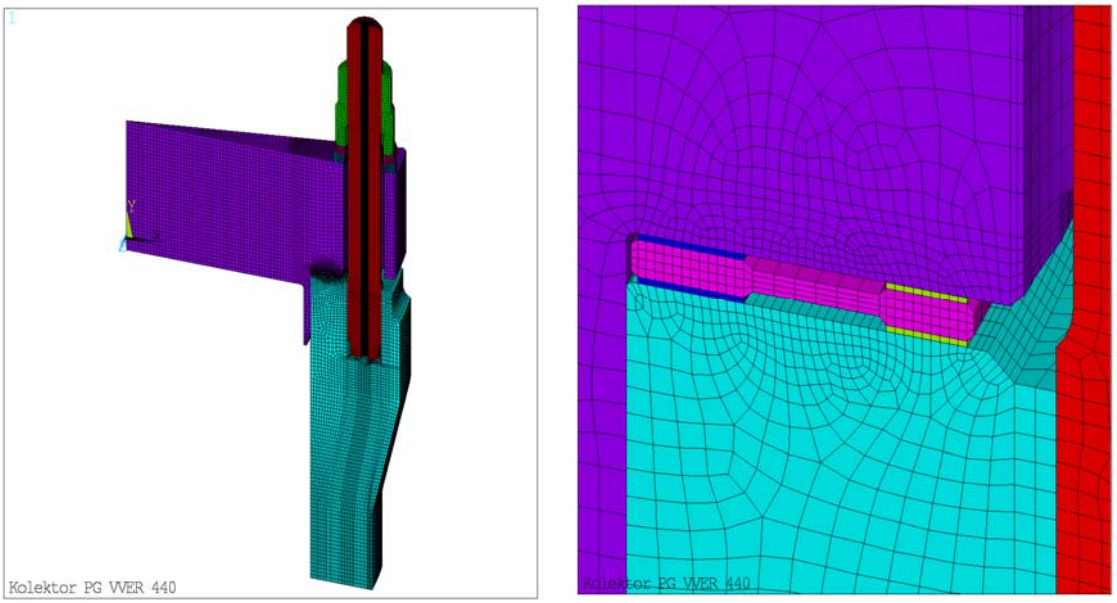
Tab. 2 - Zátěžné stavy

Model MKP a výpočet

Byl vytvořen 3D model části přírubového spoje se všemi podstatnými detaily v programu ANSYS 14.0. Modelována byla pouze cyklicky symetrická část s využitím 3D prvků SOLID185 s lineárními bázovými funkcemi. Samotné těsnění bylo modelováno pomocí speciálních prvků INTER195. Interakce ploch svorníků, podložek a matic byly zajištěny asymetrickými kontaktními páry TARGE170/CONTA174 (surface-to-surface). Předpětí svorníků pro žádané zatěžovací stavy bylo provedeno s využitím elementů PRETS179. Celkový pohled na model a detail sítě konečných prvků v místě těsnění je na Obr. 17.



Obr. 16 - Závislost tlaku v těsnicí spáře (PRES, MPa) na stlačení těsnění (CLOS, mm)

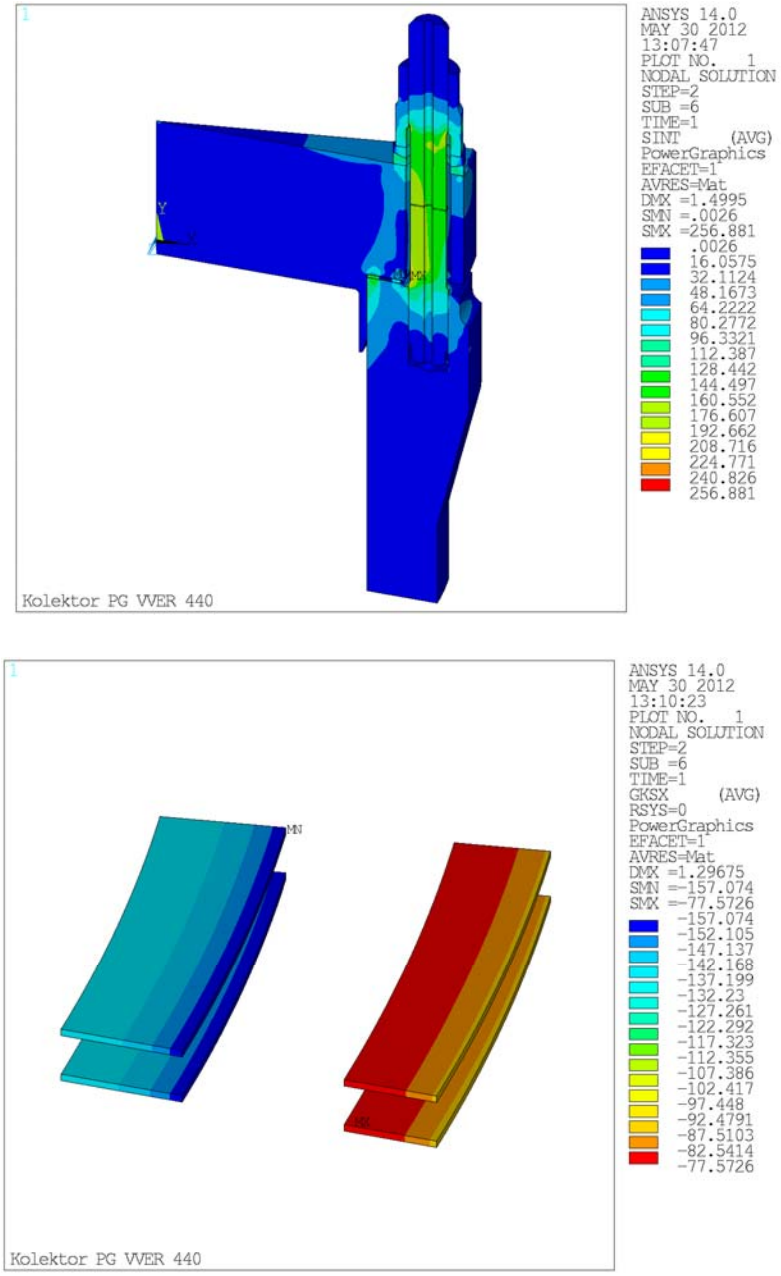


Obr. 17 - Model přírubového spoje a detail těsnění

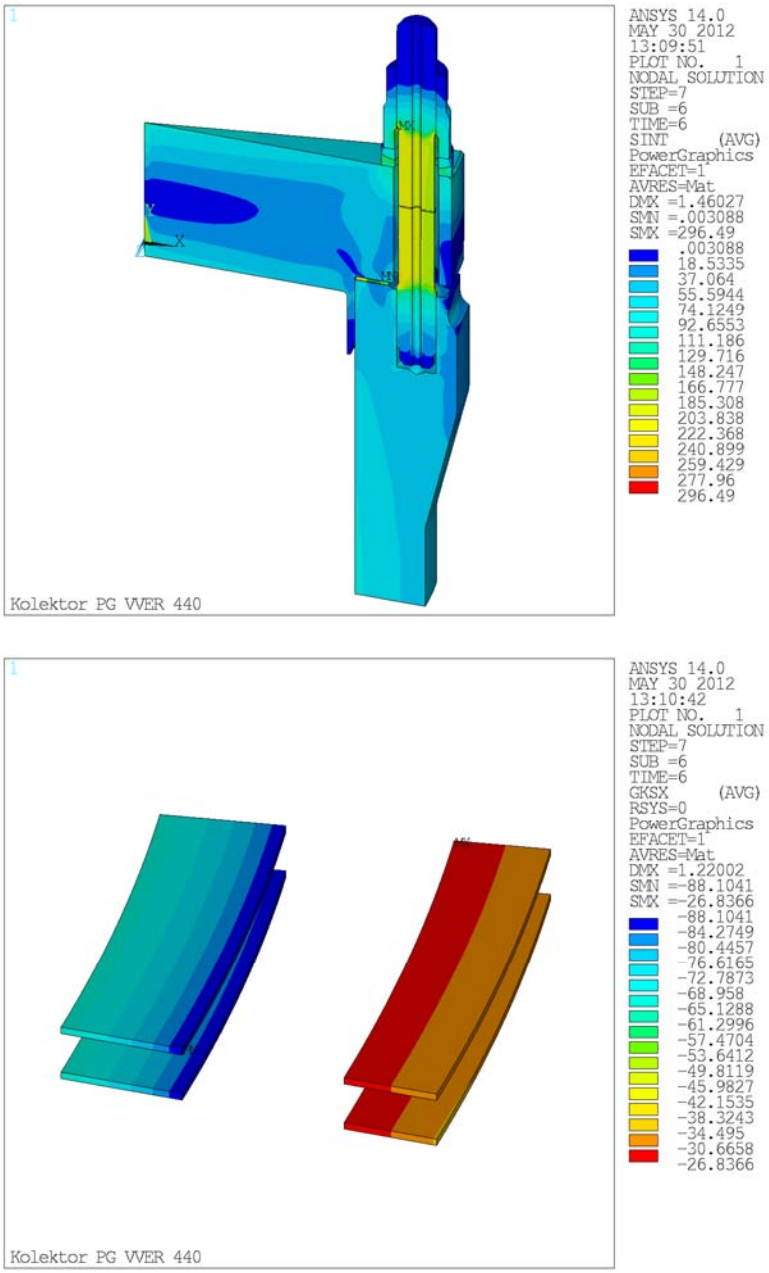
Pohled na model a detail sítě konečných prvků v místě těsnění je na Obr. 17.

Výsledky výpočtů

Na následujícím Obr. 18 a Obr. 19 jsou uvedeny výsledky simulací dvou krajních zátěžných stavů: a) montáže, jsou-li dotaženy svorníky víka a bez tlaku pracovních látek; b) zatížení od přetlaku vody 16,34 MPa v primárním okruhu při pevnostní zkoušce. Z výsledků výpočtu lze pozorovat, že tlak v těsnicí spáře na vnitřní straně těsnění při pevnostní zkoušce neklesá pod 80 MPa. Tento těsnicí tlak s dostatečnou rezervou zajistí těsnost spoje i s ohledem na tepelná zatížení spoje, což bylo konzultováno se specialistou firmy MICo, spol. s r. o. Třebíč, která uvedené těsnění navrhuje a vyrábí. Současně lze vidět, že rozložení tlaku těsnění v obvodovém směru je prakticky ideálně rovnoměrné, v radiálním směru pak v přijatelných intervalech. Síla v ose svorníku Fo = 194 307 N je tedy pro nové těsnění optimální. Původní síla byla přibližně 300 000 N.



Obr. 18 - Ekvivalentní napětí přírubového spoje podle hypotézy max. smyk. napětí v MPa (nahoře) a tlak v těsnicí spáře v MPa po montáži (dole)



Obr. 19 - Ekvivalentní napětí přírubového spoje podle hypotézy max. smyk. napětí v MPa (nahoře) a tlak v těsnicí spáře v MPa při pevnostní zkoušce (dole)

Závěr

Výpočtem bylo prokázáno, že nově navržená konfigurace utěsnění spoje primárního víka a hrdla kolektoru parního generátoru je vyhovující. Síla ve svornících potřebná pro vyvození tlaku v těsnicí spáře je optimálně navržená, nižší než původní a zajistí požadovanou úroveň těsnosti; lokální špičky napětí v drážkách pro původní těsnění byly odstraněny, a lze proto očekávat prodloužení životnosti tohoto důležitého konstrukčního uzlu.

Literatura

[1] Blažková, Eva. *Modifikace utěsnění víka primárního kolektoru PG VVER 440*. Diplomová práce. 2012, VUT v Brně, Fakulta strojního inženýrství.
[2] Firemní podklady firmy MICo, spol. s r. o. Třebíč
[3] Firemní podklady výrobce PG Vítkovice, a. s.

JADERNÉ ZÁRUKY (NUCLEAR SAFEGUARDS)

Ondřej Šťastný, Věra Šídlová
Státní úřad pro jadernou bezpečnost, Praha

Abstrakt

Popis základních aspektů mezinárodního kontrolního režimu, jehož cílem je zabránit šíření jaderných zbraní do politicky nestabilních zemí (Smlouva o nešíření jaderných zbraní, Non-Proliferation Treaty – NPT). Stručný souhrn základních pojmů a aspektů týkajících se naplňování mezinárodních závazků České republiky v této oblasti (Dohoda o uplatňování záruk na základě Smlouvy o nešíření jaderných zbraní – Záruková dohoda, Dodatkový protokol k Dohodě o uplatňování záruk na základě Smlouvy o nešíření jaderných zbraní). Působnost Oddělení pro kontrolu nešíření jaderných zbraní v rámci Státního úřadu pro jadernou bezpečnost, dohled nad evidencí jaderných materiálů (uran, plutonium, thorium), výkon kontrolní činnosti, spolupráce s Mezinárodní agenturou pro atomovou energii a Euratomem.

1. Úvod

V tomto příspěvku jsou velice stručně popsány základní aspekty mezinárodního kontrolního režimu nešíření jaderných zbraní. Ve stručnosti se zmíníme o fundamentálních historických skutečnostech a popíšeme situaci v ČR. Nakonec bude připojen seznam nezbytné legislativy, podle které SÚJB vykonává svou činnost v této oblasti.

2. Historický úvod

Základním dokumentem, na kterém stojí mezinárodní kontrolní režim nešíření jaderných zbraní je Smlouva o nešíření jaderných zbraní (Non-Proliferation Treaty, NPT) z roku 1968. Tato smlouva rozděluje státy na tzv. jaderné (oficiálně disponují jadernými zbraněmi) a nejaderné (jadernými zbraněmi nedisponují). Signatáři z řad jaderných států se v této smlouvě zavazují nepředávat jaderné zbraně nebo technologie či know-how nezbytné k jejich vývoji do nejaderných států a zemí, které nejsou signatáři NPT. Nejaderné státy se naproti tomu vzdávají všech snah po získání jaderných zbraní a souvisejících technologií. Tato smlouva ve své podstatě „konzervuje“ stav z roku 1967 a jadernými státy, tedy oficiálními držiteli jaderných zbraní, jsou tak USA, Velká Británie, Francie, Čína a Rusko. Zajímavostí v tomto ohledu je Izrael, který NPT nikdy nepodepsal, avšak jadernými zbraněmi s nejvyšší pravděpodobností disponuje.

NPT zároveň ustavuje novou organizaci pod OSN – Mezinárodní agenturu pro atomovou energii (MAAE, International Atomic Energy Agency – IAEA) a dává jí za úkol dohlížet na dodržování ustanovení NPT. Aby MAAE měla v této věci potřebné pravomoci ve všech členských státech, vyžaduje NPT po svých signatářích, aby s MAAE uzavřeli smlouvu, kterou dávají MAAE zákonné pravomoci na svém území. Tato smlouva, která řeší především technické náležitosti mezinárodního dohledu v členských státech, se nazývá Dohoda o uplatňování záruk na základě Smlouvy o nešíření jaderných zbraní, zkráceně Záruková dohoda (Safeguards Agreement).
Název této smlouvy byl zvolen podle následujícího kontrolního schématu: členský stát je povinen vést velice přísnou evidenci jaderných materiálů na svém území (tzv. SSAC – State system of accounting for and control of nuclear material). Výstupy z této evidence musí pravidelně posílat do MAAE, která následně vysílá své inspektory, aby ověřili, zda deklarované údaje odpovídají realitě. Pokud je shoda ověřena, MAAE před Radou bezpečnosti OSN zaručuje, že daný stát nedisponuje neevidovanými jadernými materiály a neprovádí žádné činnosti směřující k získání jaderné zbraně.

V 90. letech se ukázalo několik nedostatků tohoto mezinárodního kontrolního režimu. Záruková dohoda totiž umožňuje MAAE kontrolu pouze jaderných materiálů, které byly daným státem deklarovány. Pokud stát provádí vlastní skrytý jaderný program, nemá MAAE prakticky žádné pravomoci a nástroje, jak takový program odhalit (viz [2], [3] – případ utajovaného jaderného výzkumu v zařízení Tuwaitha v Iráku

v letech 1991 – 1992). Tento nedostatek byl napraven v roce 1997 sepsáním tzv. Dodatkového protokolu k Dohodě o uplatňování záruk na základě Smlouvy o nešíření jaderných zbraní. Tento dodatek rozšiřuje pravomoci MAAE a ukládá členským státům další deklarační povinnosti týkající se zejména výzkumu v oblasti jaderného palivového cyklu a souvisejících citlivých technologií.

NPT byla podepsána tehdejší ČSSR v roce 1968, následně v roce 1972 také Záruková dohoda. Kompetentním orgánem pro vedení evidence jaderných materiálů (SSAC) byla tehdy pověřena Československá atomová komise (ČSKAE). Jejím pokračovatelem je od roku 1993 Státní úřad pro jadernou bezpečnost (SÚJB), kde je koncentrován také dohled nad radiační ochranou, jadernou bezpečností apod. ČR podepsala v roce 1999 Dodatkový protokol, který vstoupil v platnost v roce 2002. Od roku 2009 je v platnosti tzv. trojstranná Záruková dohoda a Dodatkový protokol, která do vztahu ČR – MAAE zahrnuje i Euratom, jemuž přisuzuje kontrolní pravomoci obdobného rozsahu jako MAAE.

Agenda příslušející režimu nešíření jaderných zbraní v ČR je vykonávána v Oddělení pro kontrolu nešíření jaderných zbraní (OKNJZ) na SÚJB.

3. Dohled nad jadernými materiály v ČR

V ČR jsou jaderné materiály (uran, plutonium a thorium) používány v řadě oborů lidské činnosti. Ochuzený uran ve formě bloků je používán pro své stínící vlastnosti na pracovištích se zdroji ionizujícího záření, uran a thorium ve formě prášku pak při nejrůznějších analýzách a výzkumných činnostech. Ochuzený a přírodní uran v práškové formě se navíc používá k barvení skla ve sklárnách. Plutonium lze naproti tomu nejčastěji nalézt v PuBe zdrojích neutronů.

Pro účely evidence jaderných materiálů v ČR (SSAC) byla naše krásná země rozdělena na fiktivní oblasti, tzv. oblasti materiálové bilance (Material Balance Areas – MBA). SÚJB vydává povolení k nakládání s jadernými materiály (pro cca 180 organizací) a následně od držitelů povolení shromažďuje informace o změnách inventury jaderných materiálů. Vztah mezi držiteli povolení a oblastmi materiálové bilance vyjadřuje Tabulka 1. Získané informace tak umožňují sledovat, jak se jednotlivé dávky jaderných materiálů pohybují mezi jednotlivými oblastmi materiálové bilance. Mechanizmus vydávání povolení zase zaručuje, že s jadernými materiály nakládají pouze ti, kteří mají dostatečné know-how a zavedenou požadovanou úroveň kultury bezpečnosti.

Před rokem 2009 byl SÚJB zodpovědný za zasílání výstupů z SSAC pro všechny MBA. Od roku 2009 zasílají informace o pohybu jaderných materiálů „velcí“ držitelé povolení (např. jaderné elektrárny) přímo do Euratomu, který je po nezbytné kontrole posílá do MAAE. SÚJB je tak v současnosti zodpovědný „jen“ za posílání výstupů za MBA WCZZ a WCZA, tedy „drobné“ držitele povolení (sklárny, školy, laboratoře, defektoskopie), do Euratomu, který je též poté předá MAAE.

Mezinárodní závazky vyplývající z Dodatkového protokolu se týkají zejména každoročního zasílání deklarací o probíhajícím nebo plánovaném výzkumu v oblasti jaderného palivového cyklu, výroby speciálních zařízení pro jaderný průmysl, objemu produkce uranových rud, vývozech citlivých technologií apod.

Kód MBA	Jméno MBA, popis
WCZA	cca 130 lokalit mimo jaderná zařízení (drobní držitelé, defektoskopie)
WCZB	CV Řež, s. r. o. – výzkumný reaktor LVR-15
WCZC	CV Řež, s. r. o. – výzkumný reaktor LR-0
WCZD	ÚJV Řež, a. s. – Centrální analytická laboratoř
WCZF	ÚJP Praha, a. s.
WCZG	ÚJV Řež, a. s. – Sklad vysoce aktivních odpadů
WCZJ	ČEZ, a. s., JE Dukovany, 1. dvojblok

WCZK	ČEZ, a. s., JE Dukovany, 2. dvojblok
WCZL	ČEZ, a. s., JE Dukovany – 2 mezisklady vyhořelého jaderného paliva
WCZS	Správa úložišť radioaktivních odpadů
WCZT	ČEZ, a. s., JE Temelín
WCZU	ČEZ, a. s., Mezisklad vyhořelého jaderného paliva, JE Temelín
WCZV	KJR FJFI ČVUT v Praze, Školní reaktor VR-1
WCZX	DIAMO s. p., o. z. TUU Stráž pod Ralskem
WCZY	DIAMO s. p., o. z. GEAM Dolní Rožínka
WCZZ	cca 40 lokalit mimo jaderná zařízení (drobní držitelé, spotřeba JM)

Tab. 1 - Přehled oblastí materiálové bilance v ČR (zdroj: interní předpis SÚJB, stav k prosinci 2012)

4. Kontrola exportu/importu jaderných položek

Na světě existuje několik kontrolních režimů posilujících NPT, které jsou zaměřeny na kontrolu exportu citlivých technologií. ČR je členem tzv. Skupiny jaderných dodavatelů (Nuclear Suppliers Group – NSG) a tzv. Zangger Committee.

Směrnice NSG a jejich seznamy kontrolovaných položek jsou promítnuty i do naší národní legislativy – vyhlášky definující tzv. vybrané položky v jaderné oblasti (speciální zařízení pro použití v jaderné oblasti – např. reaktorové nádoby, centrifugy apod.) a tzv. položky dvojího použití v jaderné oblasti (zařízení, jež přímo nebyla konstruována pro jadernou branži, avšak vzhledem k jejich parametrům je možno je použít k výrobě vybraných položek – např. vysoce přesné obráběcí stroje). Kdokoliv chce vyvézt/dovézt jakoukoliv položku z těchto seznamů, musí mít povolení SÚJB.

5. Kontrolní činnost

Inspektoři jaderné bezpečnosti působící v OKNJZ provádějí většinu kontrol na jaderných zařízeních v součinnosti s inspektory MAAE a Euratomu. Každoročně jsou tak provedeny v našich jaderných elektrárnách např. kontroly skladů čerstvého jaderného paliva (viz Obrázek 1), zavezení aktivní zóny a bazénů skladování vyhořelého paliva, skladů vyhořelého paliva atd. Na těchto zařízeních bývají vzhledem k množstvím přítomného materiálu používána nejrůznější technická opatření zabraňující nesprávné manipulaci s jadernými materiály – pečetě a dozorovací systémy. Pečetě mohou být papírové (pro krátkodobé užití), kovové, elektronické a optické – viz Obrázek 2. Dozorovací systémy slouží k nepřetržitému monitorování klíčových míst na jaderných zařízeních – reaktorový sál, sklady vyhořelého paliva apod. – viz Obrázek 3.

Obr. 1 - Inspektorka SÚJB s vedoucím evidence jaderných materiálů na EDU při kontrole skladu čerstvého jaderného paliva

Rovněž se mezinárodní inspektoři velice často objevují na pracovištích, kde se provádí zajímavý jaderný výzkum, a kde je spektrum používaných jaderných materiálů velice rozmanité – ÚJV Řež, a. s. a CV Řež, s. r. o.

SÚJB provádí většinu samostatných kontrol bez mezinárodní účasti u „drobných“ držitelů povolení k nakládání s jadernými materiály, tedy u defektoskopických firem, sklářů, v nemocnicích apod. Rovněž inspektoři SÚJB ověřují skutečnosti při zvláštních událostech, jako jsou např. ztráty či nálezy jaderných materiálů.

Obr. 2 - Aplikace kovové pečeti MAAE na víko reaktoru

6. Zákaz jaderných zkoušek

ČR je od roku 1996 rovněž signatářem Smlouvy o všeobecném zákazu jaderných zkoušek (Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty – CTBT), která se prozatím nachází v přípravném režimu. V rámci této smlouvy bylo na světě doposud vybudováno 337 měřicích stanic, které mají za úkol monitorovat seizmickou aktivitu způsobenou příp. testy jaderných zbraní. Modernější stanice jsou rovněž vybaveny filtračním zařízením, které hledá stopy vzácných izotopů vznikajících při výbuších jaderných bomb. Také existují hydroakustické stanice, které sledují zvukové vlny v mořích. Rovněž byly postaveny stanice sledující infrazvuky vznikající při velkých výbuších. Celá monitorovací síť CTBTO (CTBT Organisation) má za cíl v případě potřeby lokalizovat místo výbuchu, určit jeho sílu a analýzou spadu potvrdit/vyvrátit povahu bomby.

Na území ČR se nachází jedna seizmická monitorovací stanice s označením VRAC. Provozovatelem je Ústav fyziky země v Brně.

Obr. 3 - Dozorovací kamera MAAE v zapečetěném obalu – běžně používaná na reaktorových sálech ke sledování tamějších činností

7. Program podpory Záruk MAAE

V rámci spolupráce s MAAE zajišťuje SÚJB také tzv. Program podpory Záruk MAAE. V podstatě se jedná o služby v oblasti technické spolupráce, školení a finanční podporu pro MAAE. Vzhledem k finančním a technickým možnostem ČR se naše podpora soustředí zejména na oblast vzdělávání budoucích

inspektorů MAAE. Náš program zahrnuje několik „tasků“ týkajících se školení v oblasti vedení evidence jaderných materiálů (SSAC) jak na národní úrovni, tak na úrovni operátora, tj. jaderného zařízení. Rovněž pro zaměstnance MAAE organizujeme každý rok technickou návštěvu uranového dolu v Dolní Rožínce. Na jaderné elektrárně Dukovany zase MAAE pořádá tréninkový kurz pro své budoucí inspektory a testuje nová detekční a dozorovací zařízení.

8. Legislativa

Mezinárodní smlouvy, které definují právní rámec tohoto mezinárodního kontrolního režimu, již byly zmíněny v předchozím textu. V tomto odstavci uvedeme několik legislativních aktů z tuzemské – a v jednom případě evropské – kuchyně:

- zákon č. 18/1997 Sb., o mírovém využívání jaderné energie a ionizujícího záření (atomový zákon) a o změně a doplnění některých zákonů,
- vyhláška č. 213/2010 Sb., o evidenci a kontrole jaderných materiálů a oznamování údajů požadovaných předpisy Evropských společenství,
- nařízení Komise (Euratom) č. 302/2005 ze dne 8. února 2005 o uplatňování dozoru nad bezpečností v rámci Euratomu,
- vyhláška č. 165/2009 Sb., o stanovení seznamu vybraných položek v jaderné oblasti,
- vyhláška č. 166/2009 Sb., o stanovení seznamu položek dvojího použití v jaderné oblasti.

9. Závěr

V tomto článku jsme se snažili přiblížit odborné veřejnosti režim nešíření jaderných zbraní ve světě a v ČR. Doufáme, že se nám tento ctnostný cíl podařilo alespoň z části splnit. Zvídavého čtenáře odkazujeme na připojený seznam literatury, příp. další zdroje informací, jako např. internetové portály MAAE, CTBTO apod.

10. Literatura

[1] Rakousko. Treaty on the Non-Proliferation of Nuclear Weapons. In: *Information Circular*. Rakousko: IAEA, 1970. Dostupné z: http://www.iaea.org/Publications/Documents/Infcircs/Others/infcirc140.pdf.

[2] Baghdad Nuclear Research Facility. *Wikipedia* [online]. 2003, 1. 3. 2012 [cit. 2012-11-26]. Dostupné z: http://en.wikipedia.org/wiki/Baghdad_Nuclear_Research_Facility.

[3] Nuclear capabilities of Iraq. *IAEA* [online]. 1992 [cit. 2012-11-26]. Dostupné z: http://www.iaea.org/Publications/Booklets/Iraq/event.html.

[4] Safeguards and Verification. *IAEA* [online]. 2011, 23. 8. 2011 [cit. 2012-11-26]. Dostupné z: http://www.iaea.org/OurWork/SV/Safeguards/sv.html.

HÉLIOVÁ IMPLANTÁCIA ODS OCELÍ

Jana Veterníková[1], Stanislav Stanček[1], Veronika Sabelová, Michal Skarba[2], Jarmila Degmová[1], Vladimír Slugeň[1]
[1] Ústav jadrového a fyzikálneho inžinierstva, Fakulta elektrotechniky a informatiky, Slovenská Technická Univerzita, Bratislava
[2] Ústav materiálov, Materiálovotechnologická fakulta, Slovenská Technická Univerzita, Trnava

Abstrakt

Vývoj a výstavba štvrtej generácie reaktorov je vo svete stále aktuálnou témou. Existuje veľa medzinárodných projektov s cieľom určiť tie najvhodnejšie konštrukčné materiály odolávajúce vyššiemu tepelnému a hlavne radiačnému namáhaniu ako v súčasných jadrových zariadeniach.

Náš výskum je zameraný najmä na oxidmi disperzne spevnené (ODS) ocele, ktoré sú porovnávané s feritickými oceľami a jednou austenitickou oceľou vzhľadom na ich radiačnú odolnosť. Ich radiačné poškodenie bolo simulované implantáciou iónov hélia. Po implantácii sme pozorovali nárast defektov vakančného typu pomocou pozitrónovej anihilačnej spektroskopiou (PALS). Podľa výsledkov sa zdá byť radiačne najodolnejší materiál ODS Eurofer a feritický materiál T91, ktoré vykázali najmenšiu akumuláciu defektov počas implantácie.

1. Úvod

Komerčné využitie 4. generácie jadrových reaktorov je oddiaľované nielen ich projektovaním ale aj výberom vhodných konštrukčných materiálov odolných voči vyššiemu tepelnému a radiačnému zaťaženiu (~ 900 oC a 150 dpa [1]) v porovnaní so súčasne používanými materiálmi. Vo svete sa veľa diskutuje o ODS oceliach, ktoré sú kandidátmi na pokrytie palivových prútikov. Aj keď je tento materiál známy už dlhšie, spojenie s jadrovou energetikou sa objavilo len nedávno. ODS materiály sú špecifické svojim výrobným postupom a lepšími mechanickými vlastnosťami oproti klasickým oceliam. Ich mikroštruktúra však zatiaľ nie je úplne preskúmaná. To je dôvod, prečo sa naša práca zameriava na pozorovanie vakančných typov defektov v štruktúre komerčných ODS ocelí pomocou pozitrónových techník.

Pozitrónová anihilačná spektroskopia metóda doby života pozitrónov môže určiť veľkosť defektov v štruktúre a ich koncentráciu, tak ako aj nárast objemu defektov po implantácii.

2. Experiment

2.1. Skúmané materiály

V práci sme skúmali 5 rôznych ODS ocelí (MA 956, PM 2000, ODM 751, MA 957, ODS Eurofer), 3 feritické ocele (Eurofer, T91, P91) a jednu austenitickú oceľ (NF 709). Vzorky sa líšili nielen štruktúrou železa ale aj výrobným procesom a chemickým zložením, kde sa najvýraznejšie menil obsah chrómu. Chemické zloženie týchto materiálov (viď. Tab. 1) bolo merané optickou emisnou spektroskopiou (SPEKTROLAB, type LAVWA18A, MTF STU Trnava).

Ocele	ODS*					FS*			AS*
Hmot. %	**MA 956**	**PM 2000**	**ODM 751**	**MA 957**	**Eurofer ODS**	**E97**	**T91**	**P91**	**NF 709**
C	0.072	0.074	0.07	0.03	0.1	0.1	0.092	0.1	0.06
Mn	0.12	0.07	0.07	0.09	0.44	0.44	0.48	0.5	1
Si	0.04	0.03	0.06	0.04	0.05	0.05	0.15	0.45	-
Ni	0.07	0.03	0.02	0.13	-	-	0.09	0.05	25
Cr	19.5	19.1	16.2	13.7	8.8	8.8	8.32	9.12	20.3
Mo	0.1	0.13	1.74	0.03	0.003	0.003	0.86	0.96	1.5
Ti	0.33	0.49	0.66	1.00	-	-	-	-	0.05
Co	0.04	0.02	0.01	<0.01	-	-	-	-	-
Cu	0.03	0.01	0.02	-	-	-	-	-	-
Al	3.4	4.23	3.8	0.03	-	-	-	0.004	-
W	<0.01	<0.01	<0.01	-	1.1	1.1	0.01	-	-
Y_2O_3	0.5	0.5	0.5	0.3	-	-	-	-	-
Nb	0.01	0.01	0.01	-	0.002	0.002	0.06	0.06	0.26
V	0.02	0.01	0.02	-	0.2	0.2	0.2	0.21	-
Ta	-	-	-	-	0.14	0.14	-	-	-
N	0.04	-	0.03	-	0.01	0.01	0.055	0.04	-

* ODS – oxidmi disperzne spevnené, FS – feritické, AS – austenitické.

Tab. 1 - Chemické zloženie skúmaných ODS ocelí

Austenitická a feritické ocele boli vyrobené klasickou procedúrou. ODS ocele boli sformované po mechanickom legovaní pomocou horúceho extrudovania (pretláčania) pri teplote 1150oC a tlaku 103 MPa. Proces mechanického legovania zahŕňal rozdrvenie materiálu a zmiešanie s práškovým oxidom ytria.

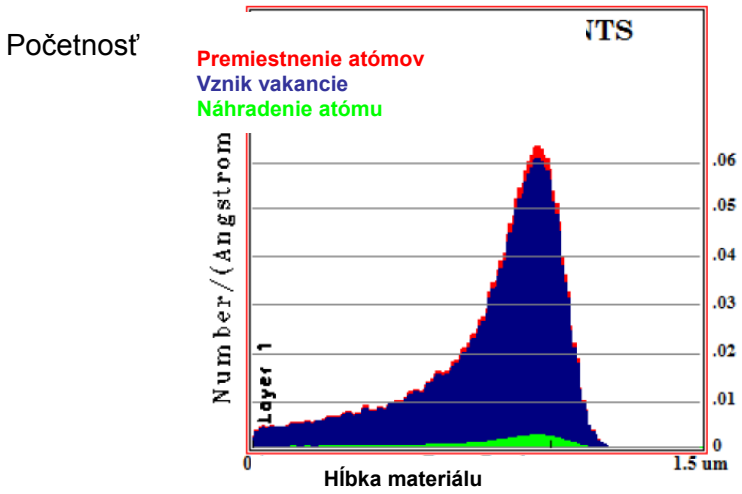
Skúmané ocele boli narezané na vzorky s rozmermi (10x10x0.4) mm3. Po rozrezaní bola plocha vzorky vybrúsená a vyleštená na takmer zrkadlový povrch za účelom odstrániť rezaním ovplyvnenú zónu a nečistoty (do ~ 0.3μm) parazitne absorbujúce pozitróny.

2.2. Experimentálna meracia technika a simulácia radiačného poškodenia

Vzorky boli skúmané pozitrónová anihilačná spektroskopia metóda doby života pozitrónov (PALS), pomocou ktorej možno pozorovať výskyt defektov vakančného typu aj pre veľmi nízku koncentráciu defektov (od 0.1 do 500 ppm) [2]. Z toho dôvodu je použitie tejto techniky vhodnejšie v porovnaní s transmisnou elektrónovou mikroskopiou, ktorá dokáže zobraziť defekty, ale nedáva údaj o ich koncentrácii.

Meranie PALS spektier bolo vykonané pomocou dvoch BaF2 scintilačných detektorov. Prvý detektor zaznamenáva čas, kedy v zdroji 22Na vznikol pozitrón (spolu so sprievodným gama žiarením) a druhý zachytáva čas vzniku anihilačných kvánt. Rozdiel týchto časov charakterizuje dobu života pozitrónu. FWHM parameter určujúci citlivosť merania bol pod 240 ps. Výsledné spektrum bolo analyzované pomocou programu LifeTime9 [3].

Radiačné poškodenie sme získali implantáciou iónov hélia (He2+), ktoré má výraznejší Braggov peak a pomocou neho možno aj sledovať akumuláciu hélia v štruktúre. Implantácia bola vykonaná pomocou lineárneho urýchľovača patriaceho ÚJFI STU s energiou iónov do 500 keV a fluenciou 1018 iónov/cm2. Hĺbka implantácie dosiahla 1,2 μm a radiačné poškodenie pre danú hĺbku bolo približne 45 dpa. Implantačný profil bol vypočítaný v programe SRIM (Obr. 1).



Obr. 1 - SRIM výpočet implantácie iónov hélia

2.3. Výsledky

PALS spektrá boli spracované troj-komponentne podľa štandardného modelu pre záchyt pozitrónov "Standard trapping model". Najkratšia doba života pozitrónu (LT1) charakterizuje bezdefektnú štruktúru materiálu (bulk)14 ovplyvnenú anihiláciou v nečistotách alebo v malých defektoch. Druhá doba života pozitrónov (LT2), vyššia ako LT1, charakterizuje anihiláciu pozitrónov v majoritných defektoch. Najdlhšia, tretia, doba života pozitrónov (LT3 > 500ps) popisuje anihiláciu vo vzduchovej vrstve medzi zdrojom a vzorkou, ktorá je však zanedbateľná.

Pre naše meranie bola LT1 medzi 70 a 80 ps, čo približne zodpovedá bulku železa/ocele pri výskyte väčšieho množstva defektov. Keď je jej hodnota väčšia (medzi 120 a 140 ps), znamená to, že pozitróny anihilovali nielen v bezdefektnej štruktúre, ale aj v mono-vakanciách alebo v dislokáciách, čo je typické aj pre ocele ODM 751, MA 957 a ODS Eurofer. Druhá doba života (LT2) pozitrónov bola pre skúmané vzorky medzi 140 a 320 ps (viď Obr. 2).

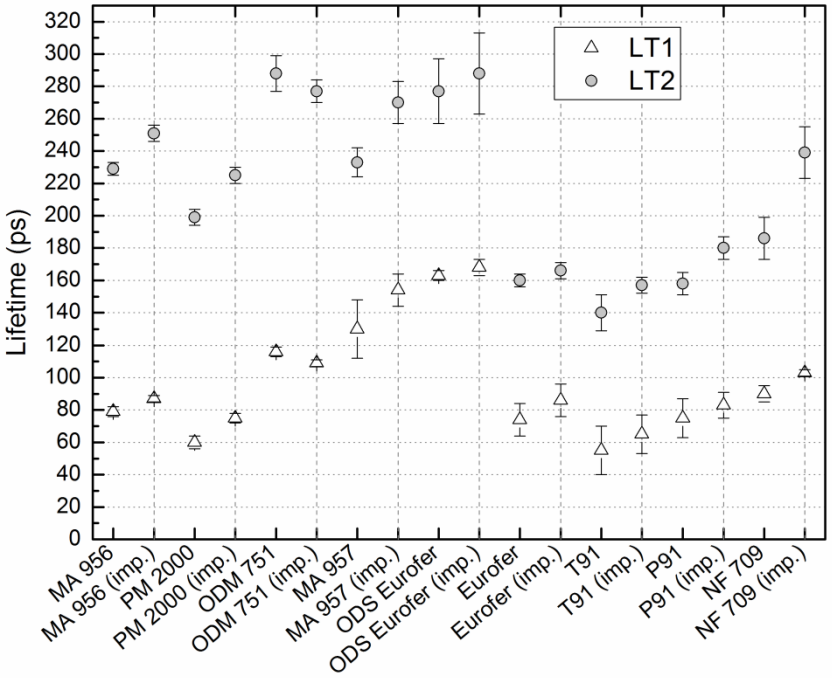
Po implantácii je evidentný nárast LT2, ktorý naznačuje väčšie defekty ako pred implantáciou. Najväčšie defekty boli nájdené v oceli ODS Eurofer, ktorá obsahuje majoritne vakančné klastre s 5 vakanciami (V5) pred implantáciou a so 6 vakanciami po implantácii (V6). Podobná veľkosť defektov bola nájdená pre ODM 751, v ktorom však zostali päť-vakancie (V5) aj po implantácii. MA 957 vykázal najväčší radiačný rast defektov z tri-vakancií (V3) na vakančné klástre so 4 alebo 5 vakanciami (V4 - V5). Nemožno však zabudnúť, že tieto tri ocele majú aj veľký výskyt dislokácii (viď LT1).

Menší nárast bol evidovaný pre MA 956 a PM 2000. MA 956 obsahuje tri-vakancie (V3) pred implantáciou a tri alebo štyri-vakancie po implantácii (V3 - V4). Správanie ocele PM 200 je podobné, i keď v neipmlantovanej vzorke sme našli di-vakancie a po implantácii boli nájdené tri-vakancie. V oceli NF 709 vzrástli mono alebo di-vakancie (V1 - V2) na tri-vakancie (V3).

FM ocele mali stabilnú veľkosť defektov aj po implantovaní – mono-vakancie (V1) a dislokácie. Len P91 po implantácii mal hodnotu LT2 nad 180 ps, čo znamená aj určitý výskyt di-vakancií.

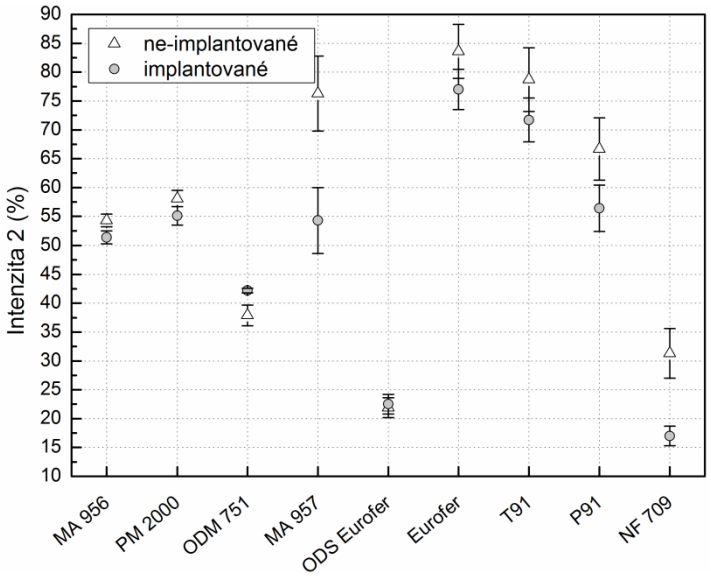
[14] miesto v štruktúre, kde sa do vzdialenosti difúznej dĺžky pozitrónu (rádovo nm) nenachádza žiaden vakančný defekt, ktorý by pritiahol pozitrón.

Doba života
LT (ps)



Obr. 2 - Doby života pozitrónov LT1(bezdefektná štruktúra ovplyvnená malými defektmi) a LT2 (pre defekty) pre neimplantované a implantované (imp.) vzorky

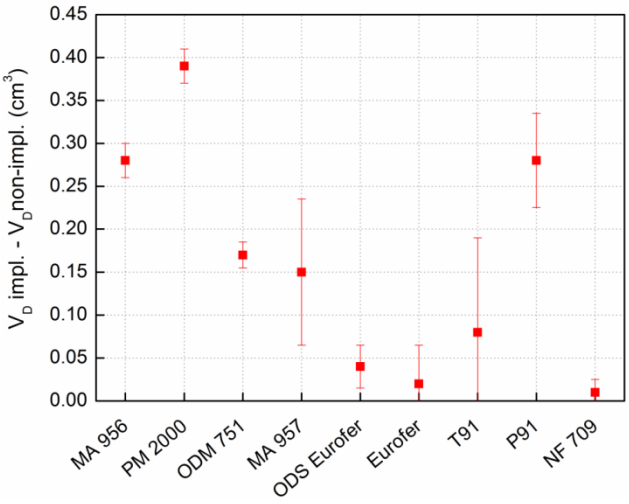
Intenzita pozitrónovej anihilácie (%) pre druhú dobu života LT2 zobrazená na Obr. 3 vyvrátila náš predpoklad o zväčšovaní koncentrácie defektov počas implantácie. Táto intenzita poklesla v každej ocele okrem ODS Euroferu (konštantná) a ODM 751 (mierny nárast). Na základe výsledku pre I2 a LT2 však možno poznamenať, že koncentrácia defektov síce poklesla, ale veľkosť defektov narástla, čo zodpovedá akumulácii nových väčších objemových defektov počas implantácie alebo vzájomné spájanie menších defektov do väčších rozmerov.



Obr. 3 - Intenzita pozitrónovej anihilácie v defektoch

Z koncentrácie defektov a veľkosti defektov bol vypočítaný celkový objem defektov za predpokladu, že defekty majú sférický tvar. Porovnanie celkového objemu defektov pred a po implantáciou je znázornené na Obr. 4. Výsledky pre celkový objem defektov preukázali, že defekty sa v priebehu implantácie do štruktúry akumulujú, hoci ich koncentrácia sa v niektorých materiáloch zmenšila.

V neimp. – V imp.
(cm^{-3})



Obr. 4 - Rozdiel celkového objemu defektov pred a po implantácii

3. Záver

ODS ocele sú perspektívne kandidátne materiály na pokrytie palivových článkov. Uvažuje sa s ich použitím najmä v rýchlych reaktoroch. Majú vhodné mechanické aj chemické vlastnosti. Treba však doplniť informácie o ich radiačnej odolnosti, ktorá nebola ešte poriadne preskúmaná a porovnať ju s inými konštrukčnými materiálmi, čo bolo cieľom našej práce.

Z meraní pozitrónovou anihilačnou spektroskopiou je zrejmé, že najlepšiu radiačnú odolnosť vykazuje ODS Eurofer a T91. Tieto materiály sú ďalej nasledované oceľou Eurofer 97. Z experimentu teda vidno, že najodolnejšie materiály z pohľadu radiačnej akumulácie defektov obsahujú 9 hmot. % chrómu.

Najmenšiu radiačnú odolnosť preukázali ocele NF 709 a P91, ktoré obsahovali v základnom stave najnižšiu koncentráciu defektov. Tieto ocele reagovali na implantáciu najradikálnejšie.

Náš predpoklad ohľadom veľkej radiačnej citlivosti austenitickej ocele NF 709 sa potvrdil i napriek tomu, že zmena celkového objemu defektov pozorovaná PALS bola malá, čo bolo spôsobené malou počiatočnou koncentráciou defektov alebo menšiou citlivosťou PALS na malú poškodenú oblasť. PALS pozoruje rádovo 0,1 mm a poškodenie dosahovalo 900 nm. Pre NF 709 sme predpokladali akumuláciu veľkých vakančných klastrov, čo sa aj potvrdilo, keďže FCC štruktúra je náchylnejšia k radiačnému rastu objemu. Nečakali sme však, že aj v ODS oceliach sa budú akumulovať podobne veľké defekty. Skúmané ODS ocele boli feritické, čo naznačuje skôr citlivosť na malé bodové defekty. Temperované ferito-martenzitické ocele preukázali akumuláciu mono-vakancií a čiastočne dislokácii.

Poďakovanie

Práca bola financovaná z prostriedkov projektu VEGA 1/0366/12.

Použitá literatúra

[1] S. J. Zinkle, Fusion Materials Science: Overview of Challenges and Recent Progress, APS Division of Plasma Physics 46 Annual Meeting, Savannah, GA, USA (2004).
[2] V. Slugeň, What kind of Information we can Obtain from Positron Annihilation Spectroscopy, Report, DG JRC, Institute for Energy, European Commission, Netherlands, 2006, EUR 22468.
[3] J. Kansy, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A 374 (1996) 235.

Nakladatel: Česká nukleární společnost, o. s. (ČSVTS)
V Holešovickách 2
180 00 Praha 8
Jaderná energetika v pracích mladé generace - 2012

Rok vydání: 2013, vydání první

Vazba: brožovaná, formát A4 , 180 stran

Materiály sestavili:
Sborník v podobě CD: Ing. Lukáš Nesvadba

Tištěná verze: Ing. Václav Bláha
Martina Kortanová

Příspěvky jednotlivých autorů nebyly textově ani jazykově upravovány.

ISBN 978-80-02-02439-2