

STRUMAT-LTO projekt: Structural Materials research for safe Long Term Operation of LWR NPPs

Szerkezeti anyagok kutatása az LWR atomerőművek hosszú távú biztonságos üzemeltetése érdekében

1. Bevezetés

A reaktortartályok és fúziós berendezések nagyenergiájú neutron és gamma sugárzásnak vannak kitéve, mely öregedést okoz és meghatározza az élettartamukat. Az élettartam számítások pontosításához és a sugárzás álló acélok fejlesztéséhez az öregedési folyamatok megismerése nemcsak makro-, de mikroszinten is elengedhetetlenül szükséges.

A 2020-ban elfogadott EURATOM kutatási keretprogramok egyike a STRUMAT-LTO (STRUctural MATerials research for safe Long Term Operation of LWR NPPs) projekt, amit magyar intézet, az Energiatudományi Kutatóközpont (EK-CER) vezet a hollandiai Nuclear Research and Consultancy Group (NRG) együtt. **A projekt célja a Mn és Ni ötvözők szerepének tisztázása a nukleáris reaktorok tartály anyagának sugárkárosodásában.** A nagyenergiájú (gyors) neutronok roncsolják a fémek szerkezetét, új rácshibákat hoznak létre, gyorsítják a diffúziós folyamatokat. Egyes szennyező elemek (például a foszfor és a kén) kitudódnak a szemcsék felületére és gyengítik a szemcsék közötti kötések, felkeményedés nélküli elridegést okozva. Az ötvöző elemek egy része a szemcséken belül hoz létre kiválásokat, ezzel az anyag felkeményedését eredményezve. Mind a szemcsék közötti kötés meggyengülése, mind a mátrix anyagának a felkeményedése elősegíti a szemcsék közötti törést, azaz növeli a ridegtörési hajlamot.

Az acélok rácshibáiban a legkönnyebben a réz atomok mozognak. A réz atomok által kialakított rácshibák kiinduló helyei más elemek kiválásának. Szinte valamennyi ötvöző és szennyező elem megtalálható az így keletkezett klaszterekben. Ezek a klaszterek akadályozzák a diszlokációk mozgását, csökkentik a képlékeny alakváltozási képességet, azaz elridegést okoznak. Szerencsés hatás viszont, hogy a foszfor atomok egy része is csatlakozik a klaszterekhez és ezáltal jelentősen csökken a foszfor szemcsehatár menti kiválása, ezzel együtt a ridegtörés veszélye.

A második generációs acélokban a kiválás hatásának csökkentése érdekében a gyártók igyekeztek a réz, foszfor és kén mennyiségét csökkenteni. A kohászati technológiának azonban vannak gazdaságosságtól függő határai.

Az alacsony réztartalmú reaktorral acélok mátrix anyagában a szabad réz nagyrésze hamar elfogy és a klaszterek keletkezése lelassul. Ekkor azonban megjelennek a Mn-Ni alapú kiválások és esetleg felgyorsítják a sugárzás okozta elridegési folyamatot, megváltoztatják az élettartam számításokhoz felhasznált trendgörbék alakját. A jelenség angol neve „late blooming”. A Mn és a Ni fontos ötvözők az acélokban, növelik a szilárdságot és a törési szívósságot. A STRUMAT-LTO projekt célja a Mn és Ni sziner-

getikus hatásának a kutatása. 14 különféle összetételű acélminta került besugárzásra 2004-től a petteni (Hollandia)

High Flux Reactor (HFR) kutatóreaktorban, amely az Európai Közös Kutatóközpont (Joint Research Center – JRC) égisze alatt működik. A besugárzás 2016-ban fejeződött be és ekkor konzorcium alakult a vizsgálatok lefolytatására. 17 EU intézet és egy ukrain kutatóközpont vesz részt a munkában az EK-CER és az NRG vezetésével. A konzorcium 2020-ban elnyerte az Európai Unió támogatását és megindult a kutatás, ami a tervek szerint 2024-ben fejeződik be.



2. A projekt előzményei

Jelenleg a világon működő atomerőművek túlnyomó többsége nyomottvízes reaktorról épült a múlt század második felében. Akkor az élettartamot az öregedéssel kapcsolatos ismeretek hiánya miatt 30-40 évre választották, azért is, mert ennyi idő alatt biztosan megtérül a befektetett tőke. Időközben az erőművek biztonságával és az anyagok öregedésével kapcsolatos kutatások eredményei alapján az atomerőművek jelentős részét korszerűsítették, és az üzemeltetési élettartamukat meghosszabbították. Az atomerőművek másik csoportját pedig a tervezett élettartam végén (néha előbb is, legtöbbször politikai vagy gazdasági okból) bezárták. **A szerkezeti anyagok öregedésének kutatása az élettartam hosszabbításának és a biztonságnak az egyik fő alappillére.** A szerkezeti anyagok öregedését a bennük levő ötvöző és szennyező elemek diffúziója okozza. A diffúziót általában a szerkezeti anyag mikroszerkezete, ezen belül az atomi kötések erőssége, a diszlokációk mérete és jellege, a szennyező atomok mérete és a hőmérséklet határozza meg. A nagyenergiájú sugárzások (gyorsneutronok, nagyenergiájú gamma sugárzás) azonban változtatják a diszlokációs szerkezetet, kiütnek egyes atomokat a helyükről és lokálisan felhevítik az anyagot, ezáltal felgyorsítják a diffúziót és ezen keresztül az öregedést. Ez az öregedési mechanizmus azonban nemcsak a jelenleg üzemelő atomreaktorok problémája, hanem a negyedik generációs reaktorok és a fúziós energetikai berendezések fejlesztésének is alapkérdése, de szerepe van az úrkutatásban és más iparágak esetében is.

Az első reaktorok közönséges szén és alacsony ötvözős acélokból készültek. A legtöbbet lemezekből hajlították és hosszvarratokkal hegesztették össze. Hamar rájöttek azonban, hogy némelyik erősen ridegszik, ami csökkenti a biztonságot. Az 1960-as években az első kutatások nyomán csökkentették az acélok réz és foszfor tartalmát, és a hosszanti varratos lemezek helyett kovácsolt gyűrűkből építették fel a reaktortartályokat. 1990-ben a Nemzetközi

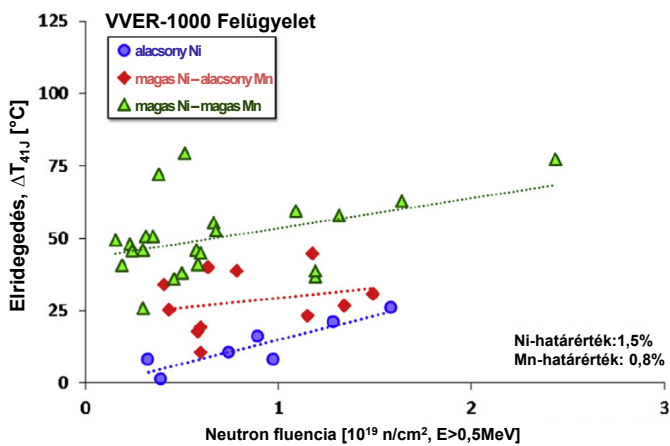
Atomenergia Ügynökség (NAÜ) elindított egy nagy nemzetközi kutatási programot, amelyben 14 különféle acél és 6 hegesztési varratot vizsgáltak. A projektet a Japán Atomenergia Bizottság és a japán ipar támogatta, legyártották a szükséges acélokat 1-10 tonnás tételekben. A mintákat 20 országba osztották szét és kutatóreaktorokban besugározták, majd vizsgálták a mechanikai tulajdonságait. A projektben az Atomenergia Kutatóintézet is részt vett és a Budapesti Kutatóreaktorban is történt besugárzás és vizsgálat. A mintegy tíz évig történő kutatómunka legfontosabb megállapítása az volt, hogy 0,08% Cu tartalom felett a neutronsugárzás okozta elrögzedés gyorsabb a vártnál [1].

Ezzel párhuzamosan sok sugárkárosodás tárgyú konferenciát rendeztek a NAÜ, az amerikai ASTM és mások szervezésében. Ekkor alakult meg az IGRDM (International Group on Radiation Damage Mechanism) ami a témával foglalkozó kutatások zártkörű platformja, és elkezdte a figyelmet a mechanikai tulajdonságok vizsgálata mellett a mikroszerkezeti kutatások fontosságára is felhívni.

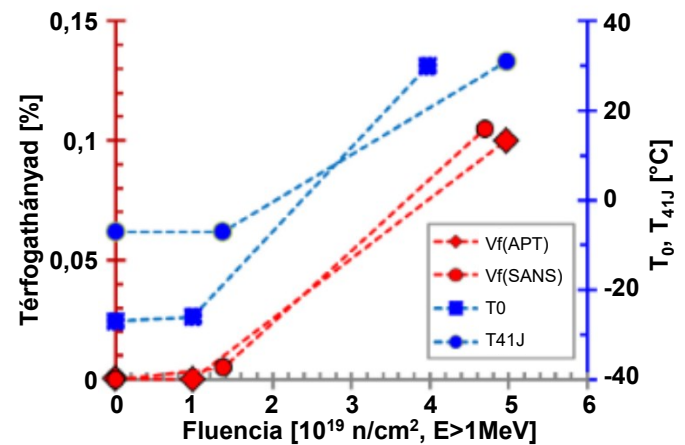
A projekt az USA-ban folytatódott a Heavy Section Steel programmal, amelyben az amerikai acélok tulajdonságait

vizsgálták. 2000 körül a reaktorok ellenőrző programjainak eredményeit elemző szakemberek felfigyeltek arra, hogy a sugárkárosodás trendgörbéje a nagy fluenciáknál nem követi az addig feltételezett telítődési jelet, hanem újra emelkedésnek indul, különösen a korszerűnek tartott alacsony Cu tartalmú acéloknál, illetve eltér a Cu tartalom alapján feltételezett értékektől (lásd 1. és 2. ábra).

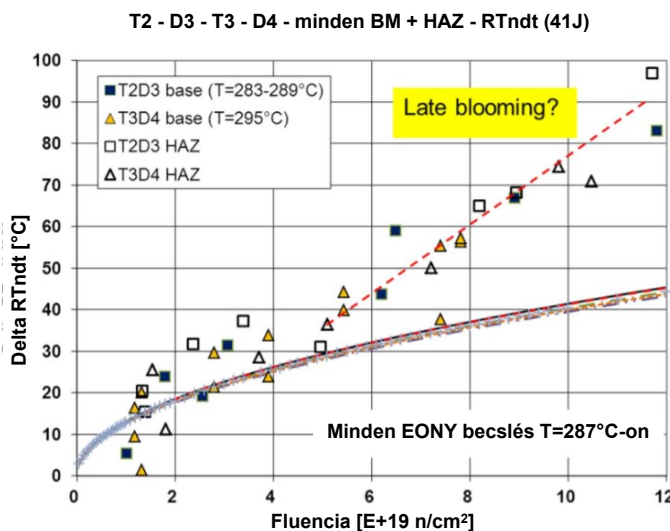
Közben a különböző, elrögzedést ellenőrző programok (surveillance) eredményei azt mutatták, hogy a magas nikkel tartalmú acéloknál az elrögzedés gyorsabb, mint amit az alkalmazott trendgörbék alapján becsülni lehetett. R. Gerard 2013-ban mutatott be egy érdekes példát alacsony ötvöztetésű acél hőzónájának a feltételezettől eltérő viselkedésére nagy fluenciáknál (lásd 2. ábra). A Nemzetközi Atomenergia Ügynökség egy technikai dokumentumot adott ki a Ni hatásáról [4]. E. Alstadt és munkatársai [5, 6] a kiválások mennyiségét határozták meg sugárkárosodott acélban és úgy találták, hogy a kiválások növekedése egy küszöb fluencia felett gyorsulásba megy át (lásd 3. ábra).



1. ábra: Különböző Ni tartalmú VVER-1000 acél elrögzedési trendgörbéje [2]



3. ábra: Neutronbesugárzás által létrehozott SANS (Small Angle Neutron Scattering - kisszögű neutron szórás) és APT (Atom Probe Tomography - atom próba rétegvétel) vizsgálattal mért kiválások térfogata a fluencia függvényében, WMS3NiMo1 anyagban [5]

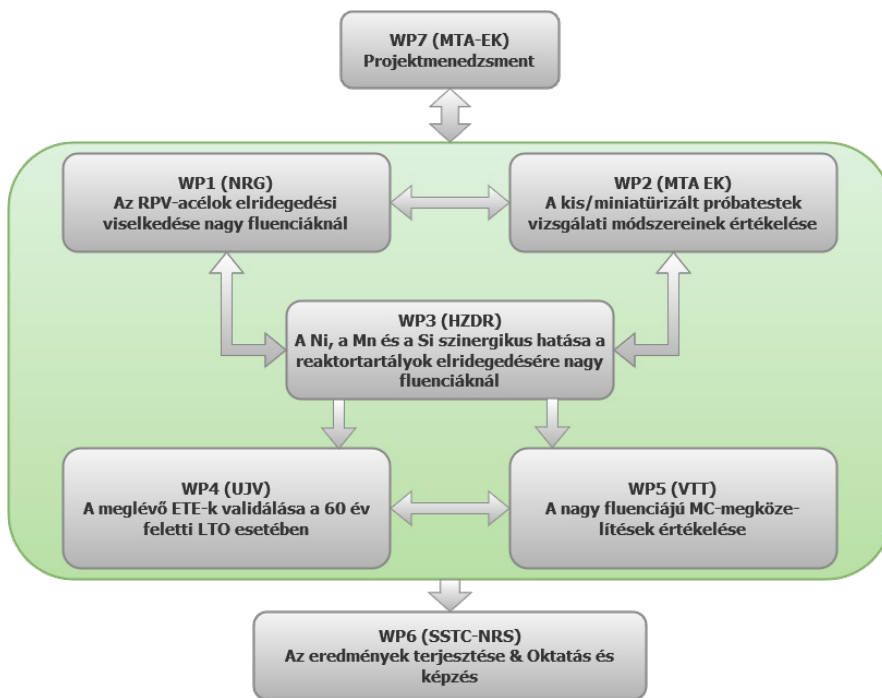


2. ábra: Alacsony ötvöztetésű reaktoracél sugárkárosodása a fluencia függvényében [3]

Ebből az következett, hogy más elemek is szerepet játszhatnak az elrögzedésben. Bob Odette elméleti úton kimutatta a nikkel és a mangán szerepét a sugárkárosodásban. A jelenséget egyre többször említette „late blooming” néven a szakirodalom [7-9].

Az európai LONGLIFE projekt a reaktortartály anyagában a nagy fluensek által kiváltott mikroszerkezeti változásokat vizsgálta (APT, SANS, TEM, AES és PAS) [10, 11].

A jelenség kutatására a petteni JRC intézete és az ott dolgozó vendégkutatók – magyar is volt közöttük – kidolgoztak egy hosszú távú sugárkárosodási programot. A minták besugárzása 2004-ben kezdődött meg a petteni nagyfluxusú kutatóreaktorban és 10 éven át tartott. Ezeknek a mintáknak a vizsgálatára szerveződött meg a STRUMAT-LTO konzorcium, először önkéntes alapon, majd 2019-ben a „Horizont 2020” Európai Unió pályázaton nyert támogatást.



4. ábra: A STRUMAT-LTO projekt felépítése [14]

3. A STRUMAT-LTO projekt szervezeti felépítése

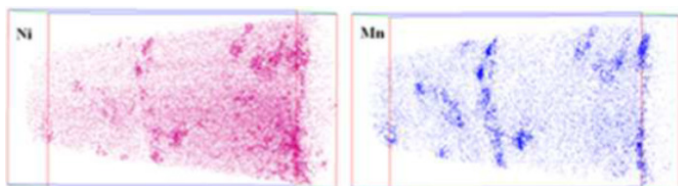
Az Európai Unió Horizont 2020 keretében elfogadott nagy kutatási projektek egyike a STRUctural MATerials research for safe Long Term Operation of LWR NPPs (STRUMAT-LTO). A STRUMAT-LTO projektben 17 EU ország és Ukrajna kutatóintézetei vesznek részt, a projekt EU támogatása 5 millió euró, ezt egészíti ki a résztvevők önkéntes hozzájárulásai. A projektet magyar intézet, az Eötvös Loránd Kutatási Hálózathoz tartozó EK-CER vezeti, a holland NRG Intézet a műszaki társvezető.

A projekt 7 feladatkört foglal magába, ahogy ezt a 4. ábra mutatja. Az ábrán zárójelben fel vannak tüntetve a feladatkört vezető intézetek is.

4. A STRUMAT-LTO projekt célkitűzései

A projekt egyik célja a nagy fluenciák hatásának vizsgálata a sugárkárosodásra.

Nagy fluenciák hatása a sugárkárosodásra. A neutronsugárzás okozta öregedésnek három fő összetevője van: a diszlokációs szerkezet (diszlokációk típusa, alakja és sűrűsége) változása, kiválások keletkezése, és egyes elemek (pl. a foszfor) szegregálódása a szemcsehatárokon. Az atompróba vizsgálatokkal megnyílt a lehetőség a kiválások összetételének a meghatározására.



5. ábra: Nagy neutron fluenciával besugárzott WWR-440 reaktoracél atompróba vizsgálat eredménye. Jól látszik, hogy a nikkelt és a mangán együtt válik ki és képez klasztereket [11]

A LONGLIFE projekt keretében bizonyosságot nyert, hogy réz atomok kiválásával kezdődik a folyamat, erre a magra rakódnak rá a további elemek, így stabil klaszterek keletkeznek (5. ábra).

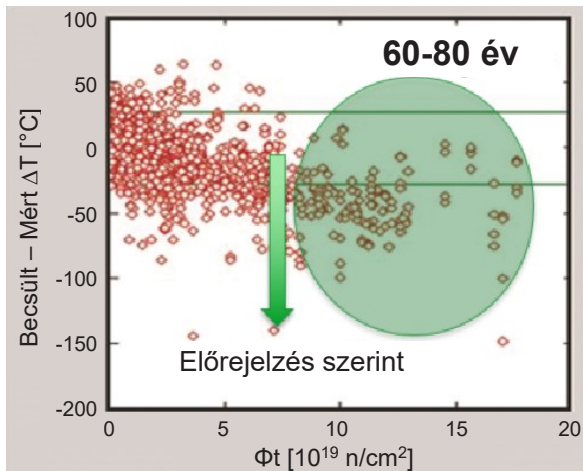
Az alacsony réz tartalmú reaktor acélok (második és harmadik generáció) esetében a szabad réz és foszfor atomok egy bizonyos idő után elfogynak, és ekkor telítésbe kellene menni a kiválásoknak, azaz további, csökkenő sebességű elridegést csak a diszlokációs szerkezet változása okozhatna. Ezzel szemben megfigyelték, hogy $2-3 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ fluencia után az elridegési folyamat felgyorsul. A ma üzemelő reaktorok még ez alatt a határ alatt vannak, vagy kissé fölötté, azaz a jelenség még nem okoz gondot, mert az eltérés kicsi. Azonban jelentős üzemidő hosszabbításnál már számításba kell venni a sugárkárosodás késői gyorsulását is. A LONGLIFE projektben megtalálták a mikroszerkezeti okot is: Ni-Mn magok válnak ki és ezekre

akad rá a többi szennyező és ötvöző elem. Szerencsére mind a réz, mind a Ni-Mn klaszterek megkötik a szemcsehatár irányába vándorló foszfor egy részét, jelentősen csökkentve a szemcsehatár menti törés valószínűségét. Az 5. ábra a késői kiválás jelenségének alátámasztására 10^{22} n/cm^2 nagyságrendű ($E > 1 \text{ MeV}$) fluenciával besugárzott 15Kh2MFA acél kiválásait mutatja be. Jól láthatóak a Mn-Ni magok. A projekt egyik fő célkitűzése a késői kiválás hatásának a felmérése. Ehhez különböző Mn és Ni tartalmú modell és ipari ötvözetek kerültek besugárzásra a HFR reaktorban.

A második fő célkitűzés a 60 évet meghaladó erőművi üzemnek megfelelő sugárkárosodás vizsgálata. Az atomreaktorok tartályainak 30-40 évi üzemeléséhez tartozó szerkezeti anyag öregedésére nagyon sok vizsgálat és adat áll rendelkezésre. A 60 évi üzemhez azonban már kevesebb, különösen, ha a sugárkárosodás késői gyorsulása jelentős hatással bír. Feltételezhető, hogy a sugárkárosodás késői gyorsulása nem minden esetben következik be, csak akkor, ha a Ni és a Mn mennyisége egy bizonyos határt meghalad. Ennek a határnak a további tanulmányozása a projekt egyik alapvető célja.

További célkitűzés olyan trendgörbék előállítása, amelyek 60 évet meghaladó üzemeltetés esetén is érvényesek. A trendgörbék olyan összefüggések, amelyek a vegyi összetétel ismeretében leírják a szerkezeti anyagok öregedését a neutronfluencia függvényében. A reaktortervezők és a reaktorfelügyeleti hatóságok ezeket veszik alapul a biztonságos élettartam számításánál és az üzemeltetési élettartamra vonatkozó licenstől kiadásánál. A trendgörbék lehetnek általánosak (egy acélminőségre vonatkozóak), vagy egyetlen adag acélra, egyetlen reaktortartályra érvényesek.

A legtöbb trendgörbe felülbecsüli az öregedést a nagy



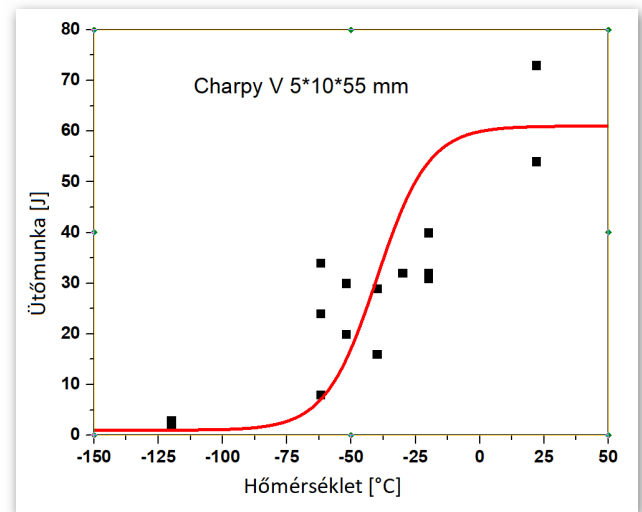
6. ábra: Az időszakos ellenőrző programok során mért adatok összehasonlítása az EONY trendgörbével [12]

fluenciák tartományában, azaz akadályozza a 60 éven túli üzemeltetést (lásd 6. ábra).

Célkitűzés a Mestergörbe módszer alkalmazhatóságának vizsgálata 60 évi vagy ezt meghaladó üzem esetén is. A törési szívósságot leíró Mestergörbe kifejlesztése a 2000-es évek környékén történt. A Mestergörbe óriási előnye, hogy a törési szívósság mérések relatív kis próbatesteken történhetnek, és az eredmények átszámíthatóak nagyméretű próbatestre vagy vastagfalú tartályokra is. A Mestergörbe alkalmazása a nagy fluenciák (hosszú üzemi élettartam) esetén azonban megkérdőjelezhető a sugárkárosodás fentebb leírt késői gyorsulása miatt. A projekt célja, hogy igazolja a Mestergörbe használatát 60 évi üzem után is, vagy olyan módon fejlessze tovább, hogy megfeleljen a 60 év utáni üzemeltetési biztonsági számításokhoz is.

A projekt negyedik fő célkitűzése a sugárkárosodás kis próbatestes vizsgálatának fejlesztése. A ma üzemelő reaktorokban többnyire Charpy V és szakító próbatesteket helyeztek el, amelyek együtt öregedtek a tartályok anyagával, azonban a számuk limitált volt. A legtöbb esetben archív anyagként a hosszú élettartamú üzemeltetéshez csak ezeknek a próbatesteknek a vizsgálatok után megmaradt darabjai állnak rendelkezésre. Ezekből vagy hegesztéses rekonstrukcióval, vagy nagyon kis próbatestek kivágásával és vizsgálatával lehet új eredményekhez jutni. A STRUMAT-LTO projektben két próbatest alkalmazására végzünk fejlesztő munkát: 10x10x4 mm-es CT próbatestek és ún. small punch (SP) vizsgálatra. A reaktorból kivett acél próbatestek erős radioaktív sugárzók. Ezért csak megfelelő védelem mögött, távműködtetett eszközökkel lehet a törött Charpy próbatestekből új mini próbatesteket kivágni. Ez számos technikai nehézséggel jár, különösen, ha figyelembe vesszük, hogy a próbatest méret csökkenésével vagy az eredmények szórása nő meg, vagy megmunkálási pontosságot és a megmunkált felületek simaságát kell növelni. Hasonlóan, a mérés is nehezebb, ha a próbatestet csak manipulátorral lehet kezelni. A projekt kis próbatestek gyártásával, mérésével foglalkozó részét szintén az EK-CER vezeti és a problémák megoldásához előkészítő és összehasonlító mérésorozatot (ún. Round-Robin

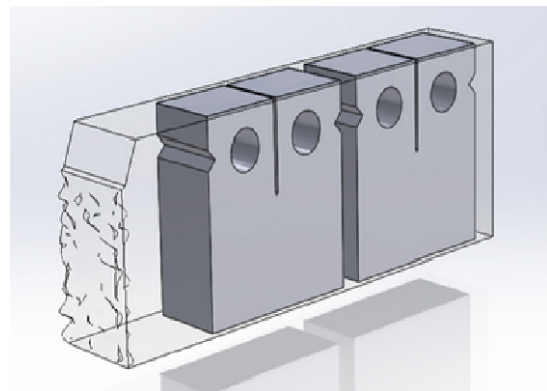
vagy körvizsgálatot) indított még besugárzatlan acélon. A vizsgálatban az EK-CER közepes méretű CT és Charpy próbakat gyártott és vizsgált 15Kh2MNFA reaktor acélból. A Charpy mérések eredményei a 7. ábrán láthatóak.



7. ábra: Charpy ütőmunka átmeneti hőmérséklet meghatározása a kispróbatestes Round-Robin program anyagán

A törési szívósság mérése jelenleg folyamatban van. A résztvevők a Charpy próbatestek törött darabjait kapták meg, és ezekből gyártottak/gyártanak mini CT és SP próbatesteket és vizsgálják azokat (lásd 8. ábra). A program befejezése után a tapasztalatokat és eredményeket összehasonlítják egymással és az EK-CER által nagyobb próbatesteken végzett eredményekkel. Az esetleges eltérések okát feltárják, és ezután indul meg a sugárkárosodott STRUMAT-LTO próbatestek maradványainak a feldolgozása kis próbatestekké és vizsgálatuk. A munka megalapozza a kis próbatestek alkalmazását más iparágakban is, ahol kevés az archív anyag a berendezések biztonságának a vizsgálatára.

A projekt során a résztvevők a lényeges eredményeket közlésezzik és nyári iskolákban is ismertetik elősegítve ezzel a szakmabeliek továbbképzését.



8. ábra: Mini CT próbatestek kivágása 5*10*55 mm-es V bemetszésű (fél Charpy) próbatest maradványából



9. ábra: A STRUMAT-LTO projekt fő célkitűzései célkitűzései [14]

A projekt jelenlegi helyzete

A projekt várható eredményeit foglalja össze a 9. ábra. A STRUMAT-LTO projekt jelenleg a futamideje felénél jár, amely során a résztvevő intézetek kidolgozták a munkacsomagokra vonatkozó részletes kísérleti terveket, megtörtént a radioaktív próbatestek kiszállítása Pettenből a résztvevőkhöz, és elindult a vizsgálati program szerinti munka. Az NRG elvégezte és értékelte a besugárzott anyagok szakítóvizsgálatait, számos metallográfiai vizsgálat elkészült, a résztvevő intézetek a minták törésmechanikai vizsgálatait elkezdték. Az első részeredmények már rendelkezésre állnak [13], de még sok vizsgálat van hátra, és csak ezután következhet az eredmények közös értékelése.

További információk a honlapon:

<https://strumat-lto.eu/>

Gillemot Ferenc,
Centre for Energy Research (EK)

Horváth Ákos,
Centre for Energy Research (EK)

Murthy Kolluri
Nuclear Research and Consultancy Group (NRG)

Köszönetnyilvánítás

A projektben közölt kutatás a STRUMAT-LTO projekt keretében valósul meg. Ez a projekt az Euratom 2019–2020-as kutatási és képzési programjától kap támogatást a n° 945272 sz. keretmegállapodás alapján.

Acknowledgments

This project has received funding from the Euratom research and training programme 2019-2020 under grant agreement No 945272. The content of this newsletter reflects only the author's view. The European Commission is not responsible for any use that may be made of the information it contains.

Irodalomjegyzék

- [1] IAEA CRP 3, contract 8251/RB, titled: "Fracture Mechanics Analysis for Coordinated Research Programme on Optimizing of Reactor Pressure Vessel Surveillance Programmes and Their Analyses"
- [2] Kryukov A., Erak D., Debarberis L., Sevini F., Acosta B.: Extended analysis of VVER-1000 surveillance data, Int. J. Press. Vessel. Pip. 79 (2002) 661-664.
- [3] Gerard, R.: Linear embrittlement behaviour of low Cu steels at high fluence. IGRDM-17, Les Embiez, 19-24/5/2013.
- [4] IAEA TECDOC-1441. Effects of Neutron irradiation embrittlement of light water reactor pressure vessel steels ISBN 92-0-103305-2, ISSN 1011-4289, Vienna, 2005
- [5] Altstadt, E.: Treatment of long term irradiation embrittlement effects in RPV safety assessment. Final summary report, LONGLIFE D1.9 2014.
- [6] F. Bergner, F. Gillemot, M. Hernandez-Mayoral, M. Serrano, G. Torok, A. Ulbricht and E. Altstadt, "Contributions of Cu-rich clusters, dislocation loops and nanovoids to the irradiation-induced hardening of Cu-bearing low-Ni reactor pressure vessel steels," Journal of Nuclear Materials, vol. 461, pp. 37-44, 2015
- [7] Odette, G. R., Radiation induced microstructural evolution in reactor pressure vessel steels in I.M. Robertson, L.E. Rehn, S.J. Zinkle, W.J. Phythian (Eds.), Materials Research Society Symposium Proceedings, Boston, MRS, 1995, pp. 137-148.
- [8] Odette, G. R. and Lucas, G.: Embrittlement of Nuclear Reactor Pressure Vessels. JOM, vol. 7, no. 53, pp. 18-22, 2001.
- [9] Eason, E. D., Odette, G. R., Nanstad, R. K. and T. A. Yamamoto, "Physically based correlation of irradiation-induced transition temperature shifts for RPV steels. ORNL/TM2006/530; ORNL; 2006
- [10] Hein, H.: Position paper on RPV irradiation embrittlement issues based on the outcome of the EURATOM FP7 project LONGLIFE. 23rd Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology, Manchester, United Kingdom, 2015
- [11] Treatment of long term irradiation embrittlement effects in RPV safety assessment. GAN:249360. Final report on neutron radiation induced microstructure of RPV materials for long term operation
- [12] Server, W. L., Hardin, T. C., Hall, J. B. and Nanstad, R. K.: "U.S. High Fluence Power Reactor Surveillance Data—Past and Future," J. Pressure Vessel Technol., vol. 2, no. 136, p. 021603, 2014.
- [13] Laot, M., Naziris, K., Bakker, T., D'Agata, E., Martin, O. and Kolluri, M.: Effectiveness of Thermal Annealing in Recovery of Tensile Properties of Compositionally Tailored PWR Model Steels irradiated in LYRA-10. Metals 2022, 12, 904. <https://doi.org/10.3390/met12060904>.
- [14] STRUctural MATerials research for safe Long Term Operation of LWR NPPs (STRUMAT) H2020 project, <https://strumat-lto.eu/>