

# SVĚDEČNÝ PROGRAM POKRYTÍ JADERNÉHO PALIVA JAKO DRUHÉ BARIÉRY PROTI ÚNIKU ŠTĚPNÝCH LÁTEK DO ŽIVOTNÍHO PROSTŘEDÍ

## SURVEILLANCE PROGRAM OF NUCLEAR FUEL CLADDINGS AS A SECOND BARRIER AGAINST FISSION PRODUCTS RELEASE INTO THE ENVIRONMENT

Josef Běláč<sup>a)</sup>, Stanislav Linhart<sup>a)</sup>, Jana Matoušková<sup>a, b)</sup>, Radomír Řeháček<sup>a)</sup>, Vladislav Starý<sup>a)</sup> a Martin Ševeček<sup>a, b)</sup>

<sup>a)</sup> ALVEL, a.s., Brno

<sup>b)</sup> KJR FJFI ČVUT, Praha

### Abstrakt

Zirkoniové slitiny používané jako materiál pokrytí jaderného paliva tvoří po vlastních palivových tabletách druhou fyzickou bariéru ochrany do hloubky proti úniku radioaktivních látek. Z pohledu jaderné bezpečnosti je klíčové znát a předvídat chování těchto materiálů nejen v podmínkách normálního provozu jaderného paliva v aktivní zóně reaktoru a případných havarijních stavech, ale i následně při jeho dlouhodobém skladování v bazénech vyhořelého paliva či suchých kontejnerech po dobu dalších minimálně několika desítek let. Společnost ALVEL ve spolupráci s dalšími českými organizacemi (ŠKODA JS, ÚJV Řež a Centrum výzkumu Řež) navrhla, rozpracovala a v současné době i realizuje pilotní svědečný program pokrytí jaderného paliva, jako analogii svědečného programu materiálů tělesa tlakové nádoby reaktoru. Významná část tohoto pilotního projektu je realizována ve spolupráci s JE Temelín a dalšími českými organizacemi.

Program umožňuje nejen komplexní ověření charakteristik materiálů palivového pokrytí v současnosti používaných, ale také získání dat potřebných pro podporu kvalifikace inovovaných slitin, určených pro budoucí průmyslové nasazení. Pilotní svědečný program je realizován na materiálech, které byly od roku 2014 ozařovány v aktivní zóně prvního bloku JE Temelín. V příspěvku jsou shrnuty základní charakteristiky navrženého svědečného programu, aktuální stav jeho pilotní realizace a předpokládané výstupy.

### Abstract

Zirconium-based alloys used as nuclear fuel cladding materials represent the second barrier of the defence-in-depth protection against fission products release. From the point of view of nuclear safety, it is crucial to understand and be able to predict the cladding behaviour not only during its normal operation or accident conditions in the reactor core, but also during the long-term storage of the spent fuel in the spent fuel pools or dry storage casks. ALVEL has in cooperation with other Czech companies (SKODA JS, UJV Rez, and Research Centre Rez) proposed, developed, and is currently implementing the pilot Nuclear Fuel Cladding Surveillance Program (NFCSP), as an analogy to the surveillance program of a reactor vessel. Significant part of this project is implemented by ALVEL in cooperation with the Temelin NPP and other Czech organizations.

The proposed program allows not only the complex verification of the main characteristics of the fuel cladding materials in use, but also to obtain data necessary to support qualification of innovative materials (licensing) intended for industrial implementation in the future. The pilot program is being implemented on materials irradiated in the reactor core of the Temelin NPP, Unit 1 since 2014. This paper presents summary of basic characteristics of the proposed NFSCP, status of its implementation, schedule and expected outputs.

## Úvod

Je široce známo, že zirkoniové slitiny se používají jako povlakový materiál jaderného paliva již několik desítek let. Z pohledu jaderné bezpečnosti je klíčové co nejlépe znát a předvídat chování těchto materiálů jak v provozních a případných havarijních podmínkách, tak i během dlouhodobého skladování (několik desítek let) již použitého paliva v bazénech či suchých kontejnerech. Tradičně se provádí zkoumání většiny charakteristik ozářeného pokrytí spolu s ozářeným palivem, což je proces, který je možno realizovat pouze v horkých komorách s odpovídající certifikací, a tedy velmi nákladný. Navíc takových zařízení je ve světě jen velmi omezený počet. Společnost ALVEL na základě zkušeností získaných v rámci projektů MCA [1] realizovaného pro Výzkumný institut Akademika Bočvara (VNIINM) v Moskvě, projektu OP-PIK programu Aplikace [2], a dalších projektů realizovaných pro ČEZ, a. s. navrhl, rozpracoval a v současné době realizuje v pilotní podobě svědečný program pokrytí jaderného paliva, jako analogii svědečného programu materiálů tělesa tlakové nádoby reaktoru. Vzhledem k tomu, že program je realizován na svědečném materiálu bez obsahu jaderného paliva (tedy neobsahuje štěpný materiál ani produkty štěpení) je možné jej realizovat i v Česku, kde nejsou horké komory kvalifikované pro práci s jaderným materiálem, a to mnohem laciněji. V podobné situaci se nachází i řada jiných zemí, provozujících jaderné reaktory.

### **Co je cílem svědečného programu?**

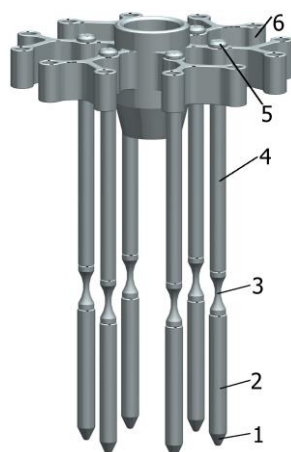
Získat relevantní informace o materiálových vlastnostech a charakteristikách palivového pokrytí, které budou odrážet reálné provozní podmínky konkrétního jaderného reaktoru (neutronové spektrum, chemický režim chladiva primárního okruhu, provozní teploty). Tyto informace pak mohou být využity jednak ke zpřesnění predikce chování paliva v průběhu provozu reaktoru, ale především k lepší charakterizaci stavu palivového pokrytí po vyvezení jaderného paliva z aktivní zóny pro jeho dlouhodobé skladování jak v bazénech, tak i suchých kontejnerech v meziskladu vyhořelého paliva, které trvá desítky let a významně ovlivňuje následnou manipulovatelnost paliva před jeho transportem pro finální uložení či případné přepracování.

### **Jaké svědečné vzorky ozařovat a kde?**

Na základě zkušeností získaných při realizaci projektu Materiálových klastrů (MCA) [1] navrhuje využít pro svědečný program analogickou konstrukci. Základní sada svědečných vzorků by byla tvořena třemi až šesti materiálovými klastry, na nichž by byly zavěšeny ampule s materiálovými vzorky vyrobené z povlakových trubek pocházejících ze stejné výrobní šarže, jako pokrytí paliva dodávaného dodavatelem. (V případě kvalifikace nové nebo modifikované slitiny by pak byla část ampulí vyrobena z referenčního a část z nového materiálu).

Uvnitř ampulí by pak v inertním prostředí (helium) byly umístěny kapsle s fragmenty povlakových trubek a případně dalších konstrukčních částí palivového souboru (vodící trubky, distanční mřížky apod.) pro zjištění radiačního růstu daného materiálu v reálném neutronovém spektru konkrétní aktivní zóny. Součástí obsahu některých ampulí by byly i kapsle s monitory fluence.

Schéma MCA je uvedeno na obr. 1 a v tab. 1 jsou uvedeny jeho základní rozměry.



Obr. 1: Schéma MCA ozařovaného na JE (není v měřítku). 1 – Koncovka ampule; 2 – Ampule s materiálovými vzorky; 3 – Zúžený krček určený k oddělení ozářených ampulí; 4 – Nosné prsty (tyčky); 5 – Šrouby; 6 – Hlavice MCA

Tab. 1: Základní rozměry MCA

Parametr	Hodnota
Počet ampulí v každém MCA	6 ks
Délka ampule (oddělovaná část)	~ 300 mm
Vnější průměr ampule	Jako u paliva
Materiál vnější ampule	Jako u paliva
Hmotnost MCA	~8 kg
Doba ozařování MCA v AZ	1-6 let

Umístění klastrů v AZ v průběhu ozařování by bylo stanoveno na základě projektu překládek a se zohledněním omezení daných konfigurací regulačních orgánů a vnitroreaktorové instrumentace. V rámci realizace projektu MCA v letech 2014-2019 bylo prokázáno, že klastry MCA mají zanedbatelný a prakticky nezjistitelný vliv na rozložení výkonu v AZ za provozu.

### Plán a rozsah analýz

Hlavním cílem svědečného programu je ověření charakteristik materiálů v současnosti používaného palivového pokrytí a svarového spoje, mezi které patří mechanické vlastnosti (mez kluzu, mez pevnosti, creepové vlastnosti), radiační růst a vývoj mikrostruktury v závislosti na stupni ozáření, vlivu chemického režimu chladiva primárního okruhu a provozní teploty.

Přehled testů a analýz prováděných v rámci svědečného programu je uveden v tab. 2, kde je rovněž uvedeno, na jakém materiálu by byl daný typ zkoušek / testů prováděn [3, 4].

Tab. 2: Přehled prováděných analýz v rámci „svědečného programu“

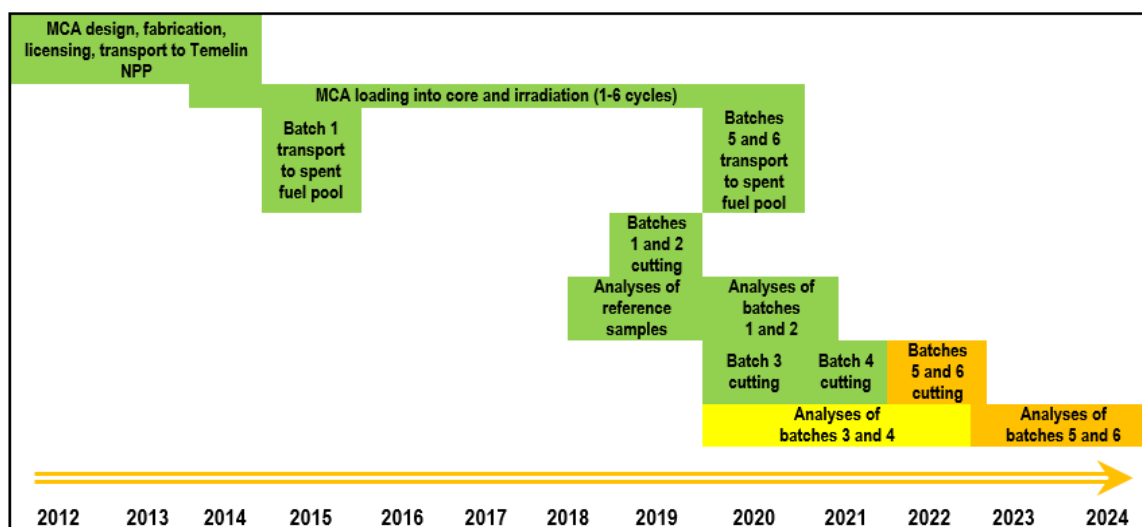
Typ analýz	Specifikace analýz	Materiál
Měření rozměrů vzorků / <i>profilometrie ampulí</i>	Měření radiačního růstu <i>In-ward creep</i>	referenční vzorky, kupóny, <i>ampule</i>
Metalografická analýza	Mikrostruktura, orientace zrn, mikrotvrdość, morfologie oxidické vrstvy	referenční vzorky, kupóny, ampule
TEM/SEM analýzy	SEM/EBSD: Velikost zrn, stupeň rekystalizace,	referenční vzorky, kupóny, ampule, <i>svarový spoj</i>

	SEM/EBSD: fázová analýza, fázová struktura a textura, dislokace <a> a <c> typu, radiačně – indukované precipitáty sekundární fáze, stupeň rekrytalizace, detailní mikrostrukturní analýza	
Mechanické zkoušky	Tahové zkoušky na AX, TR a SPEC tělesech minimálně dvě rychlosti deformace Creep / relaxace Nanoindentace	ampule <i>speciální vzorky</i>  teplota do 400 °C
Stanovení fluence neutronů	Vzorky: Fe-54, Cu-63, Nb Vyhodnocení aktivit E > 0,1 MeV	monitory Fluence
<i>Stanovení obsahu vodíku</i>	<i>Neutronová radiografie/Exhalograf – vysokoteplotní vakuová extrakce</i>	<i>ampule</i>
<i>Únavové testy</i>	<i>Cyklické zkoušky na tělesech tvaru C</i>	<i>ampule</i> <i>teplota do 400 °C</i>
<i>Reorientace hydridů</i>	<i>Změna orientace hydridů v pokrytí při skladování a přechodových procesech s ním spojených</i>	<i>ampule</i>

*Kurzívou jsou vyznačeny položky, které zatím neprošly pilotním ověřením.*

## Dosavadní zkušenosti a výstupy projektu

Samotný pilotní projekt se začal rodit v roce 2012 a jeho plánované ukončení je v roce 2024. V současné době je ukončeno ozařování všech 6 MCA z projektu [1]. U prvních dvou sad vzorků a ampulí je ukončen plánovaný rozsah testů a analýz a probíhají analýzy 3. a 4. sady; na jaro 2022 a 2023 je plánován stříh sady č. 5, respektive č. 6. Na obr. 2 [5] je uvedena časová osa vývoje celého projektu.



Obr. 2: Časová osa realizace projektu MCA

Metodiky provádění testů a analýz pro navrhovaný svědečný program palivového pokrytí byly vyvinuty a následně ověřeny na referenčním materiálu [6, 7]. Výsledky ukázaly, že je možné provádět detailní analýzu materiálových vlastností ozářeného materiálu, stejně tak i precizní a důkladné srovnání s referenčním materiálem [1].

Oddělování ozářených ampulí je prováděno pomocí zařízení POMA, které bylo vyvinuto a vyrobeno pro projekt MCA [5] (obr. 3 a obr. 4) ve spolupráci se ŠKODA JS, a probíhá v rámci odstávky reaktoru v šachtě transportního kontejneru. Odstrížené materiálové ampule jsou přemístěny ve speciální schránce do kontejneru TKS-1000 a převezeny do horkých komor ÚJV Řež a CVŘ (viz obr. 5), kde probíhá jejich rozřezání a vytrídění, extrakce kapslí

s materiálovými vzorky a příprava samotných vzorků k analýzám. Na obr. 6 a obr. 7 jsou znázorněny kapsle po jejich vytržení z odstřížených ampulí a samotné materiálové vzorky (kupóny).



Obr. 3: Zařízení POMA



Obr. 4: Střih materiálových vzorků



Obr. 5: Transport kontejneru TKS-1000 na měřicí pracoviště



Obr. 6: Kapsle s materiálovými vzorky a monitory fluence



Obr. 7: Materiálové vzorky (kupóny)

## Shrnutí a závěr

Společnost ALVEL na základě zkušeností s realizací projektů ve spolupráci s Výzkumným institutem Akademika Bočvara (VNIINM) v Moskvě, dodavatelem jaderného paliva TVEL, společností ČEZ a Skupinou ÚJV navrhl, rozpracoval a v současné době realizuje pilotní část „svědečného programu pokrytí jaderného paliva“ (SP [5]), jako analogii svědečného programu materiálů tělesa tlakové nádoby reaktoru. Tento projekt je plně realizovatelný s využitím infrastruktury dostupné v České republice. Kromě ověření charakteristik materiálů palivového pokrytí v současnosti používaných, je takovýto program použitelný rovněž ke kvalifikaci pokročilých inovovaných povlakových slitin, určených pro budoucí průmyslové aplikace. Dalším potenciálem využití získaných zkušeností a analogie tohoto programu je možnost zkoumání změn vlastností konstrukčních materiálů reaktoru (vnitroreaktorových částí) v průběhu jejich života, včetně jejich kvalifikace pro případné nové reaktory.

V rámci realizace pilotního svědečného programu vzniká i databáze materiálových vlastností TIRCLAD [8, 9]. V současné době jsou ukončeny analýzy prvních dvou sad MCA a probíhají analýzy 3. a 4. sady. V letech 2022-2023 je naplánován stříh a zpracování klastru MCA č. 5 a č. 6.

Pro období 2022 až 2028 je společností ALVEL navrhována realizace druhé fáze projektu ozařování MCA s pracovním názvem MCA-II. Cílem tohoto projektu je ověření konceptů ATF pokrytí paliva s coatingem na bázi chromu a kvalifikace slitiny E110M pro nasazení do reaktorů skupiny ČEZ. V současné době probíhají přípravná jednání mezi potenciálními účastníky tohoto projektu stran výběru a výroby materiálů, způsobů financování a realizace celého takto náročného, ale velmi přínosného projektu.

## Reference

- [1] Novikov, V., Markelov, V., Shevyakov, A., Gusev, A., Běláč, J., Linhart, S., Řeháček, R., Ševeček, M., Starý, V., Shishkin, A., Grekhov, M., Pešek, P., Fencel, Z., Halodová, P. (2021): A study of irradiation-induced growth of advanced zirconium alloys after irradiation in the VVER-1000 reactor core of Temelin NPP, *Top Fuel 2021*, European Nuclear Society, Santander (Spain).
- [2] MPOČR (2017): *Projekt OP PIK – výzva APLIKACE IV – „Výzkum a vývoj technologie povrchových úprav povlakových trubek palivových elementů jaderných reaktorů pro zvýšení jejich odolnosti v provozních i havarijních podmínkách a při dlouhodobému skladování“*. Registrační číslo projektu: CZ.01.1.02/0.0/0.0/17\_107/0012555, 2017-2020.
- [3] Malá, M., Zimina, M., Halodová, P., Ševeček, M., Linhart, S., Běláč, J., Srba, O.: Experimentální podpora svědečného programu pokrytí jaderného paliva. *16. konference Životnost komponent energetických zařízení*, Západočeská univerzita v Plzni, Srní, str. 61-66. ISBN 978-80-261-1045-3
- [4] Gávelová, P., Halodová, P., Zháňal, P., Jarugula, R., Zimina, M., Ševeček, M., Rosnecký V.: Výzkumný program ALVEL a CVŘ pro komplexní testování a analýzy mikrostruktury pokrytí paliva Zr1Nb. *16. konference Životnost komponent energetických zařízení*, Západočeská univerzita v Plzni, Srní, str. 67-73. ISBN 978-80-261-1045-3
- [5] Linhart, S., Ševeček, M., Běláč, J., Starý, V. (2019): Material Research of Zirconium-based Alloys Irradiated at Temelin NPP Reactor. *13th International Conference on WWER Fuel Performance, Modelling and Experimental Support*. Institute for Nuclear Research and Nuclear Energy, Nesebar (Bulgaria).
- [6] Pešek, P., Ernestová, M., Bublíková, P. (2017): *Metodiky pro provádění měření a analýz na ozářených vzorcích – Nedestruktivní a destruktivní analýza materiálových vzorků: měření geometrie vzorků, výsledky metalografických zkoušek, stanovení mikrotvrdosti vzorků a elektronová mikroskopie (TEM)*. Zpráva ÚJV DITI 2300/91, ÚJV Řež, a. s., Husinec – Řež.
- [7] Pešek, P., Ernestová, M. (2017): *Nedestruktivní a destruktivní analýza referenčních materiálových vzorků – Měření geometrie vzorků, výsledky metalografických zkoušek, stanovení mikrotvrdosti vzorků*. Zpráva DITI 2300/90, ÚJV Řež, a. s., Husinec – Řež.
- [8] Ševeček, M., Běláč, J., Linhart, S., Řeháček, R., Malá, M., Srba, O. (2019): Introduction of the Temelin Irradiated Cladding Project – TIRCLAD 1. *Global/Top Fuel 2019*. American Nuclear Society, Seattle (USA).
- [9] Linhart, S., Běláč, J., Ševeček, M., Řeháček, R., Starý, V. (2021): Temelin Irradiated Cladding Project – TIRCLAD. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering (MSE)*.