

ROTURA DIFERIDA INDUCIDA POR HIDRUROS EN TUBOS DE PRESIÓN DE ZR-2,5%NB

Cirimello P., Haddad R., Domizzi G.
Comisión Nacional de Energía Atómica

Resumen

Durante su vida en servicio los tubos de presión de centrales tipo CANDU pueden sufrir crecimiento de fisuras por el proceso de Rotura Diferida Inducida por Hidruros (RDIH). Para cada valor de concentración de H₂ más D₂ existe una temperatura crítica (T_c) por debajo de la cual puede producirse RDIH. En este trabajo se evaluó dicha temperatura en probetas tipo CCT, extraídas de tubo de presión de Zr-2,5%Nb, hidruradas hasta 72, 59 y 40 ppm. Se encontró que esas temperaturas son superiores a la temperatura de precipitación correspondiente a cada concentración. También se midió la velocidad de propagación de fisura en la dirección axial. Disminuyendo la temperatura a partir de la T_c se observa un rápido incremento de la velocidad de propagación hasta alcanzar un máximo, próximo a la temperatura de precipitación. Para temperaturas inferiores, en presencia de hidruros precipitados, la velocidad decrece con la temperatura siguiendo una ley tipo Arrhenius: $V_p = A \exp(-Q/RT)$ con una energía de activación $Q = 66$ KJ/mol K.

Delayed hydride cracking in Zr-2.5%wtNb pressure tubes.

Abstract

During service, pressure tubes of CANDU Nuclear Power Reactor are prone to suffer crack growth by delayed hydride cracking (DHC). For a given H₂ plus D₂ concentration there is a critical temperature (T_c) below which DHC may occur. In this work, T_c was measured for CCT specimens cut from Zr-2.5Wt%Nb pressure tubes. Hydrogen was added to the specimens to get concentrations of 40, 59 and 72 ppm. It was found that T_c is higher than the corresponding precipitation temperature. The axial crack velocity (V_p) was also measured. Decreasing temperature from T_c makes V_p increase until a maximum is attained at a temperature close to precipitation temperature. At lower temperatures, in the presence of precipitated hydrides, decreasing temperature implies lower velocities, following an Arrhenius law: $V_p = A \exp(-Q/RT)$, with an activation energy $Q = 66$ KJ/mol K.

Introducción

Los tubos de presión (TP) de las centrales tipo CANDU están elaborados con Zr-2,5%Nb y poseen inicialmente baja concentración de hidrógeno (< 5 ppm en peso). Sin embargo durante la vida en servicio puede ingresar deuterio. En materiales formadores de hidruros, en presencia de fisuras y tensiones (aplicadas o residuales) el incremento en el contenido de hidrógeno puede originar un tipo de falla conocido como rotura diferida inducida por hidruros (RDIH). Este fenómeno consiste en: 1) producción de un flujo de hidrógeno hacia la punta de la fisura, impulsado por el gradiente de tensiones existente en la misma. 2)

Precipitación de hidruros en la punta de la fisura. 3) La rotura de los hidruros precipitados en la punta de la fisura produce un avance de la misma. 4) Se repite el proceso a partir de 1) lo que determina el avance de la fisura en pasos.

En Centrales de tipo CANDU existen antecedentes de rotura catastrófica de tubos de presión originada en este tipo de fenómeno. Para evitar fallas futuras, un criterio aplicado es el de pérdida antes de la fractura (leak before break). Las fisuras pasantes a través del espesor pueden ser detectadas por detectores de humedad. A partir de ese momento, el tiempo disponible antes de que la fisura alcance tamaño crítico en la dirección axial del tubo es función de la velocidad de propagación de fisura en esa dirección (V_p). De ahí el interés tecnológico en medir los valores de V_p y su dependencia con la temperatura.

Por otro lado, contrariamente a lo que se creía en los primeros trabajos sobre el tema, para que se produzca RDIH no es necesaria la presencia de hidruros precipitados en el volumen del material. Si se llega a la temperatura de ensayo por enfriamiento, la temperatura más alta en la que se produce propagación de fisura se conoce como temperatura crítica (T_C). Esta temperatura depende de la concentración de hidrógeno del material.

El objetivo de este trabajo es determinar los valores de T_C y la velocidad de propagación para distintas temperaturas, inferiores a T_C , en muestras con distintos contenidos de hidrógeno.

Trabajo Experimental

Se realizó la hidruración de secciones de TP, para obtener probetas con diferentes contenidos de hidrógeno. El proceso de hidruración consistió en carga electroquímica en solución de H_2SO_4 a $60^\circ C$. Posteriormente se realizaron tratamientos térmicos para obtener distribuciones uniformes de hidruros.

Se prepararon probetas compactas curvas (CCT) con entalla mecánica y prefisura por fatiga en la dirección axial del TP (Fig.1).

Del material restante se extrajeron muestras para análisis químico y metalografía.

Durante el ensayo de rotura diferida las probetas se calentaron hasta una temperatura que asegura la total solubilización de hidruros ($T_s = 330^\circ C - 430^\circ C$), se mantuvieron a esa temperatura durante una hora, luego se enfriaron hasta temperatura de ensayo. Después de 30 minutos se aplicó una carga constante. El inicio y propagación de la fisura por RDIH se monitoreó mediante la técnica de caída de potencial (DCPD).

Finalizado el ensayo de RDIH se rompió la probeta por fatiga a temperatura ambiente. La velocidad de propagación (V_p) se determinó mediante el tiempo de propagación (obtenido del registro de DCPD) y la longitud de fisura determinada por observación de la superficie de fractura.

Para determinar T_C se disminuyó la temperatura de ensayo en saltos de $2^\circ C$ hasta detectar propagación en el registro de DCPD (Fig. 2).

La medición de velocidad de propagación en función de la temperatura, se realizó disminuyendo la temperatura desde T_C en escalones de $10^\circ C - 20^\circ C$, permitiendo la propagación en cada uno de ellos. A fin de diferenciar, sobre la superficie de fractura, las zonas propagadas a diferentes temperaturas se marcó el final de cada etapa aplicando una pequeña sobrecarga.

Resultados

Los valores de T_C medidos para las probetas con 72, 59 y 40 ppm se muestran en la Fig. 3. En estos ensayos la temperatura de solubilización fue 330°C.

Se comprobó que en todos los casos la temperatura a la cual inicia la propagación por RDIH (T_C) es superior a la temperatura de precipitación de hidruros correspondiente a la concentración de la probeta, es decir superior a la temperatura (T_p) correspondiente a la solubilidad sólida terminal por enfriamiento (SSTP). Esto muestra que el crecimiento de la fisura es factible aunque no existan hidruros precipitados en el volumen de la muestra.

En la figura se muestran dos curvas de SSTP, medidas por Pan et al [1], una de ellas correspondiente al enfriamiento desde alta temperatura (420°-450°) y la otra desde más baja temperatura (220-368°). Cuando la solubilización se realiza a temperaturas bajas, los hidruros precipitan en los sitios de la matriz que fueron deformados plásticamente por la precipitación previa (efecto memoria). Solubilizando a temperaturas superiores a 420°C se elimina esa deformación y es necesario un mayor sobreenfriamiento para generar nuevos núcleos.

Shi et al [2] realizaron mediciones similares de T_c : para cada concentración repitieron el ciclo mostrado en la Fig. 2 varias veces. Encontraron un aumento progresivo de T_c . La diferencia obtenida entre el primer y segundo ciclo la atribuyeron a las distintas condiciones en la punta de la fisura cuando ésta se generó por fatiga o por RDIH y al mencionado efecto memoria que conllevaría una disminución en el enfriamiento necesario para producir la precipitación en la punta de la fisura y por consiguiente un aumento de la T_c . Si bien este argumento es válido para explicar el aumento de T_c registrado en el segundo ciclo (cuando ya hubo precipitación por RDIH) respecto al primero (iniciado a partir de una fisura de fatiga), no explica los incrementos medidos en los ciclos posteriores. Para verificar si el efecto “memoria” modifica la T_c , se realizaron ciclos solubilizando a 430° y 330°. A la temperatura más alta se esperaba un relevado de las tensiones producidas por el hidruro precipitado en la punta de la fisura y un aumento de la T_c . Sin embargo, no se obtuvieron diferencias en los valores medidos. Posiblemente el hidruro en la punta de la fisura estuviera completamente roto al finalizar un ciclo de RDIH. Otra alternativa es que los hidruros crecidos en la punta de la fisura, en un plano perpendicular a la tensión aplicada, no deformen plásticamente la matriz en la misma medida que los hidruros precipitados en el volumen, para los cuales sí se ha corroborado el efecto “memoria”[1, 3].

En la fig.3 se observa que los valores de T_c medidos están en acuerdo con la tendencia encontrada por Shi et al [2] para el primer ciclo.

En la fig. 4 se grafican los valores de velocidad de propagación en función de la inversa de la temperatura para las probetas de 59 y 40 ppm. Se observa que, salvo el valor medido a T_C , los valores medidos a temperaturas inferiores se pueden ajustar por una curva tipo Arrhenius, con una energía de activación $Q = 66$ kJ/mol K, valor comparable al de trabajos anteriores ($Q = 65,5$ kJ/mol.K [4], $Q = 71,5$ kJ/mol.K [5]).

Esta ley de variación de la velocidad con la temperatura es independiente de la concentración de hidrógeno del material. A estas temperaturas, inferiores a T_p para cada concentración, existen hidruros precipitados en todo el volumen.

En la figura 5 se muestra una superficie de fractura, en la que se distinguen la zona de prefisuración, las etapas de propagación por rotura diferida producidas en los distintos escalones de temperatura y por último la rotura llevada a cabo a temperatura ambiente.

Conclusiones

- Se comprobó que, cuando se llega a la temperatura de ensayo desde temperaturas superiores, se puede tener propagación aunque no haya hidruros precipitados en el volumen. Para evitar la propagación la temperatura de ensayo debe ser mayor a los valores de T_C medidos, para cada concentración.
- Los valores de velocidad medidos para temperaturas inferiores a T_C siguen una distribución tipo Arrhenius con la inversa de la temperatura y son independientes de la concentración de hidrógeno del material.
- A T_C , y a temperaturas próximas inferiores a ésta, la velocidad de propagación por RDIH es menor que en presencia de hidruros precipitados en el volumen.
- Con la técnica de DCPD se pudieron determinar valores de T_C y velocidad de propagación (en particular puede determinarse la máxima velocidad), a distintas temperaturas, empleando una única probeta para cada valor de concentración. Esto representa una ventaja, en cuanto al ahorro de material, que puede ser significativa cuando se ensaya material proveniente de componentes irradiados.
- No se comprobó incidencia del efecto memoria en la propagación a T_C , ni tampoco diferencias entre la propagación hecha a partir de una prefisura por fatiga y a partir de una de RDIH.

Referencias

-
- 1 Z.I. Pan, I.G. Ritchie y M.P. Puls, J. of Nuclear Materials 228 (1996) 227.
 - 2 S.-Q. Shi, G.K. Shek, M.P. Puls, J. of Nuclear Materials 218 (1995) 189-201.
 3. D.J. Cameron y R.G. Duncan, J. of Nuclear Materials 68 (1977), 340.
 - 4 L.A Simpson y M.P. Puls, Metallurgical Transactions 10 A (1979), 1093.
 - 5 J.F. Ambler, ASTM STP 824, (1984), 653-674.

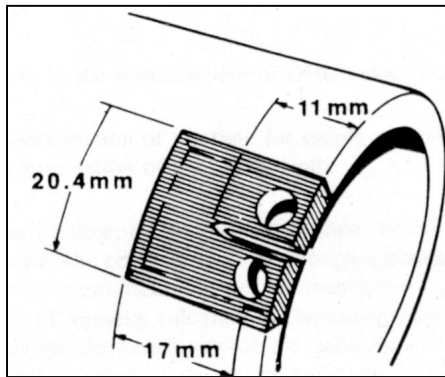


Fig. 1 Esquema de la probeta CCT extraída del tubo de presión.

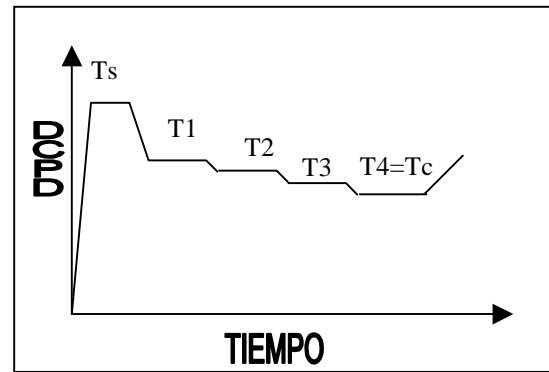


Fig 2 Esquema de un ciclo de ensayo de RDIH para determinar T_c

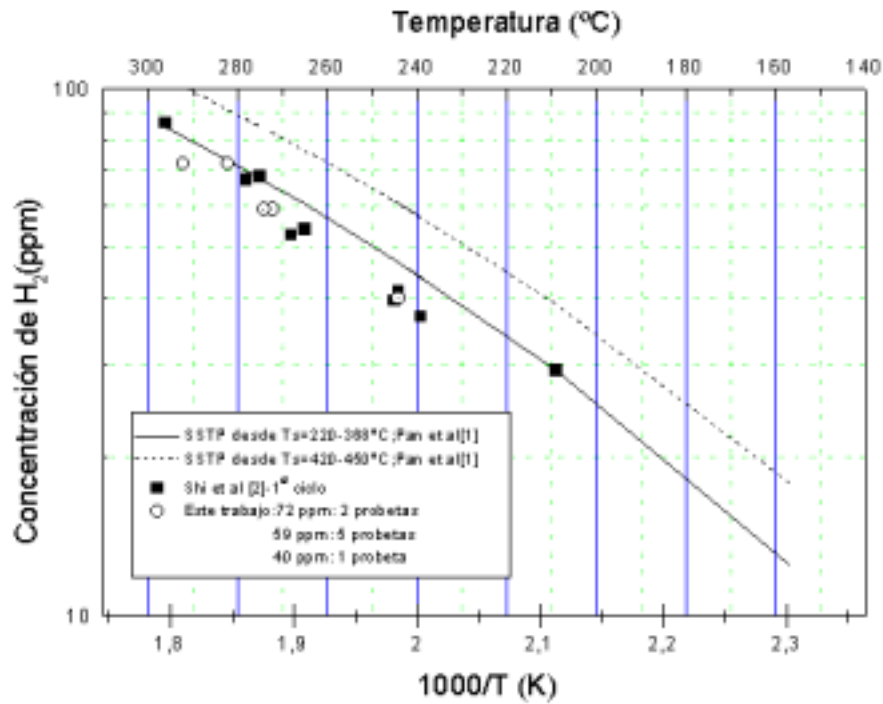


Fig 3 Valores medidos de T_c para probetas de 72, 59 y 40 ppm de hidrógeno. Comparación con valores obtenidos en otros trabajos y con respecto a las curvas de solubilidad sólida terminal.

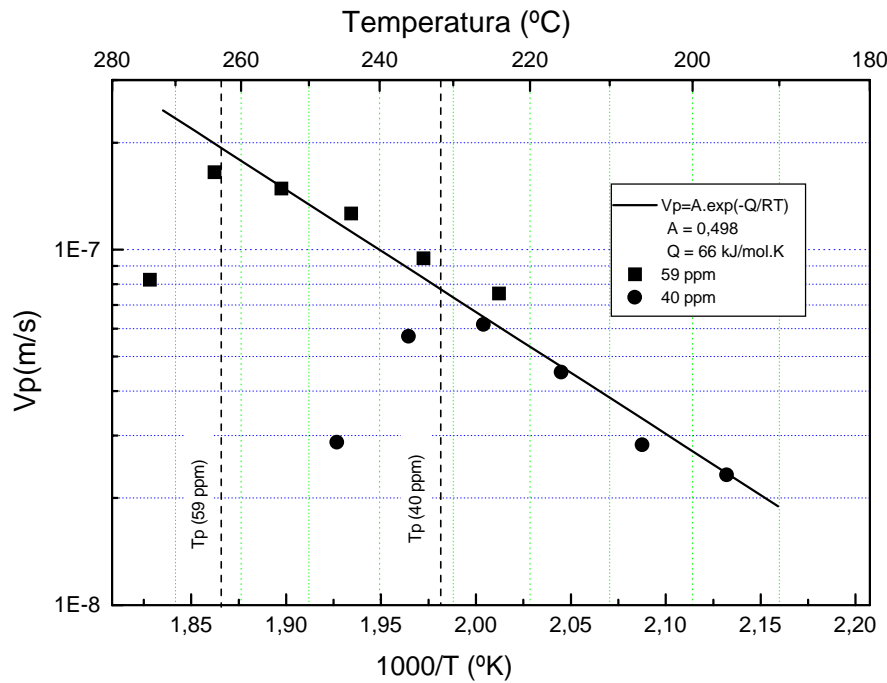


Fig. 4: Valores de velocidad de propagación medidos a distintas temperaturas, utilizando la técnica de DCPD. Muestras de 59 y 40 ppm de hidrógeno.

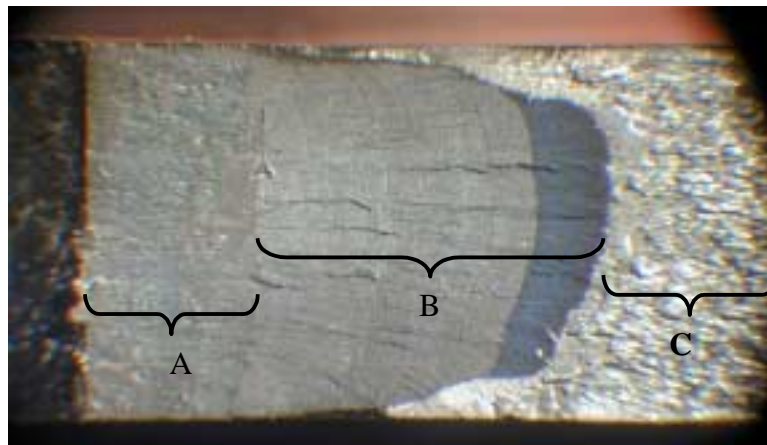


Fig. 5: Superficie de fractura donde se distingue la zona de prefisuración por fatiga (A), distintas etapas de crecimiento por RDIH (B) y rotura final a temperatura ambiente (C).