

ROTURA DIFERIDA INDUCIDA POR HIDRUROS EN TUBOS DE PRESIÓN DE Zr-2,5%Nb IRRADIADOS

Cirimello Pablo ⁽¹⁾, Coronel Pascual, Haddad Roberto, Lafont Claudio, Mizrahi Rafael.

Unidad de Actividad Materiales - Centro Atómico Constituyentes

Comisión Nacional de Energía Atómica

⁽¹⁾ Becario Instituto de Tecnología J.A. Sabato, CNEA-UNSAM.

Introducción

Los tubos de presión de las centrales CANDU están elaborados con la aleación Zirconio-2,5%Niobio trabajada en frío, y poseen inicialmente una baja concentración de hidrógeno (<10 ppm en peso). Sin embargo, durante su vida en servicio su contenido de hidrógeno equivalente (hidrógeno + deuterio) aumenta debido al ingreso de deuterio generado por la corrosión del material en el agua pesada del reactor. Esto incrementa la probabilidad de ocurrencia, en presencia de fisuras y bajo las tensiones actuantes, de un tipo de falla conocido como rotura diferida inducida por hidruros (RDIH) (en inglés “delayed hydride cracking”, DHC). Este fenómeno consiste en: 1) la migración de hidrógeno hacia la punta de una fisura; 2) la precipitación de hidruros en la punta de la fisura; 3) la rotura de los hidruros precipitados, provocando un avance de la fisura; y 4) la repetición de las etapas anteriores, lo que determina el progresivo crecimiento de la fisura. El proceso puede continuar hasta que la fisura alcance un tamaño crítico, estado en el cual el tubo puede sufrir una rotura inestable. Existen antecedentes de este tipo de falla en tubos de presión de centrales CANDU, y los requerimientos de seguridad incluyen la exigencia de que, ante la detección de una pérdida de refrigerante en los tubos de presión, el reactor pueda ser sacado de servicio en forma segura antes que la fisura alcance dicho tamaño crítico. Esto es conocido como criterio de Pérdida antes de Rotura (“Leak Before Break”). Para garantizar su cumplimiento, se requiere conocer la velocidad de propagación (V_p) de fisuras por RDIH en el material, la cual aumenta por efecto de la irradiación neutrónica. Por ello es esencial realizar mediciones de V_p en material irradiado (1).

El objetivo de este trabajo, realizado dentro de un Contrato Particular CNEA-NASA más amplio, fue la medición de velocidades de propagación de fisuras (V_p) en la dirección axial, en los tubos de presión correspondientes a los canales de combustible A-14 y L-12, sacados de servicio de la Central Nuclear Embalse en 1995, tras alrededor de 10 años de operación a plena potencia. Las mediciones se realizaron sobre probetas del tipo Curvas Compactas de 17 mm (CCT-17) extraídas de dichos tubos (2).

Trabajo Experimental

Se cortaron 13 probetas tipo CCT-17 de segmentos de los tubos irradiados B-102 (canal A-14, periférico) y B-298 (canal L-12, central) que habían sido transportados a la facilidad de Celdas Calientes del Centro Atómico Ezeiza. El material provenía de las zonas central, de entrada y de salida del refrigerante de ambos tubos, extrayéndose como mínimo dos probetas de cada tramo. Los datos de posición axial y condiciones de irradiación de los tramos ensayados se muestran en la Tabla I. También se cortaron 4 probetas de material no

irradiado (“off-cuts”) del tubo B-298. Todas las operaciones se realizaron bajo control radiológico en un laboratorio anexo a las Celdas Calientes.

Selección de las condiciones de ensayo

Para la realización de los ensayos se fijaron los siguientes requisitos:

- 1) Alcanzar una concentración de hidrógeno equivalente ($[HE]=[H]+1/2[D]$ (en peso)) idéntica en todas las probetas, y realizar todos los ensayos a la misma temperatura;
- 2) No superar la temperatura de irradiación (T_{irr}) en el ciclo térmico realizado durante el ensayo, a fin de no alterar la microestructura del material.

En consecuencia y basándose en la bibliografía existente se decidió cargar las probetas con hidrógeno de manera de obtener una $[HE] = 40$ ppm. El recocido de homogeneización necesario se realiza a 264°C , lo que no supera el valor más bajo de T_{irr} .

Además, dado que el valor máximo de V_p para una dada concentración de hidrógeno se logra a la temperatura T_p dada por la curva de equilibrio para precipitación de hidruros (TSSP) (3), se decidió realizar los ensayos a la T_p correspondiente a 30 ppm (211°C). En el ciclo térmico correspondiente se alcanza como máximo una temperatura de 265°C , que tampoco supera la T_{irr} . El hecho de que la $[HE]$ total sea de 40 ppm no afecta el resultado y permite asegurar que se dispone de la cantidad de hidrógeno necesaria. Por otro lado, 30 ppm es un valor de HE similar al esperable tras 30 años de operación en el reactor y esto implica que los ensayos se realizan en condiciones realistas y a la vez conservativas.

Hidruración

De acuerdo a lo planteado en el párrafo anterior, previamente a los ensayos de RDIH se realizó una carga controlada de hidrógeno a fin de obtener una concentración similar en todas las probetas, teniendo como objetivo un nivel de 40 ppm. La técnica de incorporación de hidrógeno se basó en un procedimiento electroquímico consistente en la deposición de una capa de hidruro de zirconio (por carga catódica en una solución de ácido sulfúrico 0,2 molar), seguido de un posterior tratamiento térmico. Este consistió en un recocido de homogeneización en aire durante 50 horas a 265°C . Esta temperatura corresponde a la solubilidad sólida terminal para la disolución (TSSD) correspondiente a una concentración de 40 ppm de hidrógeno en zirconio. Como excepción, dos probetas no irradiadas fueron homogeneizadas a 246°C durante 73 horas a fin de obtener una concentración de 30 ppm. Tras el tratamiento térmico las probetas fueron retiradas del horno y enfriadas en aire.

Ensayos de RDIH

Las probetas hidruradas fueron sometidas a un prefisurado por fatiga en una máquina universal de ensayos (MTS), similarmente a lo descrito en (3). La fisura por fatiga se extendió hasta una longitud de 1,7-2 mm. Los ensayos de RDIH se realizaron en una máquina de tracción uniaxial a carga constante. El dispositivo de tracción está compuesto por un sistema de palanca para aplicar la carga, un tren de carga, mordazas de sujeción de la probeta y un horno. El dispositivo está instrumentado con 2 termocuplas para medición de temperatura y cables para medir propagación de fisura por el método de Caída de Potencial (DCPD: Direct Current Potential Drop). El equipo incluye una fuente de corriente, un autotransformador regulable (Variac) para controlar la potencia del horno, y el sistema electrónico de adquisición de datos y de control de los dispositivos de potencia (Variac y fuente).

El método de DCPD consiste en mantener la circulación de una corriente constante (5 A en este caso) a través de la probeta durante el ensayo de tracción, monitoreándose la caída de potencial. Ésta es función de la resistencia de la probeta, que depende de la sección transversal remanente. Al crecer la fisura la sección transversal disminuye, la resistencia aumenta y esto se refleja en la medición de DCPD (3).

La carga aplicada fue calculada de manera tal que el factor de intensidad de tensiones en la punta de la fisura, K_I , fuera mayor que el valor umbral para la iniciación de RDIH, K_{IH} . Además K_I aumenta al crecer la fisura, y se requiere que durante el ensayo K_I se mantenga en un ámbito de valores en el cual V_p es independiente de K_I (4). En consecuencia se aplicó un valor inicial de K_I estimado entre 15-17 MPa m^{1/2}.

El procedimiento de ensayo consistió en lo siguiente:

1. Se elevó la temperatura de la probeta hasta un valor al que los hidruros están completamente solubilizados (T_{sol}).
2. Se mantuvo la temperatura en T_{sol} durante 1 hora.
3. Se disminuyó la temperatura hasta el valor al que se realiza el ensayo (T_{ens}); luego de media hora como mínimo a T_{ens} se aplicó la carga.
4. Se monitoreó la propagación de fisura a través del registro de DCPD, hasta que la fisura alcanzó una longitud estimada de 1 a 3 mm.
5. Finalizado el ensayo, la probeta se sometió a rotura por fatiga en la máquina MTS y se fotografió la superficie de fractura en un microscopio óptico.

En las superficies de fractura se distinguen nítidamente por aspecto y coloración distintas zonas: entalla, prefisura, propagación de fisura por RDIH, y fatiga y rotura dúctil final. La longitud de la zona de fisuración por RDIH se midió según el método de las 9 líneas (norma ASTM (5)). La velocidad de propagación V_p se calculó dividiendo dicha longitud por el tiempo de crecimiento de fisura obtenido del registro de DCPD vs. tiempo.

Resultados

Mediante la técnica descrita se midió la velocidad de fisuración por RDIH a 211°C para las 13 probetas irradiadas y las 4 provenientes de “off-cuts”. Como ejemplo, en la Figura 1 se muestra el gráfico de Caída de Potencial (DCPD) vs. tiempo obtenido para uno de los ensayos, junto con la evolución de la temperatura a fin de ilustrar el ciclo térmico. En la Figura 2 se observa la fotografía de la superficie de fractura de una probeta, junto con la tabla utilizada para el cálculo de la longitud de fisura, que incluye el tiempo de propagación leído en el gráfico de DCPD y la V_p calculada correspondiente. Los resultados obtenidos en todos los ensayos se muestran en la Tabla II.

Discusión

Los resultados muestran que la velocidad de propagación de RDIH depende del tubo en estudio, y para cada tubo varía con la posición axial. En consecuencia V_p depende de la fluencia neutrónica y de la temperatura de irradiación. En las Figuras 3 y 4 se grafica V_p en

función de la posición axial y de la fluencia neutrónica, respectivamente. En este último gráfico y a fluencia cero se incluyen los valores obtenidos para las probetas de “offcuts”. Se observa que para cada posición axial, V_p es mayor para el tubo del canal L-12, sometido a mayor fluencia neutrónica, que para el A-14. Además para cada tubo, V_p es más alta en la zona de entrada del refrigerante que en la de salida. Para la zona central, en el tubo A-14 V_p es similar a la de la zona de entrada, mientras que en el caso del L-12 V_p en dicha zona es aún mayor. Por otro lado, el material irradiado muestra un incremento de V_p en un factor de hasta 5 veces con respecto al no irradiado.

En la Figura 4 se incluyen rectas calculadas con una regresión lineal obtenida en el marco de un programa del CANDU Owners Group (COG) a partir del análisis de los resultados de 234 ensayos realizados sobre tubos de presión de las centrales Pickering 3-4 y Bruce 2 (6). Se observa que los presentes resultados están muy cercanos y por debajo de la línea promedio, salvo por los valores correspondientes a la zona central del tubo L-12, que de todos modos se ubican por debajo de la línea límite superior.

La Figura 5 muestra los presentes resultados volcados en un gráfico publicado por Sagat y col. (4) con datos provenientes de un gran número de ensayos. Aquí también se aprecia que los resultados de este trabajo son concordantes con los hallados en tubos de otras centrales CANDU estudiados previamente. Debe señalarse además que la fluencia máxima a que fue sometido el material de los tubos de CNE ($1,02.10E26 \text{ n/m}^2$) es aún mayor que la informada en el trabajo de Sagat y col. ($9,8.10E25 \text{ n/m}^2$).

Conclusiones

- Las velocidades de propagación axial de fisuras por RDIH medidas a 211°C en material de los tubos extraídos de los canales A-14 y L-12 son comparables a las halladas en tubos provenientes de otras centrales CANDU.
- La irradiación neutrónica incrementa la velocidad de propagación de RDIH hasta 5 veces con respecto al material no irradiado.
- El incremento de V_p es más importante en las zonas de entrada del refrigerante y central, y menor en la zona de salida del refrigerante de ambos tubos.
- La dependencia de V_p con la fluencia neutrónica y la temperatura de irradiación es similar a la esperada a partir del análisis de un gran número de ensayos realizados con tubos extraídos de las centrales Pickering 3-4 y Bruce 2.

Agradecimientos

Se agradece la autorización brindada por Nucleoeléctrica Argentina S.A. para la publicación del presente trabajo.

Se agradece al Grupo Fractura y Fatiga de la U.A. Materiales por la fabricación de las probetas y la asistencia prestada, y al personal de Protección Radiológica y Seguridad de la U.A. Combustibles Nucleares por su colaboración.

Referencias

- (1) CSA Standard CAN/CSA – N285.4.94, “Periodic Inspection of CANDU Nuclear Power Plant Components”, 1994.
- (2) A.F. Iorio y col., Programa de Vigilancia de TP de CNE - Propiedades Mecánicas y de Tenacidad a la Fractura – CP-E-11/99, Informe Técnico IT-MAT-35/02, julio 2002.
- (3) P. Cirimello, Tesis de Maestría en Ciencia y Tecnología de Materiales, Instituto de Tecnología J.A. Sabato, CNEA-UNSAM, 2002.
- (4) S. Sagat y col., 10th Int. Symp. Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1245, p. 35 (1994).
- (5) Standard Test Method for J_{IC} , a Measure of Fracture Toughness, ASTM E813-81.
- (6) CANDU Owners Group Fuel Channel R&D Program, COG-94-002, Annual Report 1993/94.

TABLA I

Datos de irradiación de los tramos de tubo de presión ensayados

Sección de tubo	Distancia a Entrada (m)	Temperatura de irradiación (°C)	Fluencia neutrónica (E>1 MeV) (n/m²)
Entrada A-14	0,36	265	6,89x10E24
Centro A-14	3,22	290	5,61x10E25
Salida A-14	5,70	312	1,11x10E25

Entrada L-12	0,36	265	2,28x10E25
Centro L-12	3,06	290	1,02x10E26
Salida L-12	5,68	312	3,44x10E25

Tabla II

Resumen de los resultados de los ensayos de RDIH

Sección del Tubo	Longitud de fisura RDIH (mm)	Tiempo de propagación (min)	Velocidad de propagación (m/s)
Entrada A-14	4,050	1077	6,27E-08
	4,172	1023	6,80E-08
Centro A-14	4,386	1130	6,47E-08
	3,902	1147	5,67E-08
Salida A-14	2,658	1118	3,96E-08
	1,584	1110	2,38E-08
Entrada L-12	2,211	360	1,02E-07
	1,028	180	9,52E-08
Centro L-12	2,390	283	1,41E-07
	4,709	638	1,23E-07
Salida L-12	3,580	1129	5,29E-08
	1,073	414	4,32E-08
	2,471	1046	3,94E-08
Offcut "front" L-12	0,879	240	6,11E-08
	1,476	1070	2,30E-08

Offcut "back" L-12	0,606	381	2,65E-08
	1,714	1502	1,90E-08

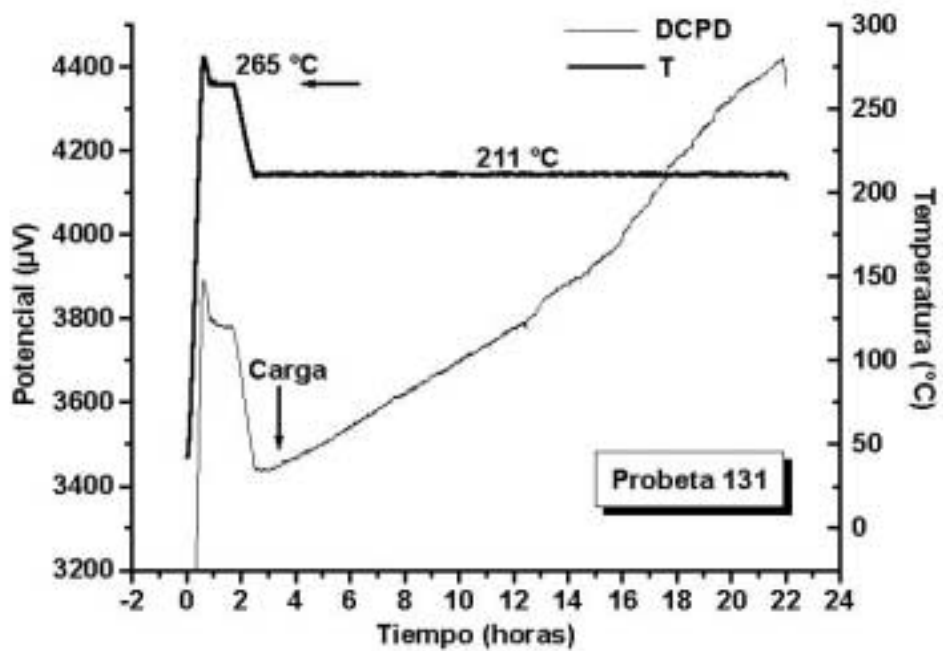
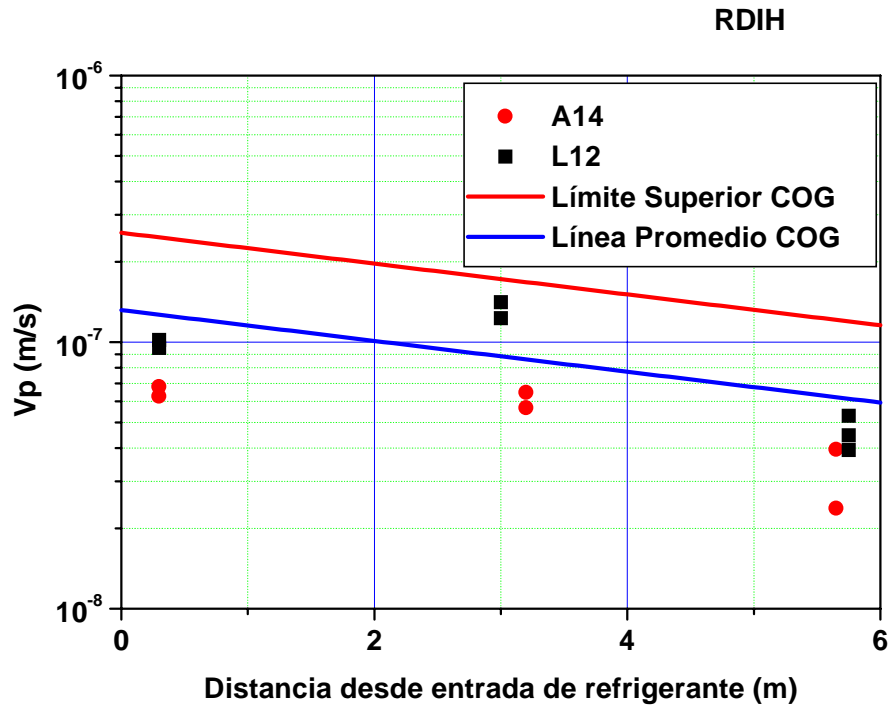


Figura 1: Gráfico de temperatura y DCPD vs. tiempo para el ensayo de RDIH correspondiente a una probeta de la zona central del tubo B-102 (canal A-14).

Nº de Línea	Longitud Fisura RDIH (mm)
1	2.931
2	3.768
3	3.981
4	4.097
5	4.155
6	4.183





7	4.068
8	3.895
9	3.203
Promedio	3.902
Tiempo (min)	1147
Vp (m/s)	5.67E-08

Figura 2: Tabla usada para el cálculo de Vp y superficie de fractura de una probeta de la zona de salida del refrigerante del tubo B-102 (A-14).

Figura 3: Dependencia de Vp con la posición axial a lo largo del tubo de presión.

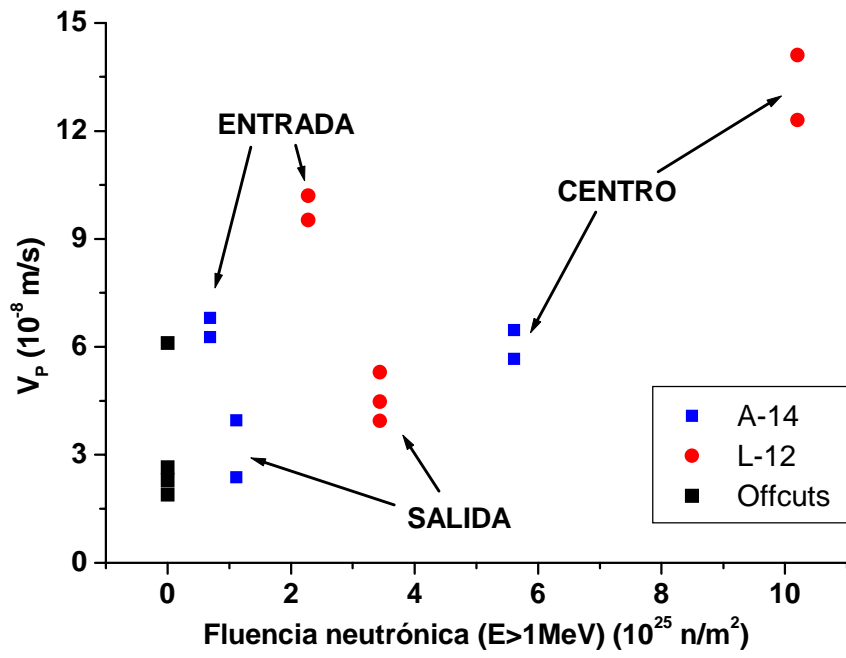


Figura 4: Dependencia de V_p con la fluencia de neutrones rápidos.

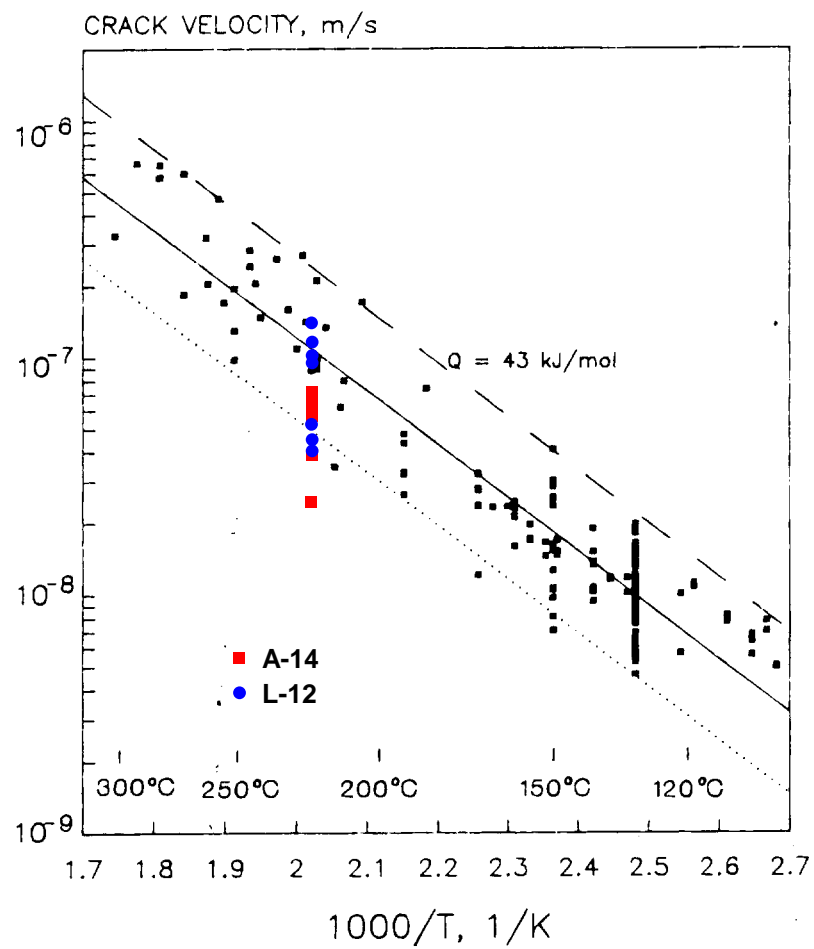


Figura 5: Dependencia de V_p con la temperatura de ensayo (adaptado de (4)).

DELAYED HYDRIDE CRACKING IN IRRADIATED Zr-2.5%Nb PRESSURE TUBES

Pressure tubes in CANDU nuclear power plants are made of Zr-2.5%Nb alloy, which is susceptible to a cracking process called Delayed Hydride Cracking (DHC). Measurement of DHC velocity on irradiated pressure tubes is essential to assure the validity of the Leak Before Break criterion. This work was performed on samples from two pressure tubes taken out of the Embalse NPP in 1995, belonging to fuel channels A-14 and L-12. DHC velocity in the axial direction was measured at 211°C for samples taken from different axial positions, which allowed to study its dependence on fast neutron fluency and irradiation temperature. Non-irradiated material was also tested. It was found that DHC velocity results for the tested material were similar to those obtained for a great number of tubes irradiated in other CANDU plants.