

# ROTURA DIFERIDA INDUCIDA POR HIDRUIROS EN ZR-2,5NB: MÉTODO ALTERNATIVO DE PREFISURACIÓN

Mieza, J. I, Ponzoni, L.M.E., Vigna, G. L., Domizzi, G.

Grupo Daño por Hidrógeno, Dpto. Materiales, CAC, CNEA, Av. Gral. Paz 1499, San Martín (B1650KNA), Bs. As., Argentina

[mieza@cnea.gov.ar](mailto:mieza@cnea.gov.ar), [ponzoni@cnea.gov.ar](mailto:ponzoni@cnea.gov.ar), [vigna@cnea.gov.ar](mailto:vigna@cnea.gov.ar), [domizzi@cnea.gov.ar](mailto:domizzi@cnea.gov.ar).

## RESUMEN

Los componentes internos de reactores nucleares construidos en aleaciones de Zr son susceptibles al fenómeno conocido como rotura diferida inducida por hidruros (RDIH). Esto ha dado lugar a numerosos estudios de laboratorio tendientes a medir la velocidad de propagación y el factor umbral de intensidad de tensiones  $K_{IH}$  asociado a la RDIH. Los ensayos se realizan sobre probetas prefisuradas por fatiga para asegurar condiciones similares y resultados comparables. Como alternativa a la prefisuración por fatiga puede utilizarse un método de prefisuración producida por el mismo proceso de RDIH, para lo cual es necesario demostrar la equivalencia de este método con el de fatiga.

En este trabajo se realizaron ensayos sobre probetas extraídas de dos tubos de Zr-2,5Nb a las que se les realizaron tratamientos térmicos previos para obtener una gama de propiedades y velocidades diferentes. Se realizó una comparación entre velocidades medidas en probetas prefisuradas por fatiga y por RDIH, demostrándose que el método de prefisuración no afecta el valor de velocidad medido. Se midió además el tiempo de incubación ( $t_{inc}$ ), que es el tiempo transcurrido entre la aplicación de la carga y la primera señal de propagación de la fisura, en ensayos con prefisura por RDIH, encontrándose que dichos tiempos son suficientemente cortos, aún en los casos más desfavorables (menor velocidad) y comparables con los de prefisuración por fatiga.

## INTRODUCCION

En componentes internos de reactores nucleares las aleaciones de circonio son elegidas por sus buenas propiedades mecánicas, baja sección eficaz a la captura de neutrones térmicos y alta resistencia a la corrosión. Sin embargo, ante una concentración de hidrógeno y defectos que actúen como concentradores de tensiones, en dichos elementos existe el riesgo de que se pueda producir una propagación de fisuras por precipitación de hidruros y su posterior rotura, fenómeno conocido como rotura diferida inducida por hidruros (RDIH) [1]. Por este motivo, en el diseño de nuevos materiales y/o componentes de uso nuclear es importante evaluar el comportamiento del material frente a la RDIH, en particular en los tubos de presión a ser fabricados para el reemplazo de los actuales en la Central Nuclear Embalse.

En el laboratorio de Daño por Hidrógeno de la Unidad de Actividad Materiales del Centro Atómico Constituyentes, se determina el factor de intensidades de tensiones umbral ( $K_{IH}$ ) y se mide la velocidad de propagación de fisuras en dirección axial de los tubos. Esta última se realiza sobre probetas compactas curvadas que deben ser prefisuradas para asegurar condiciones repetitivas en la punta de la entalla.

Según la norma ASTM E 1820 – 08a [2] la prefisuración se debe realizar en un ensayo previo de fatiga, sin embargo, en ensayos realizados en nuestro laboratorio se observó que es posible lograr la prefisura mediante el mismo proceso de RDIH evitando la fisuración por fatiga.

Luego de la prefisuración, por cualquiera de los métodos, el ensayo de RDIH consiste en el montaje de la probeta en una máquina de peso muerto; la aplicación de un ciclo térmico de calentamiento hasta la solubilización total de los hidruros y posterior enfriamiento hasta la temperatura de ensayo; luego, la aplicación de una carga que asegure un factor de intensidad de tensiones superior al  $K_{IH}$  y en un rango de valores donde la velocidad no varíe con el valor de  $K_I$  [3], finalmente se desmonta la probeta y se abre para observar la superficie de fractura a fin de medir la longitud de la propagación y calcular la velocidad de la fisuración. La detección del inicio de la fisuración se realiza mediante la técnica de emisión acústica [4].

En este trabajo se realizaron ensayos sobre probetas extraídas de dos tubos de Zr-2,5Nb no irradiados, se realizó una comparación entre velocidades medidas en probetas prefisuradas por fatiga y por RDIH. Además, se ensayaron probetas con tratamientos térmicos previos para producir una gama de propiedades y velocidades diferentes, en los cuales se midió el tiempo de incubación ( $t_{inc}$ ) que es el tiempo transcurrido entre la aplicación de la carga y la primera señal de propagación de la fisura.

## DESARROLLO

Se utilizó material proveniente de dos tubos de Zr-2,5 Nb no irradiados, denominados material II y III. Los ensayos se realizaron con probetas tipo CCT (Curved Compact Toughness) de 28 x 20,4 x 4 mm cuyo esquema se muestra en la Figura 1. Cada probeta fue cargada previamente con hidrógeno gaseoso en un equipo tipo Sievert hasta una concentración entre 80 y 140 ppm. Luego se sometieron a un tratamiento de homogeneización para uniformizar la distribución de hidruros. Dos probetas del material II se trataron a 380 °C durante 24 horas. Las probetas del material III recibieron tratamientos térmicos a 500, 430 y 380 °C durante una semana (168 horas).

Los ensayos de RDIH se realizaron en una máquina de peso muerto a temperatura constante. La propagación de la fisura fue en la dirección axial, sobre el plano axial-radial del tubo, la aplicación de la carga de tracción fue en la dirección perpendicular al avance de la fisura. La mitad de las muestras fueron prefisuradas por fatiga (siguiendo las especificaciones de [5] y la otra mitad por RDIH a partir de la entalla de la probeta, en la Figura 2 se ve en detalle la punta de una entalla.

La prefisuración por fatiga fue realizada en dos etapas, la primera con un factor de intensidad de tensiones máximo  $K_I$  de 19 MPa.m<sup>1/2</sup> y la segunda con un factor  $K_I$  de 10 MPa.m<sup>1/2</sup>. La segunda etapa se realizó con un valor de  $K_I$  inferior al utilizado durante los ensayos de RDIH.

Cada ensayo de RDIH consistió en un ciclo térmico de calentamiento hasta una temperatura, que no afectara la microestructura y donde todos los hidruros estuvieran disueltos (entre 360°C y 380°C para las muestras previamente tratadas a 380°C y hasta 415°C para las tratadas a 430°C y 500°C); mantenimiento durante 1 hora y un posterior enfriamiento hasta la temperatura de ensayo. Luego de estabilizada la temperatura se aplicó la carga. La carga aplicada asegura que la velocidad de fisuración es independiente del factor de intensidad de tensiones  $K_I$  [3] que se calculó según la norma ASTM E 1681-99 [6]. El inicio de la propagación de fisura se detectó a través de las señales de emisión acústica emitidas por la rotura de los hidruros. A partir de valores de velocidad medidos previamente se evaluó el tiempo para obtener un avance de fisura del orden de 1 mm. Una vez terminado el ensayo, la muestra se abrió en dos mitades, y sobre la superficie de fractura se midió la longitud del área de propagación a fin de calcular la velocidad de propagación.

En las probetas que fueron prefisuradas por RDIH, ante la imposibilidad de calcular inicialmente un factor de intensidad de tensiones  $K_I$ , se aplicó una carga que asegure la rotura del hidruro precipitado en la punta de la entalla. Se debe verificar, para que pueda ocurrir la RDIH, que la tensión a la que estén sometidos los hidruros precipitados sea superior a la suma de su tensión de fractura  $\sigma_{fh}$  y de la tensión de compresión generada sobre el hidruro durante su crecimiento  $\sigma_h$  ([7], utilizando una relación longitud: espesor del hidruro de 10:1). La relación que debe cumplirse es  $\sigma_{yy}^{max} > \sigma_{fh} + \sigma_h$ .

Se utilizó para los cálculos de la tensión actuante una aproximación a una entalla elipsoidal, con la carga aplicada uniformemente como en una probeta tipo SENT (Single End Notched Tension), ver Figura 3. Aunque los ensayos se realizaron en probetas de tipo CCT, de acuerdo a la Ec. 1 que establece el valor del factor de intensidad de tensiones  $K_I$ , dadas las mismas condiciones de carga y relaciones geométricas entre ambos tipos de probetas y en base a los factores  $f(a/W)$  adimensionales de las Ec. 2 (SENT) y la Ec. 3 (CCT) [8], se verifica que las probetas SENT tendrán siempre un factor de intensidad de tensiones inferior a las CCT como se observa en la gráfica de la Figura 4. Con esta consideración, los valores de tensiones calculados para una probeta SENT serán utilizados como límite inferior conservativo para alcanzar las condiciones de fractura de los hidruros en una probeta tipo CCT.

$$\text{Ec. 1} \quad K_I = \frac{P_0}{BW^{1/2}} f\left(\frac{a}{W}\right)$$

$$\text{Ec. 2} \quad f\left(\frac{a}{W}\right) = \frac{\sqrt{2 \tan\left(\frac{\pi a}{2W}\right)}}{\cos\left(\frac{\pi a}{2W}\right)} \left[ 0,752 + 2,02\left(\frac{a}{W}\right) + 0,37\left(1 - \text{sen}\left(\frac{\pi a}{2W}\right)^3\right) \right]$$

$$\text{Ec. 3} \quad f\left(\frac{a}{W}\right) = \frac{\left[ 2 + \frac{a}{W} \right] \left[ 0,886 + 4,64 \frac{a}{W} - 13,32\left(\frac{a}{W}\right)^2 + 14,72\left(\frac{a}{W}\right)^3 - 5,6\left(\frac{a}{W}\right)^4 \right]}{\left(1 - \frac{a}{W}\right)^{3/2}}$$

El valor de la tensión elástica máxima en la dirección de aplicación de la carga, en la cercanía de la punta de la entalla se calculó con la Ec. 4 [9].

$$\text{Ec. 4} \quad \sigma_{yy}^{max} = \sigma_a \left[ 1 + 2\sqrt{a/\rho} \right]$$

en donde  $\sigma_a$  es la tensión aplicada externamente,  $a$  es la distancia desde la línea de aplicación de la carga hasta la punta de la entalla y  $\rho$  es el radio de curvatura de la elipse ( $\sim 40 \mu\text{m}$ ), como se muestra en la Figura 5. A partir de esta ecuación es posible calcular el valor crítico de tensión aplicada tal que la tensión elástica máxima alcance la tensión de fluencia del material, Ec. 5 [9].

Ec. 5

$$\sigma_a^{crit} = \frac{\sigma_y}{\left[1 + 2\sqrt{a/\rho}\right]}$$

Para el caso que la tensión aplicada supera a la crítica, el valor de la tensión máxima alcanzado  $\sigma_{yy}^{max}$  en la vecindad de la entalla se calcula, con la Ec. 6 [9], en donde  $r_{pz}$  es el radio plástico.

Ec. 6

$$\sigma_{yy}^{max} = \sigma_y \left\{1 + \ln(1 + r_{pz}/\rho)\right\}$$

La tensión aplicada externamente  $\sigma_a$  se calcula como el cociente entre la fuerza aplicada  $P_Q$  medida en Newton y el área promedio de una probeta calculada como el espesor de 4,2 mm por una longitud de 10,5 mm, lo que resulta en un área de 44,1 mm<sup>2</sup>.

## RESULTADOS Y DISCUSIONES

En las probetas prefisuradas por RDIH los valores de tensiones aplicadas  $\sigma_a$  utilizados se listan en la Tabla 1 junto con los valores de tensiones críticas correspondientes. Como se observa, la tensión aplicada  $\sigma_a$  es en todos los casos superior al valor crítico  $\sigma_a^{crit}$  lo que implica que las tensiones deban calcularse con Ec. 6. También se reportan en esta tabla la tensión de compresión sobre el hidruro  $\sigma_h$ , le tensión máxima en la dirección de la aplicación de la carga  $\sigma_{yy}^{max}$  (calculado según la Ec. 4 o Ec. 6, según corresponda), la tensión neta aplicada sobre el hidruro  $\sigma_{yy}^{max} - \sigma_h$  y la tensión de fractura de los hidruros  $\sigma_{fh}$  [10].

Para el ensayo II.1 la tensión máxima neta es inferior en un 13% a la tensión de fractura de los hidruros, lo que teóricamente impediría el comienzo de la RDIH. Sin embargo, debe recordarse que estos cálculos parten de una hipótesis conservativa del factor de intensidad de tensiones entre una probeta tipo SENT y una CCT (unas 3 veces inferior para una relación  $a/w = 0,5$ ), lo que lleva a que el valor real aplicado supere al de fractura de los hidruros y en todos los casos ocurra la RDIH.

En la Tabla 2 se muestran los resultados de la velocidad de RDIH y los tiempos de incubación para probetas ensayadas con los dos métodos de prefisura, por fatiga y por RDIH. Se observa que los valores de velocidad en todas las probetas, dada una temperatura de ensayo semejante, coinciden dentro del error experimental, lo que avala la utilización del método de fisuración por el mismo mecanismo de RDIH como reemplazo del método de la fatiga.

En la probeta III.11 se realizó un segundo ciclo de ensayo (III.11.b) para verificar que el  $K_I$  aplicado no tuviera efecto sobre la velocidad [3]. Para ello se redujo la carga, observándose que los valores de velocidad coinciden con los obtenidos para el primer ciclo. Además se observa que el tiempo de incubación es similar al de las probetas que tuvieron prefisura por fatiga, ya que este ensayo comenzó desde una punta aguda generada por la rotura del último frente de hidruros del ensayo anterior que son similares a las logradas por fatiga.

En la tabla 3 se muestran los tiempos de incubación medidos en ensayos a menor temperatura y con diferentes tratamientos térmicos. Se observa que aún en los ensayos

con velocidades más bajas, los tiempos de incubación son del mismo orden de magnitud que los necesarios para prefisurar por fatiga.

## CONCLUSIONES

- Se demostró que la velocidad por RDIH no depende del método de prefisuración (fatiga o RDIH).
- Los tiempos necesarios para prefisurar por RDIH son suficientemente cortos, aún en los casos más desfavorables (menor velocidad) y comparables con los de prefisuración por fatiga.
- Se propone como método alternativo de prefisuración la RDIH en lugar de la fatiga.

## REFERENCIAS

1. C. E. Coleman, J.F.R Ambler, "Delayed Hydrogen Cracking in Zr-2.5 wt% Nb alloy", Reviews on Coatings and Corrosion, Vol. III, N° 2 & 3 (1979) pp. 105-157.
2. ASTM E 1820 – 08<sup>a</sup>, Standard Test Method for Measurement of Fracture Toughness, American Society for Testing and Materials (2008).
3. Simpson, L. A. and Puls, M. P: "The effects of Stress: Temperature and Hydrogen Content on Hydride-Induced Crack Growth in Zr-2.5 Pct Nb", Metallurgical Transactions A, 1979, Vol 10A, pp 1093-1105.
4. C. B. Scruby, An Introduction to Acoustic Emission, Journal of. Physics E Vol. 20 (1987) pp. 943-953.
5. R. Choubey, "DHC Axial velocity test procedure for IAEA round-robin test program", in: AECL Report No. FC-IAEA-02 T1.20.13-CAN-27363-02 (1998).
6. ASTM E 1681-99, Standard Test Method for Determining Threshold Stress Intensity Factor for Environment-Assisted Cracking of Metallic Materials. American Society for Testing and Materials (1999).
7. Q. Shi, M. P. Puls, S. Sagat, Criteria of fracture at hydrides in zirconium alloys II. Shallow notch, Journal of Nuclear Materials, 208 (1994) pp. 243-250.
8. T. L. Anderson, Fracture & Fatigue: fundamentals and applications, CRC 2nd Ed.(1995).
9. S. –Q. Shi, M. P. Puls, A simple method of estimating the maximum normal stress and plastic zone size at a shallow notch, International Journal of Pressure Vessels. & Piping, 64 (1995) 67-71.
10. S. –Q. Shi, M. P. Puls, Fracture strength of hydride precipitates in Zr-2.5Nb alloys, Journal of Nuclear Materials 275 (1999) 312-317.

Figura 1. Esquema de una probeta tipo CCT (Compact Curved Toughness)

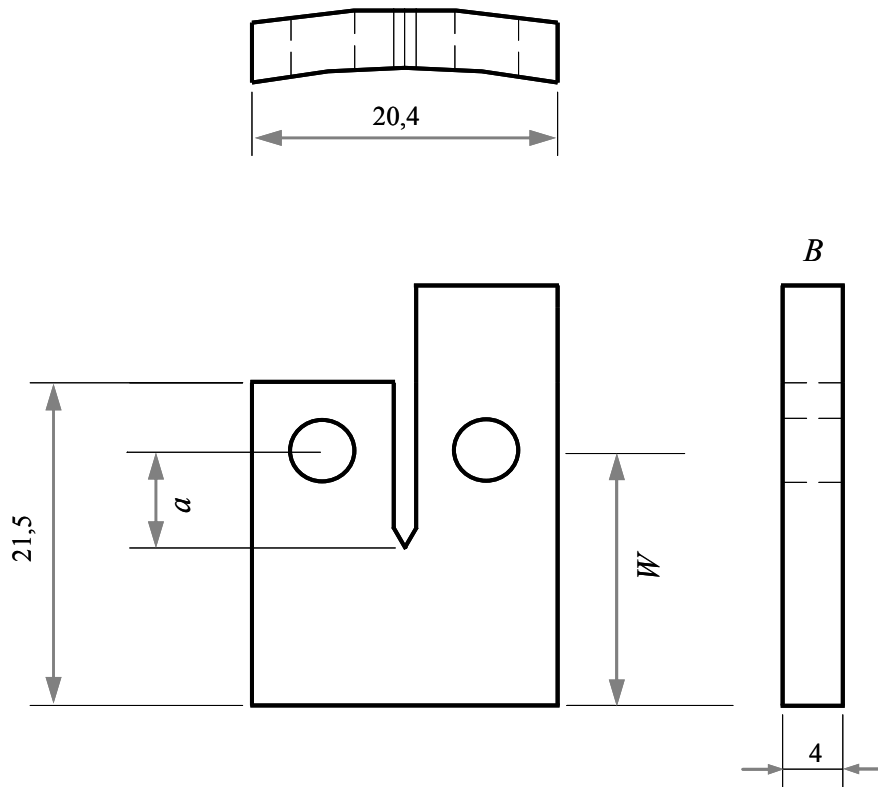


Figura 2. Foto de la entalla. Las dimensiones están definidas en la Figura 1.

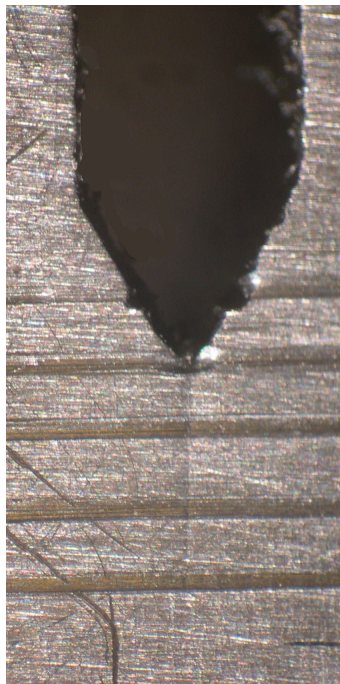


Figura 3. Probeta tipo SENT (Single End Notched Tension)

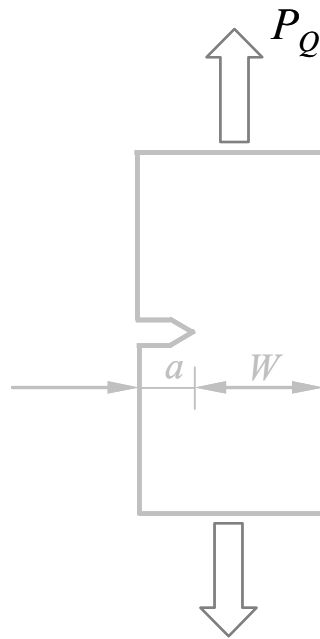


Figura 4. Comparación del factor adimensional  $f(a/W)$  entre probetas CCT y SENT.

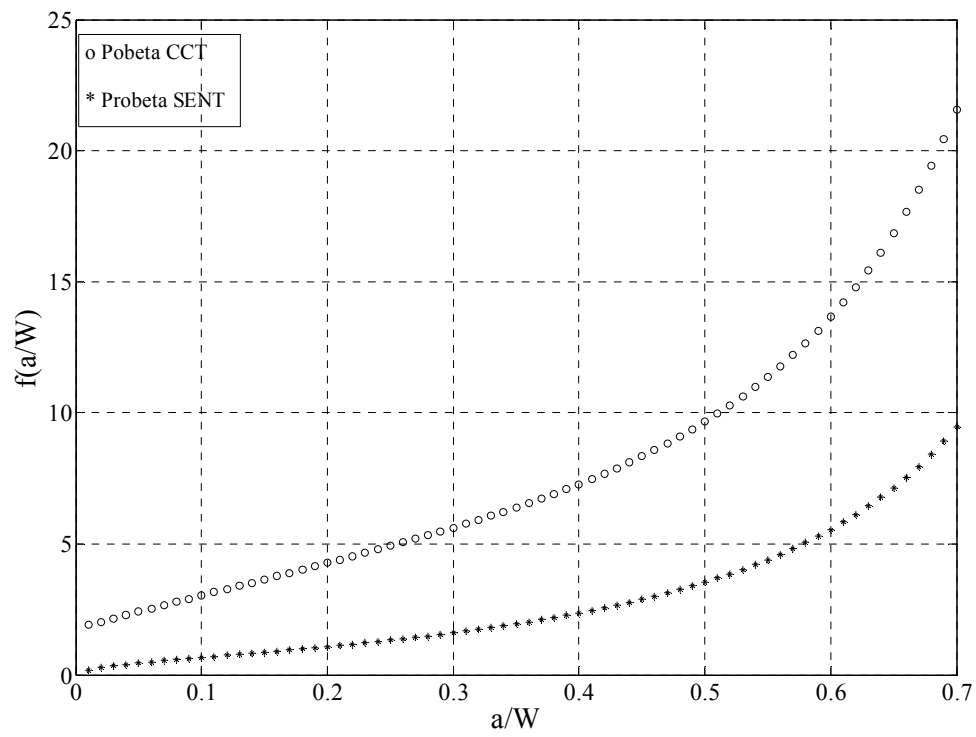


Figura 5. Esquema de las tensiones normales en la punta de una entalla elipsoidal de radio  $\rho$

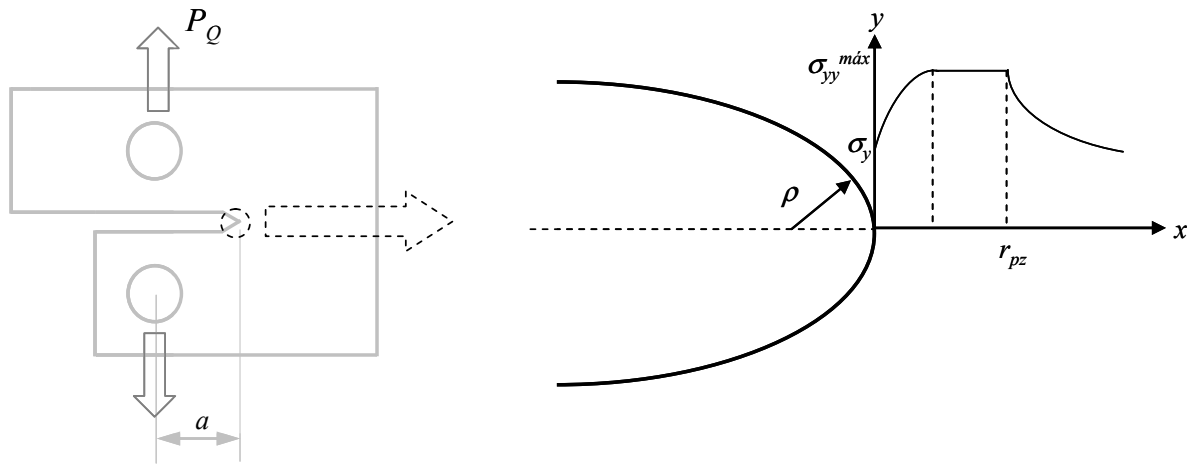


Tabla 1. Valores de tensión en la cercanía de una entalla sin prefisura.

Ensayo	Temp. (°C)	$\sigma_a$ (MPa)*	$\sigma_a^{crit}$ (MPa)	$\sigma_{hid}$ (MPa)	$\sigma_{yy}^{max}$ (MPa)	$\sigma_{yy}^{max} - \sigma_{hid}$ (MPa)	$\sigma_{fhid}$ (MPa)
II-1	256	36,9	18,9	156,7	679,7	523	602,7
III.2	222	47,1	28,8	162,4	943,7	781,4	605,8
III.3	225	49,2	32,4	161,9	1023	861	605,5
III.4	224	33,3	31,2	162	845,4	683,3	605,6
III.5	220	33,5	31,3	162,7	850	687,3	606
III.6	222	33,3	28,8	162,4	804,6	642,2	605,8
III.7	227	32,8	32,3	161,5	860,7	699,2	605,3
III.8	215	45,2	32,8	163,6	929,3	765,7	606,4
III.10	250	33,6	31,4	157,7	790	632,3	603,3
III.11 a	249	33,8	31,5	157,8	855,3	697,5	603,3

\* Se calculó la tensión con un área de 44,1 mm<sup>2</sup> y con la tensión de fluencia de acuerdo al tratamiento térmico previo.



**Tabla 2.** Comparación de la velocidad de RDIH y tiempos de incubación en probetas de Zr-2,5Nb prefisuradas por los métodos de fatiga y RDIH..

Ensayo	Carga gaseosa H (ppm)	Prefisura	Temperatura de ensayo (C°)	Carga aplicada (kg)	$K_I$ (MPa.m <sup>1/2</sup> ) (inicial / final)	$t_{inc}$ (min)	$V_p$ (m/s)
II-1	109	RDIH	256	165,8	21/24	22	(5,9±0,8) 10 <sup>-8</sup>
II-2	80	FATIGA	251	84,3	14,1/17,2	6,6	(5,0±0,7) 10 <sup>-8</sup>
III-9	125	FATIGA	251	87,6	15/19	6,8	(5,7±0,9) 10 <sup>-8</sup>
III.10	118	RDIH	250	151,3	18/22	20,5	(5,9±0,6) 10 <sup>-8</sup>
III.11 a	128	RDIH	249	152	19/20	64,8	(5,5±0,9) 10 <sup>-8</sup>
III.11 b	128	RDIH	250	116,2	16/18	5,7	(5,6±0,6) 10 <sup>-8</sup>
III.12	91	FATIGA	252	80,4	14/18	5	(5,5±0,7) 10 <sup>-8</sup>

Todos las muestras fueron previamente tratadas a 380 °C/24 h

**Tabla 3.** Tiempo de incubación del material III con diferentes tratamientos térmicos. Todas estas probetas fueron prefisuradas por el método de RDIH.

Ensayo	Carga gaseosa H (ppm)	Trat.Térmico/ Tiempo (°C/h)	Temperatura de ensayo (C°)	$V_p$ (m/s)	$t_{inc}$ (min)
III.8	115	380/24	215	1,81.10 <sup>-8</sup>	159
III.3	101	380/168	225	2,62.10 <sup>-8</sup>	102
III.7	102	380/168	227	2,62.10 <sup>-8</sup>	258
III.4	140	430/168	224	1,91.10 <sup>-8</sup>	436,1
III.5	107	430/168	220	1,51.10 <sup>-8</sup>	281,4
III.2	111	500/168	222	9,53.10 <sup>-9</sup>	586,8
III.6	104	500/168	222	1,07.10 <sup>-8</sup>	446,2

## **DELAYED HYDRIDE CRACKING: ALTERNATIVE PRE-CRACKING METHOD**

Mieza, J. I, Ponzoni, L.M.E., Vigna, G. L., Domizzi, G.

Grupo Daño por Hidrógeno, Dpto. Materiales, CAC, CNEA, Av. Gral. Paz 1499, San Martín (B1650KNA), Bs. As., Argentina,  
[mieza@cnea.gov.ar](mailto:mieza@cnea.gov.ar), [ponzoni@cnea.gov.ar](mailto:ponzoni@cnea.gov.ar), [vigna@cnea.gov.ar](mailto:vigna@cnea.gov.ar), [domizzi@cnea.gov.ar](mailto:domizzi@cnea.gov.ar).

### **ABSTRACT**

The internal components of nuclear reactors built-in Zr alloys are prone to a failure mechanism known as Delayed Hydride Cracking (DHC). This situation has triggered numerous scientific studies in order to measure the crack propagation velocity and the threshold stress intensity factor associated to DHC.

Tests are carried out on fatigued pre-crack samples to ensure similar test conditions and comparable results. Due to difficulties in implementing the fatigue pre-crack method it would be desirable to replace it with a pre-crack produced by the same process of DHC, for which is necessary to demonstrate equivalence of these two methods.

In this work tests on samples extracted from two Zr-2.5Nb tubes were conducted. Some of the samples were heat treated to obtain a range in their metallurgical properties as well as different DHC velocities. A comparison between velocities measured in test samples pre-cracked by fatigue and RDH is done, demonstrating that the pre-cracking method does not affect the measured velocity value.

In addition, the incubation ( $t_{inc}$ ), which is the time between the application of the load and the first signal of crack propagation, in samples pre-cracked by RDH, was measured. It was found that these times are sufficiently short, even in the worst cases (lower speed) and similar to the ones of fatigued pre-cracked samples.