

DOLORES GÓMEZ BRICEÑO

PROYECTOS DE INVESTIGACIÓN SOBRE GESTIÓN DE VIDA: ENVEJECIMIENTO DE MATERIALES

El envejecimiento de los materiales es un fenómeno dependiente del tiempo, que conlleva la pérdida de disponibilidad de las plantas nucleares y, en algunos casos, de la seguridad de los componentes afectados.

Entre los numerosos mecanismos de degradación dependientes del tiempo que pueden identificarse en el proceso de envejecimiento de los componentes de las plantas nucleares, podemos destacar fragilización por irradiación, corrosión bajo tensión, corrosión bajo tensión asistida por irradiación, y fragilización térmica. Otros mecanismos posibles son erosión, corrosión-erosión, desgaste, fluencia y relajación de tensiones, etc. El Programa de Materiales del ITN del CIEMAT lleva a cabo proyectos de investigación y exámenes metalúrgicos de componentes procedentes de plantas en operación encaminados al entendimiento de los mecanismos de degradación de los materiales que tienen una incidencia directa sobre la gestión de vida de las plantas nucleares.

El envejecimiento de los materiales es un fenómeno dependiente del tiempo, que conlleva la pérdida de disponibilidad de las plantas nucleares y, en algunos casos, de la seguridad de los componentes afectados. El envejecimiento de un componente sólo puede ser evaluado si se dispone de información adecuada, que debe incluir información sobre el diseño, métodos de fabricación y materiales usados, la historia de la operación recogiendo datos sobre variables que estén directamente relacionados con la evolución de la degradación de la planta, los datos de vigilancia de componentes importantes como la vasija del reactor y los resultados de inspecciones que permitan establecer la degradación actual de los componentes y estimar la evolución de la degradación. Esta información debe completarse con datos procedentes de ensayos de laboratorio que permitan estimar la tolerancia del material al proceso de degradación en curso o anticiparse a procesos que todavía no se han manifestado y con resultados de análisis metalúrgicos realizados para la determinación de las causas de fallo en componentes procedentes en plantas en operación.

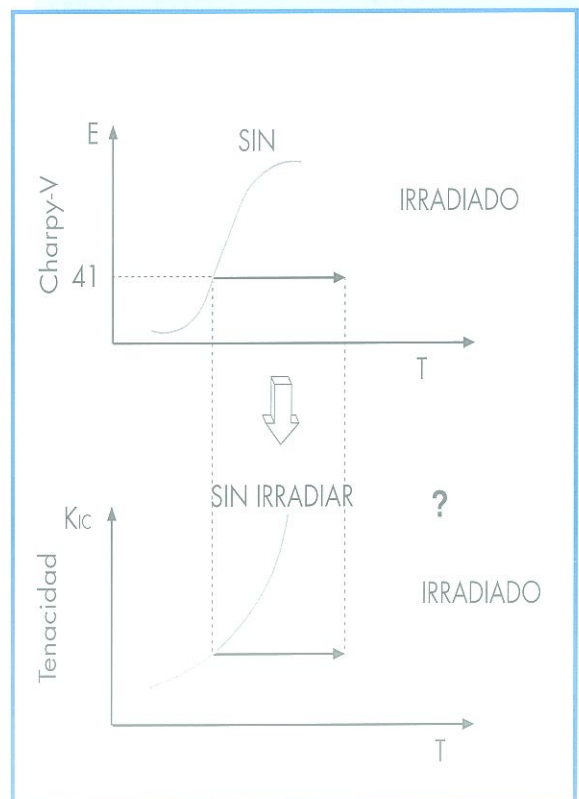
Entre los numerosos mecanismos de degradación dependientes del tiempo que pueden identificarse en el proceso de envejecimiento de los componentes de las plantas nucleares, podemos destacar fragilización por irradiación, corrosión bajo tensión, corrosión bajo tensión asistida por irradiación, y fragilización térmica.

Otros mecanismos posibles son erosión, corrosión-erosión, desgaste, fluencia y relajación de tensiones, etc. De todos los procesos citados, los ligados a corrosión son posiblemente los que mayor impacto han tenido hasta ahora en la disponibilidad de las plantas y además son los más difíciles de predecir, en parte debido a que las combinaciones de material/ambiente existentes en distintas zonas de las plantas han resultado no ser inmutables en procesos de larga duración.

FRAGILIZACIÓN POR IRRADIACIÓN

La vasija del reactor, que ocupa un lugar destacado en los planes de gestión de vida debido a las inaceptables consecuencias de un fallo de este componente y a la dificultad de su sustitución, está sometida a irradiación neutrónica que modifica la microestructura y la microquímica del material (aceros de baja aleación tipo A 508 o A 533). La interacción de los neutrones con los

F1 - Efectos de la irradiación en las curvas Charpy y en la tenacidad de fractura de los aceros de vasija



átomos del material produce desplazamientos de los átomos y cascadas de desplazamientos que pueden bloquear el movimiento de las dislocaciones y provocar un aumento del límite elástico y de la dureza del material y una disminución de su tenacidad. Además, la irradiación neutrónica puede dar lugar a la formación de precipitados que conllevan el endurecimiento del material, siendo el Cu y el P los elementos determinantes de la fragilización del material.

El seguimiento de la evolución del estado de la vasija se lleva a cabo mediante los programas de vigilancia que proporcionan información del estado mecánico de la vasija para una cierta dosis neutrónica acumulada. La tenacidad del material caracteriza su resistencia a la iniciación y propagación de grietas frágiles, debiendo mantenerse en los valores adecuados durante la vida de la planta para poder garantizar una operación segura. La pérdida de ductilidad del material puede evaluarse mediante ensayos de impacto con probetas Charpy V. La temperatura de referencia RT_{NDT} caracteriza la transición dúctil-frágil del material. Como consecuencia de la irradiación, la curva Charpy se desplaza hacia temperaturas más altas, fig. 1, mostrando una disminución del valor máximo de energía, y un aumento de la temperatura RT_{NDT} .

La tenacidad de fractura del material, que se evalúa indirectamente a partir de los ensayos Charpy, es una función exponencial de la temperatura equivalente $T-RT_{NDT}$. Es aceptado que el desplazamiento de la curva de tenacidad que ocurre como consecuencia de la irradiación es igual al desplazamiento sufrido por la curva Charpy a un nivel de energía de 41J.

Los valores de la temperatura de referencia para una fluencia neutrónica acumulada no pueden sobrepasar 132 °C para las placas, forjas y soldaduras axiales y 149 °C para las soldaduras circunferenciales (1). Si estos valores se excediesen, sería necesario realizar una evaluación específica del estado de la vasija para poder continuar con la operación. El valor de la energía del plató superior de la curva Charpy debe ser mayor que 102 julios para el material sin irradiar y debe mantenerse por encima de 68 julios durante el tiempo de operación a menos que se justifique que existen márgenes de seguridad suficientes para valores inferiores.

Para limitar el daño de la vasija por su exposición a irradiación neutrónica es posible rediseñar los esquemas de carga para reducir la cantidad de neutrones que fugan del núcleo, utilizar venenos neutrónicos o apantallar la vasija en las regiones de alto flujo. La eficacia de estas técnicas dependerá del momento de la vida de la vasija en el que se incorporen. El recodo de la vasija es una opción para la extensión de la vida de la misma o para establecer límites de P-T menos restrictivos en los arranques y paradas.

CORROSIÓN BAJO TENSIÓN EN BWR

Tanto las líneas de recirculación como la mayoría de los componentes internos de los reactores tipo BWR están fabricados de aceros inoxidables austeníticos tipo 304, 316 o austeníticos estabili-

zados tipo 321 o 347. Otros materiales utilizados para componentes internos han sido Inconel 600 y aleación X 750 como materiales base y aleación 182 como material de soldadura. Las aleaciones austeníticas son susceptibles a corrosión intergranular bajo tensión, que es un proceso de degradación dependiente del tiempo función de las tensiones residuales del componente, de la sensibilización del material y del ambiente. La presencia de zonas de resquicios favorece este tipo de procesos y si además el material está expuesto a radiación su susceptibilidad a corrosión bajo tensión se vera incrementada como consecuencia de un nuevo mecanismo conocido como corrosión baja tensión asistida por irradiación, del que hablaremos más adelante.

Las primeras grietas de morfología intergranular que se atribuyeron a este fenómeno fueron detectadas en la zona afectada por el calor de las soldaduras de las líneas auxiliares y de las líneas de recirculación de los reactores tipo BWR, en los años 70. Posteriormente, en 1990, se detectó una grieta circunferencial en el barrilete del núcleo de un reactor BWR, situada también en la zona afectada por el calor de una de las soldaduras circunferenciales del componente. En años sucesivos se han encontrado grietas de características similares en componentes internos de otros reactores, convirtiéndose en un problema genérico de este tipo de reactores (2).

Durante el proceso de soldadura, en la zona afectada por el calor de la soldadura, los aceros inoxidables austeníticos sufren un proceso conocido como sensibilización, que consiste en la precipitación de carburos de cromo en borde de grano con el consiguiente empobrecimiento en cromo en las zonas adyacentes, lo que incrementa la posibilidad de que el borde de grano se convierta en sitio preferente para el inicio de las grietas. El proceso de soldadura también introduce altas tensiones residuales de tracción en el material próximo a la soldadura, que pueden llegar a ser tan altas como el límite elástico del material. El acabado superficial del componente puede dar lugar a tensiones residuales de tracción y a la formación de una capa trabajada en frío, lo que incrementa la susceptibilidad del material a la iniciación de grietas.

En cuanto a la influencia del ambiente, es conocido que para los potenciales de corrosión inferiores a -230 mV SHE, la susceptibilidad a corrosión bajo tensión de los aceros inoxidables austeníticos disminuye o desaparece. Valores de potencial inferiores a este umbral pueden alcanzarse utilizando una química del agua con hidrógeno, consistente en invertir la reacción de radiólisis del agua de refrigeración inyectando hidrógeno en el agua de alimentación. La efectividad de la química de hidrógeno para reducir la susceptibilidad a corrosión bajo tensión ha sido demostrada en el caso de las líneas de recirculación pero no ha sido totalmente evaluada en el caso de los componentes internos del núcleo expuestos a radiación.

CORROSIÓN BAJO TENSIÓN EN PWR

La aleación base níquel, Inconel 600, ha sido utilizada para la fabricación de distintos componen-

tes de los reactores tipo PWR tales como los tubos de los generadores de vapor, las penetraciones de la tapa de la vasija, las toberas de instrumentación, etc. Esta aleación presenta una alta susceptibilidad a corrosión bajo tensión en las condiciones de operación del circuito primario de este tipo de reactores, proceso que requiere la presencia de altas tensiones de tracción, alta temperatura de operación y una microestructura susceptible.

Este tipo de degradación es un proceso activado térmicamente que puede expresarse de acuerdo con una ley de Arrhenius, y tanto el proceso de iniciación de grietas como el de propagación son muy sensibles a la temperatura. La microestructura del material juega un papel relevante en su comportamiento, y su resistencia será tanto mayor cuanto mayor sea el % de borde de grano cubierto por carburos. La química del agua del circuito primario, que contiene boro y litio además de una cierta cantidad de hidrógeno, tiene un efecto secundario sobre este proceso de degradación.

Cuando se detectaron las primeras grietas en las penetraciones de la tapa de la vasija de diferentes plantas (3), se planteó la necesidad de disponer de datos de velocidad de propagación de grietas obtenidos con la metodología adecuada y en condiciones representativas de la operación del reactor, que pudieran ser usados para estimar los periodos de inspección y la vida residual de los componentes afectados. En la actualidad, existe una no muy extensa base de datos obtenidos por diversos laboratorios (4, 5) en condiciones simuladas del circuito primario, con probetas de mecánica de fractura fabricadas de materiales representativos de las coladas de las penetraciones, a temperaturas entre 290 °C y 360 °C.

CORROSIÓN BAJO TENSIÓN/ATAQUE INTERGRANULAR EN PWR

Todos los materiales utilizados para los tubos de los generadores de vapor, Inconel 600, y en menor medida, Inconel 690TT e Incoloy 800, son susceptibles a procesos de corrosión bajo tensión y/o ataque intergranular en las condiciones de operación de los generadores de vapor en el lado secundario. En los últimos años este fenómeno de degradación ha sido la causa mayoritaria del taponamiento de tubos de generadores de vapor en todo el mundo, y en algunos casos la causa del reemplazamiento de los mismos (6). Durante mucho tiempo, se ha considerado que este proceso de degradación estaba originado por medios altamente cáusticos que pueden formarse en las zonas de resquicios

(1) NUREG 1511. Supplement 1 Reactor Pressure Vessel Status Report. October 1996.

(2) NUREG 1544. Status Report: Intergranular Stress Corrosion Cracking of BWR Core Shrouds and Other Internal Components.

(3) EPRI TR-103345. Proceedings: 1992 EPRI Workshop on PWSCC of Alloy 600 in PWRs.

(4) EPRI TR-105406. Proceedings: 1994 EPRI Workshop on PWSCC of Alloy 600 in PWRs.

(5) D. Gómez Briceño, F. Blázquez, F. Hernández. "Crack Propagation in Inconel 600 Vessel Head Penetrations". Eurocorr-96

(6) EPRI TR-103824. Steam Generator Reference Book, 1994

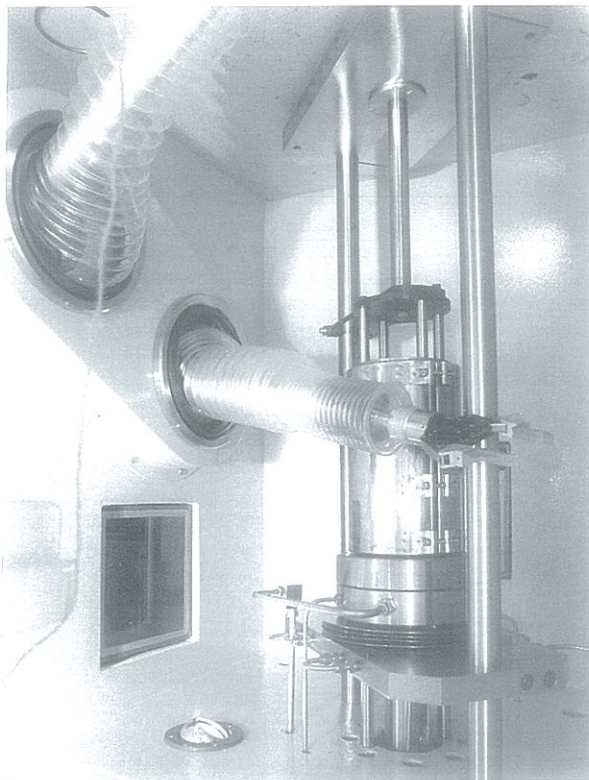
de los generadores de vapor. Sin embargo, los resultados de los análisis de los depósitos de los tubos extraídos de generadores de vapor en operación y los valores de los pH calculados con códigos como el MULTE Q utilizando los resultados de los "hide out" indican que las grietas o el ataque en borde de grano pueden ocurrir en medios menos alcalinos que los supuestos inicialmente. Además, tanto en laboratorio como en planta se ha confirmado que también los medios ácidos pueden dar lugar a este tipo de degradación.

El ácido bórico ha sido utilizado por algunas plantas como inhibidor de estos procesos de degradación por el lado del secundario, con diferente eficacia de unas plantas a otras. Otros inhibidores están siendo actualmente investigados, mereciendo especial atención los compuestos de titanio, aunque su facilidad para incorporarse a las intersecciones tubo /placa soporte está siendo cuestionada por los resultados procedentes de plantas en operación.

CORROSIÓN BAJO TENSIÓN ASISTIDA POR IRRADIACIÓN

El mecanismo de degradación conocido como corrosión bajo tensión asistida por irradiación trata de explicar los agrietamientos intergranulares encontrados en componentes estructurales altamente irradiados de los reactores tipo BWR y PWR. Si durante un tiempo se pensó que en ausencia de irradiación este tipo de fallos no ocurriría, actualmente se acepta que el papel de la radiación es el de acelerar el proceso de corrosión bajo tensión, actuando sobre los diversos factores que afectan a este proceso de degradación (material, tensiones y medio). Los materiales más afectados por este proceso son los aceros inoxidables austeníticos, cuya susceptibilidad a corrosión bajo tensión en el medio oxidante propio de los reactores BWR era bien conocida. Sin embargo, la información disponible en la actualidad indica que los componentes internos de los reactores tipo PWR también pueden sufrir este tipo de degradación y que no solo los aceros inoxidables sino también las aleaciones base níquel, como la aleación X 750, la aleación 600 u otras pueden ser susceptibles.

La exposición a la radiación modifica la microestructura y la microquímica del material provocando el endurecimiento del mismo y la segregación de no-equilibrio en borde de grano de elementos que pueden modificar la susceptibilidad del material a corrosión bajo tensión. Los bordes de grano se enriquecen en silicio, fósforo y níquel y se empobrecen en cromo, hierro y molibdeno. La evidencia de esta redistribución de los elementos está ahora bien establecida pero no así en la correlación entre la segregación en borde de grano y el proceso de corrosión bajo tensión asistida por irradiación. Tanto los neutrones de alta energía como la radiación γ modifican el ambiente por radiólisis del agua, provocando altera-



F II - Autoclave para ensayos de corrosión bajo tensión con material preirradiado

ciones en el potencial de corrosión del sistema. Los efectos de la radiación en los aceros inoxidables austeníticos empiezan a manifestarse para valores de fluencia neutrónica superiores a un valor umbral, establecido en $3\text{-}5 \times 10^{20}$ n/cm² y $1\text{-}2 \times 10^{21}$ n/cm² ($E > 1$ Mev) para los reactores tipo BWR y PWR respectivamente. Entre los fallos más significativos que pueden tener su origen en este fenómeno se encuentran las vainas de las barras de control y los tornillos de las barras deflectoras, en los reactores tipo PWR, y el barrilete del núcleo en los reactores tipo BWR.

ENVEJECIMIENTO TÉRMICO DE ACEROS INOXIDABLES DUPLEX

Este proceso de envejecimiento, al que se dedica un artículo en este mismo número, no se tuvo en cuenta cuando los primeros componentes de aceros inoxidables duplex fueron diseñados, puesto que no se consideraba que el envejecimiento térmico de la ferrita tuviese lugar a temperaturas por debajo de 450 °C. Sin embargo, el envejecimiento es posible en las temperaturas de operación (285-320 °C). Durante el envejecimiento térmico se producen reacciones de precipitación y cambios de fase en la fase ferrítica de los aceros inoxidables duplex, que provocan una fragilización de la ferrita. La formación de ferrita fragilizante (> 15%) producirá una disminución de la tenacidad de fractura de componentes.

ACTIVIDADES DEL CIEMAT

El Programa de Materiales del ITN del CIEMAT

lleva a cabo proyectos de investigación y exámenes metalúrgicos de componentes procedentes de plantas en operación encaminados al entendimiento de los mecanismos de degradación de los materiales que tienen una incidencia directa sobre la gestión de vida de las plantas nucleares.

Dada la situación de las plantas españolas después de la sustitución de algunos componentes importantes, como los generadores de vapor y turbinas en Almaraz y Ascó, la tapa de la vasija en Almaraz y José Cabrera, etc, y la evolución de los fenómenos de degradación en las plantas nucleares de todo el mundo, las actividades más significativas del Programa de Materiales del ITN se desarrollan en torno al efecto de la irradiación sobre los materiales y al comportamiento frente a la corrosión de los mismos.

En fragilización de aceros de vasija se ha firmado la participación en el programa coordinado por el OIEA "Assuring Structural Integrity of Reactor Pressure Vessel", que cuenta con al menos la participación de 13 países. Este proyecto se llevará a cabo en colaboración con las plantas nucleares españolas dentro del Grupo de Gestión de Vida de UNESA. Los objetivos de este pro-

yecto son desarrollar un procedimiento para la obtención directa de datos de tenacidad de fractura utilizando probetas tipo Charpy que sean aplicables al análisis de la integridad estructural de la vasija, y facilitar el intercambio internacional de información para elaborar una guía práctica con recomendaciones para el seguimiento del comportamiento del material de vasija.

Para cumplir los objetivos del programa se llevarán a cabo ensayos de flexión con probetas pre-agrietadas de tipo Charpy y ensayos de impacto en péndulo instrumentado con probetas Charpy V, con material irradiado y no irradiado, utilizando las mismas normas para todos los participantes, y ensayos adicionales como tracción, tenacidad de fractura dinámica, tenacidad de fractura estática con otro tipo de probetas, etc, y la caracterización de los materiales, metalografía, fractografía, aniquilación de positrones, etc.

Además, como actividades internas, se están desarrollando metodologías para el ensayo de probetas miniatura y para la reconstrucción de probetas por soldadura.

A medida que aumenta el tiempo de operación de las plantas nucleares es mayor el número de componentes internos del núcleo que pueden ser afectados por corrosión bajo tensión asistida por irradiación. Dada la dificultad de inspección y reparación de algunos de estos componentes, el entendimiento del mecanismo de corrosión se considera fundamental para mitigar o evitar la degradación de componentes susceptibles.

En los últimos años la actividad internacional sobre este fenómeno de degradación es creciente. El CIEMAT, en colaboración con las

Plantas Nucleares Españolas, participa en distintas actividades internacionales como son:

El Proyecto Halden de la OCDE, que cuenta entre sus actividades con un programa experimental para el estudio de la corrosión bajo tensión asistida por irradiación. Estas actividades son seguidas por el Grupo de Materiales del CONVENIO NACIONAL HALDEN en el que participan las Plantas Nucleares Españolas, representadas por la DTN, CSN, TECNATOM y CIEMAT.

El Programa CIR (Cooperative IASCC Research Programme), liderado por EPRI, en el que participan las plantas nucleares españolas tipo PWR (Zorita, Almaraz, Ascó y Vandellós), y las tipo BWR (Sta. Mª. de Garoña y Cofrentes) representadas por UNESA. El CIEMAT asume la coordinación técnica y la transferencia de información y tecnología del programa CIR a las plantas españolas. Los objetivos de este programa son desarrollar un entendimiento mecanístico del IASCC y la metodología necesaria para predecir el comportamiento de los componentes e identificar posibles contramedidas.

Como parte de las actividades internas el CIEMAT ha construido una instalación adecuada para llevar a cabo ensayos de corrosión bajo tensión con material irradiado, fig. 2. La instalación cuenta con dos circuitos independientes para simular condiciones de reactor tipo BWR y/o PWR en cada uno de ellos, que alimentan dos autoclaves alojadas en una semicelda caliente, instrumentadas para la realización de ensayos de corrosión bajo tensión a velocidad de extensión constante o bajo carga constante. Asimismo, ha

incorporado a su laboratorio de microscopía un nuevo Microscopio de Transmisión de 200 KV, imprescindible para el estudio de las alteraciones microestructurales producidas por la radiación en los materiales estructurales. Además cuenta con un Microscopio AUGER, adecuado para determinar los cambios de composición de los bordes de grano de materiales irradiados.

El proyecto interno de investigación sobre IASCC pretende adquirir criterios propios para la evaluación de comportamiento de componentes frente a corrosión bajo tensión, con el fin de soportar las decisiones de las plantas relacionadas con este tema. El alcance de este proyecto incluye el estudio de la influencia de las modificaciones de la microestructura y la microquímica sobre la resistencia a la corrosión bajo tensión de los materiales del núcleo. Para ello, se está considerando trabajar con material preirradiado en un reactor de investigación, posiblemente Halden, y ensayar materiales irradiados procedentes de plantas comerciales. Además, se abordará la simulación de la irradiación neutrónica con otro tipo de partículas.

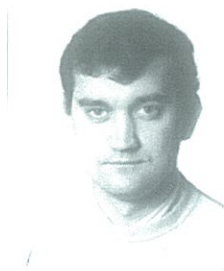
Como continuación del trabajo iniciado en el marco del programa PETAVA, sobre componentes de Inconel 600 en reactores tipo PWR, se está finalizando un extenso trabajo experimental, de 10.000 horas de duración, llevado a cabo con los objetivos de establecer la influencia de la microestructura en distintos tipos de productos de Inconel 600 y de obtener velocidades de propagación de grietas en condiciones representativas de la operación del reactor tanto en condiciones



Dolores GÓMEZ BRICEÑO, es Licenciada en Ciencias Químicas y Diplomada en Estadística por la Universidad Complutense de Madrid, ha desarrollado su carrera profesional en el Instituto de Tecnología Nuclear del CIEMAT, tiene una larga experiencia en el comportamiento de los materiales de centrales nucleares en especial en el campo de la corrosión. En la actualidad dirige el Programa de Materiales del Instituto de Tecnología Nuclear del CIEMAT.

normales de operación como en el caso de posibles incursiones químicas durante la operación. Análisis metalúrgicos de componentes fallados procedentes de plantas en operación, tubos de generadores de vapor, penetraciones de la tapa de la vasija, turbinas, bombas, etc., soportan y complementan los proyectos de investigación proporcionando información sobre los mecanismos de fallo y sobre la influencia de la operación de la planta en la degradación de los materiales.

Viene de la pág. 26



Iñaki GORROCHATEGUI SÁNCHEZ es Ingeniero de Caminos, Canales y Puertos por la Universidad de Cantabria. Cuenta con estudios de Doctorado cursados en el Departamento de Ciencia e Ingeniería del Terreno y de los Materiales de la misma universidad. Diferentes etapas como Investigador, Profesor Ayudante y Profesor Asociado en el Área de Conocimiento de Ciencia de los Materiales e Ingeniería Metalúrgica. Incorporación a la Sección de Ingeniería Mecánica de NUCLENOR desde 1993 hasta la actualidad.



José Ramón TORRALBO ESTRADA es Ingeniero Naval por la Escuela Técnica Superior de Ingenieros Navales de Madrid (1981). En 1982 se incorporó a TECNOS, Garantía de Calidad, S.A., desarrollando trabajos de gestión de documentación en la C.N. Laguna Verde (Méjico). En 1985 ingresó en NUCLENOR como Jefe de la Sección de Garantía de Calidad de la C.N. Santa María de Garoña, ocupándose de la implantación del Sistema de Garantía de Calidad. En la actualidad es Jefe del Grupo de Mantenimiento de la C.N. Santa María de Garoña.



Martín REGAÑO URETA es Ingeniero Industrial por la Escuela Técnica Superior de Ingenieros Industriales de Bilbao. En 1974 ingresó en Iberduero participando en el montaje eléctrico de la Central Nuclear de Lemóniz. Desde 1981 a 1984 colaboró con el departamento de Ingeniería de Nuclenor en el desarrollo del "Systematic Evaluation Program". Desde 1984



Javier MIER DEL CASTILLO es Ingeniero de Caminos, Canales y Puertos, promoción de 1975 de la Universidad de Santander y Master en Dirección de Empresas de Construcción por la Universidad Politécnica de Madrid. Trabajó, desde 1975 a 1977, como Profesor Ayudante de Cálculo de Estructuras Metálicas en la Cátedra de Estructuras de la Escuela Técnica Superior de Ingenieros de Caminos, Canales y Puertos de Santander. Desde 1976 trabaja en NUCLENOR, S.A. en el Área de Ingeniería y Proyectos, siendo en la actualidad Jefe de la Sección de Obra Civil del Grupo de Proyectos.