

# PROGRAMA NFIR IV DE INVESTIGACIÓN Y DESARROLLO DE MATERIALES PARA EL COMBUSTIBLE NUCLEAR

M.A. MONTES - J. IZQUIERDO

El Programa Nuclear Fuel Industry Research (NFIR) se inicia bajo el liderazgo del Electric Power Research Institute (EPRI) en 1982 con la participación de usuarios, fabricantes de combustible y laboratorios de investigación de Europa, América y Asia. En él se persigue la mejora en el conocimiento del comportamiento de los materiales del combustible y de los componentes del núcleo, y que éste revierta en un combustible fiable en unas condiciones de operación cada vez más restrictivas. En este artículo se presentan los resultados más significativos obtenidos de las tres primeras fases del Programa y se describe en detalle la fase cuarta que, con seis años de duración, comienza a finales del año 1998.

## INTRODUCCIÓN

Los esfuerzos realizados para optimizar el uso del combustible son cada vez mayores. Los márgenes con los que las centrales operan se han visto disminuidos debido a la necesidad de reducir los costes asociados al combustible y de minimizar los requisitos para su almacenamiento en piscina. Esto hace que la preocupación de las centrales se centre en aspectos de operación más restrictivos como son: mayores quemados de descarga, alargamiento de ciclos, aumento de potencia y modificaciones de la química del primario, lo que conlleva un profundo conocimiento del comportamiento de los materiales del combustible para mantener una fiabilidad casi perfecta por las altas repercusiones económicas y de imagen que tiene un fallo en servicio.

En este contexto es importante la existencia de un programa de investigación y desarrollo a largo plazo que garantice el uso seguro y fiable de los materiales del combustible para reactores de agua ligera. Con tal fin se inicia en 1982 bajo el liderazgo del Electric Power Research Institute (EPRI) el Programa Nuclear Fuel Industry Research (NFIR), con la participación de usuarios (centrales nucleares), fabricantes de combustible y laboratorios de investigación de Europa, América y Asia.

El Programa NFIR persigue el conocimiento del comportamiento de los materiales del combustible y de los componentes del núcleo y que éste sea compartido por la industria nuclear. Proporciona, además, un marco de colaboración que cubre de manera importante las necesidades asociadas a las demandas descritas, que difícilmente podrían ser soportadas financieramente de manera individual.

## ANTECEDENTES

El Programa NFIR arranca en su primera fase en el año 1982 con una participación de 31 organizaciones y un presupuesto de 2.7 M\$. En 1986 se inicia la segunda fase con 39 organizaciones y un presupuesto de 3.8 M\$. Empezando en 1992 la tercera fase del Programa con una participación de 46 organizaciones provenientes de 14 países y un presupuesto de 5.7 M\$.

Son numerosos los beneficios y logros alcanzados en los proyectos desarrollados en cada una de estas tres fases, de entre ellos cabe destacar los siguientes:

- Se han medido las propiedades térmicas en ausencia de irradiación del óxido de uranio y del óxido de uranio-gadolinio (a altas temperaturas y con concentraciones de hasta el 10% en peso de óxido de gadolinio).

- Se ha estudiado la relación entre el fenómeno de corrosión bajo tensión asistida por irradiación (IASCC) del Inconel 718 y de los aceros inoxidable AISI 304 y AISI 348, y los cambios que tienen lugar tanto microestructurales como microquímicos en borde de grano, como consecuencia de dicha irradiación.

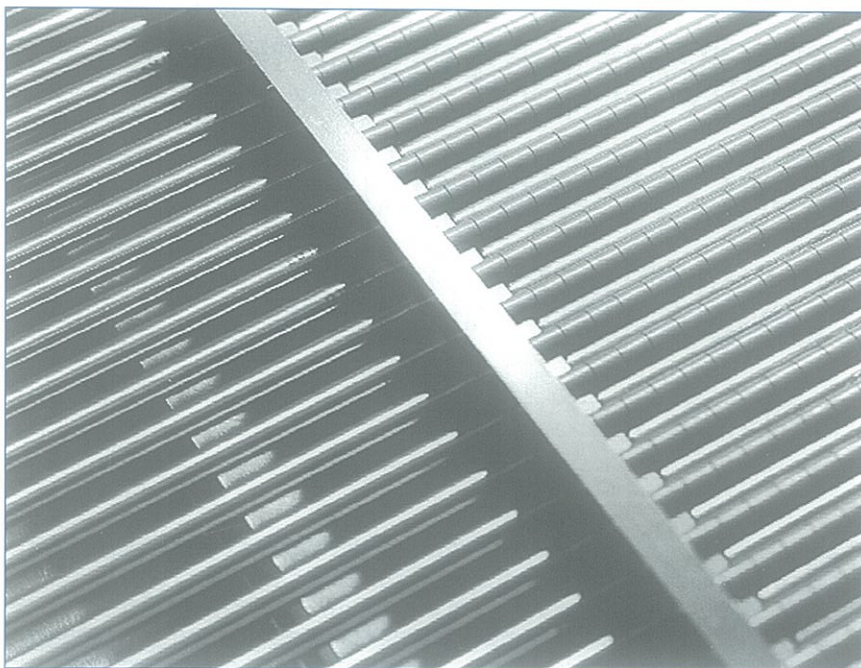
- Se han completado las medidas de la difusividad térmica para la determinación de la conductividad térmica en óxido de uranio y óxido de uranio y gadolinio irradiados para diferentes valores de quemado.

- Se ha caracterizado la pérdida de ductilidad en material de vaina irradiado hasta 52 MWd / KgU y de tubo guía con concentraciones de hidrógeno de hasta 1600 ppm.

- Se ha obtenido por primera vez información experimental sobre la conductividad de las capas de óxido de circonio sobre segmentos de vaina irradiados.

- Se ha profundizado en el fenómeno de recuperación de la conductividad en óxido de uranio y óxido de uranio y gadolinio con objeto de mejorar la comprensión de los factores que afectan la degradación de la conductividad en combustible con alto quemado.

- Se ha intensificado en el conocimiento de los mecanismos de captura de hidrógeno en aleaciones de circonio



Proceso de introducción de pastillas en vainas combustibles

y documentado procedimientos de recubrimiento superficial para minimizarla

#### PROGRAMA NFIR IV

La Fase IV del programa NFIR se inicia a finales del año 1998 teniendo prevista una duración de seis años al igual que las fases anteriores. El presupuesto con el que se ha establecido la viabilidad del programa es de 9 M\$ y, hasta la fecha, hay un total de 45 organizaciones involucradas. Por parte española, IBERDROLA y ENUSA, que se incorporaron al programa NFIR en su tercera fase, han formalizado su participación en NFIR IV.

Los proyectos de investigación que se han aprobado entre las diferentes organizaciones miembro se han dividido en dos grupos: aleaciones de circonio y materiales del combustible (óxido de uranio y óxido de uranio y gadolinio)

Los proyectos principales establecidos dentro del grupo de aleaciones de circonio son:

##### **Caracterización de la distribución de hidrógeno en vainas combustibles**

El hidrógeno generado durante la corrosión de la vaina combustible y que se incorpora a la misma tiene una importancia fundamental en su integridad física. Hasta ahora es bien conocida la formación de hidruros radiales en la vaina y la aparición subsiguiente de una zona altamente hidrurada en la interfase óxido-metal. Esta zona altamente hidrurada,

que tiene un efecto detrimental y limita claramente su comportamiento en servicio, puede verse enmascarada en los análisis químicos realizados sobre la totalidad del espesor. En este proyecto se pretende ampliar y reforzar la línea ya iniciada por algunos investigadores sobre la caracterización de hidrógeno en zonas perfectamente localizadas y conocidas de la vaina, mediante técnicas avanzadas como calorimetría de barrido diferencial (DSC), análisis de infrarrojos por transformada de Fourier (FTIR) o difracción de Rayos-X (XRD).

##### **Respuesta de las vainas combustibles ante transitorios**

Los organismos reguladores han puesto de manifiesto su preocupación sobre el comportamiento del combustible ante transitorios del tipo RIA y LOCA, en este sentido la NRC americana en colaboración con otros organismos reguladores ha iniciado un programa experimental en Argonne National Laboratory (ANL) para ensayar material de vaina bajo el tipo de transitorios descrito. Dentro de este contexto, se ha considerado la puesta en marcha de un programa independiente y proactivo sobre la respuesta de las vainas de combustible con altos quemado en condiciones de RIA y LOCA. El objetivo principal es la generación, a partir de segmentos de vainas de combustible, de las curvas tensión-deformación y los valores de deformación de rotura en función de la concentración de hidrógeno y/o de los niveles de quemado.

#### **Determinación de crecimiento y creep en reactor de los tubos guía**

Los fenómenos de crecimiento y creep en material estructural de los elementos combustibles ha centrado la atención de la industria nuclear a raíz de los problemas recientes de inserción incompleta de barras de control, experimentados en algunas plantas europeas y americanas. El objetivo del proyecto es el estudio de los mecanismos responsables del arqueado de los tubos guía. Para ello se realizará una medida sistemática de crecimiento en presencia o no de cargas aplicadas sobre diferentes materiales de tubos guía irradiados y no irradiados; y de creep en muestras sometidas a condiciones PWR de irradiación y termohidráulicas a través de las modificaciones en el momento flector aplicado.

#### **Estudio del comportamiento a fractura de vainas combustibles, tubos guía y barras de agua**

La realización en NFIR III de un proyecto completo para determinar las propiedades a tracción uniaxial y biaxial en material de vaina y tubos guía con y sin irradiación a diferentes concentraciones de hidrógeno, ha evidenciado la necesidad de completar estos resultados con los de propiedades a fractura. La determinación del valor de la tenacidad a fractura  $K_{IC}$  en tubos de pared delgada es en general muy complicada. Variables de importancia crítica para la realización de estos ensayos son el diseño de la muestra, el método de carga, la presencia de grietas y las velocidades de deformación empleadas, variables todas ellas que deben de ser debidamente seleccionadas para la finalización con éxito de dichos ensayos.

El proyecto aborda medidas sistemáticas de tenacidad a fractura ( $K_{IC}$ ) o resistencia a la propagación de grietas (Integral-J) sobre material de vaina combustible irradiado y no irradiado, tubos guía y barras de agua en presencia o no de carga adicional de hidrógeno.

##### **Minimización mediante recubrimientos superficiales de la captura de hidrógeno en vainas combustibles**

Además de la importancia que tiene la adecuada caracterización del hidrógeno en las vainas de combustible en zonas perfectamente localizadas, es clave la minimización de la captura de hidrógeno de cara a la mejora del comportamiento en servicio. Las medidas de potenciales de corrosión electroquímica llevadas a cabo dentro de NFIR III han revelado que

mediante determinados recubrimientos superficiales se puede minimizar dicha captura. Este proyecto se completaría además con la verificación del adecuado comportamiento de estos recubrimientos en material con diferentes espesores de corrosión mediante ensayos en autoclave y en un lazo experimental.

### **Corrosión localizada en vainas combustibles en las proximidades de las rejillas**

El interés suscitado recientemente por este fenómeno ha hecho que se haya propuesto la realización de un proyecto dentro de NFIR IV para tratar de dilucidar las variables o aspectos que gobiernan este fenómeno, aparecido en elementos combustibles con rejillas completas o en parte de Inconel.

Los aspectos que se consideran, conjunta o separadamente, causa posible de esta corrosión localizada son: el acoplamiento galvánico entre componentes disímiles, la química del refrigerante, los crudos, las condiciones termohidráulicas, los fenómenos de radiólisis o las variabilidades del propio material. En este proyecto se propone el estudio sistemático de cada una de estas variables.

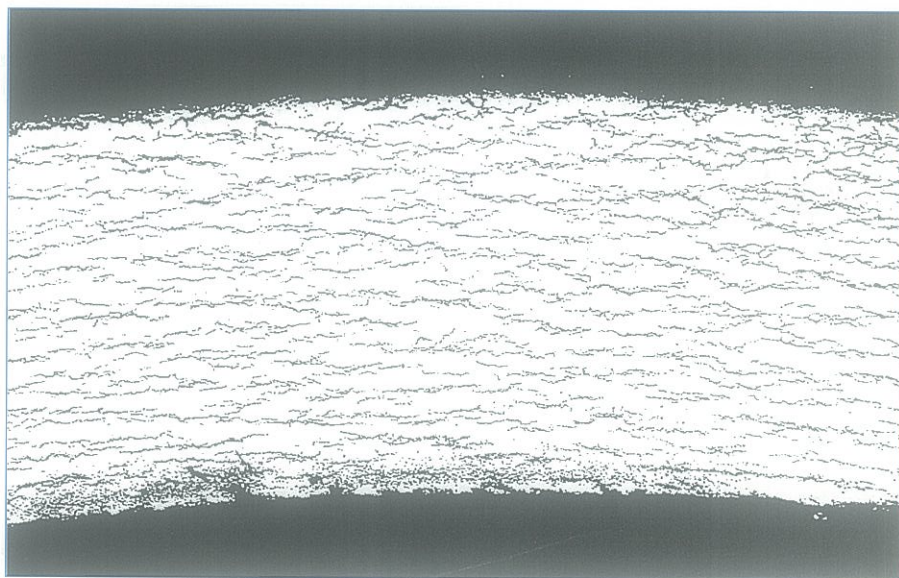
Dentro del segundo grupo (materiales del combustible) se han establecido los siguientes proyectos principales:

### **Nuevo programa de irradiación para materiales del combustible**

Actualmente existe una carencia importante de material de combustible con altos quemados debido a la demanda elevada habida para programas internacionales de investigación entre los que se incluye NFIR. El proyecto consistiría en introducir diferentes tipos de materiales de combustible (con diferentes tamaños de grano, MOX, óxido de uranio y óxido de gadolinio, etc...) en segmentos que serían irradiados en el reactor de Halden. Sobre este material se realizarán posteriormente medidas de propiedades y caracterizaciones post-irradiación.

### **Determinación del calor específico del óxido de uranio y del óxido de uranio y gadolinio**

Para determinar la conductividad térmica del combustible a través de la difusividad térmica y de la capacidad calorífica, es fundamental el conocimiento preciso de ambas propiedades. En NFIR II se realizó la caracterización de la difusividad térmica del óxido de uranio y del óxido de uranio y de gadolinio, caracterización completada en NFIR III con el estudio de los mecanismos de recuperación de la



Micrografía óptica de una vaina de Zircaloy tras un ensayo de hidruración

difusividad térmica con la temperatura y el tiempo. Para NFIR IV está previsto realizar la determinación del valor de la capacidad calorífica evaluando efectos de temperatura, quemado y redistribución de los productos de fisión.

### **Mejora en el conocimiento de la periferia de la pastilla**

A medida que se alcanzan quemados elevados en el combustible, comienza a formarse una zona periférica (RIM) con alta porosidad. La degradación acelerada de la conductividad y el aumento de la liberación de los gases de fisión son fenómenos que se dan en esta zona que han empezado a jugar un papel fundamental en los ensayos relacionados con accidentes del tipo RIA.

Dentro de NFIR IV la idea sería conocer efectos separados de diferentes variables en ensayos de laboratorio en condiciones próximas a las del RIA. Para ello se pretende dar diferentes enfoques, entre los que destacarían la determinación del efecto del tamaño de grano en fabricación en la formación de la región periférica y la evolución de la liberación de los gases de fisión en condiciones de presión hidrostática elevada. Otro enfoque diferente consistiría en determinar la conductividad térmica de la zona periférica en combustible irradiado, o medir la liberación de gases de fisión sobre discos irradiados isotérmicamente en NFIR II.

### **Ensayos para determinación de la conductividad térmica del material del combustible en reactor**

En la determinación de la conductividad térmica de las pastillas existen incertidumbres asociadas a la conductancia en el huelgo pastilla-vaina y al papel que

juega la recuperación de la difusividad térmica en ensayos fuera de reactor. Se puede decir que un método ideal para determinar la conductividad del combustible es aquel que permite la determinación de la temperatura en dos posiciones perfectamente definidas (centro del combustible y vaina) eliminando de forma experimental las incertidumbres asociadas a la conductancia en el huelgo.

En este proyecto se pondría a punto en una primera etapa un procedimiento de ensayo que elimine las incertidumbres asociadas a la conductancia en el huelgo, para pasar a continuación a realizar ensayos en autoclave o en lazos y finalizar efectuando ensayos con irradiación en un reactor experimental.

### **Oxidación del óxido de uranio en condiciones de barra fallada**

Es sobradamente conocido el fenómeno de oxidación del combustible cuando entra vapor en el interior de una barra fallada. Esta oxidación produce el aumento en la temperatura de la pastilla y la liberación de los gases de fisión. Dado que la reacción vapor-óxido de uranio es muy lenta para temperaturas de menos de 600°C, se piensa que puede haber mecanismos de oxidación del combustible gobernados por fenómenos de radiólisis que explicarían las oxidaciones medidas en muchas barras falladas y no degradadas. La información disponible a temperaturas de menos de 600°C no es del todo clara, hecho que además se ve afectado por el papel que juega la presencia de hidrógeno.

La aproximación que se persigue en NFIR IV consiste en realizar experimentos fuera de reactor para estudiar la cinética de oxidación del  $\text{UO}_2$  en mezclas vapor-hidrógeno a alta presión en un rango de

*Pasa a la página 33*

temperaturas entre  $400 \div 600^{\circ}\text{C}$ , y continuar con ensayos en un reactor experimental y posterior caracterización en celdas calientes.

## CONCLUSIONES

Desde su comienzo en 1982, el Programa NFIR ha permitido mejorar el conocimiento del comportamiento de los materiales del combustible, vainas y componentes del núcleo.

Esta información solo es posible mediante programas de investigación y desarrollo a largo plazo donde fabricantes y usuarios compartan conocimientos técnicos y experiencias con vistas a tener beneficios comunes: optimizar el uso de combustible en operación y su fiabilidad con costes razonables; beneficios que a nivel de participantes individuales sería difícil obtener pues no resultarían económicamente rentables. En este sentido se puede decir que NFIR es un programa modelo que ha servido de referencia para otros programas internacionales.

La participación de IBERDROLA y ENUSA en el programa NFIR en la fase III y en la fase IV que ahora se inicia, permite aportar una visión completa de las necesidades de la industria nuclear española en el área de los materiales para el combusti-

ble nuclear y recibir una respuesta satisfactoria a estas necesidades.



· **JAIME IZQUIERDO GÓMEZ** es Licenciado en Ciencias Físicas por la Universidad Complutense de Madrid. Ingresó en HIDROELECTRICA ESPAÑOLA en 1967. Actualmente es responsable de la Unidad de Tecnología de Materiales, encuadrada en los Servicios Técnicos de Producción de IBERDROLA. Es misión de esta Unidad, analizar los materiales, estudiar la causa raíz de fallos y averías, recomendar las mejores técnicas para su uso y reparación, e impulsar el proceso de continua innovación.



· **MIGUEL ÁNGEL MONTES NAVARRO** es Ingeniero Industrial, especialidad metalurgia. Ingresó en ENUSA en el año 1989. Presta sus servicios en la actualidad en el Grupo de Tecnología de Materiales y Suministros del Departamento de Ingeniería del Producto, en el que es responsable de la supervisión técnica de subcontratistas de componentes para la fabricación de elementos combustibles BWR. Participa, así mismo, como representante de Ingeniería en la cualificación de los procesos de unión por soldadura y de las inspecciones asociadas que tienen lugar en las instalaciones de ENUSA en Juzbado y de su seguimiento en producción.