

ENVEJECIMIENTO DE LA VASIJAS Y DE LOS INTERNOS DEL NÚCLEO DE LOS REACTORES TIPO LWR

D. GÓMEZ BRICEÑO - J. LAPEÑA - M. SERRANO

La mayoría de los fenómenos degradatorios no fueron tenidos en cuenta en la etapa de diseño, por lo que deben ser manejados a posteriori, lo que conlleva una pérdida de disponibilidad de las plantas

En este artículo se discute el estado actual del conocimiento sobre la fragilización por irradiación que sufre la vasija a presión de los reactores nucleares y sobre la corrosión bajo tensión asistida por irradiación (IASCC), que afecta a los componentes internos del núcleo. Se presta especial atención a la influencia de la fluencia neutrónica en los procesos de IASCC, a las alteraciones provocadas por la irradiación en los materiales y a sus consecuencias en la susceptibilidad a este fenómeno. En cuanto a la degradación de la vasija, se hacen notar los avances en la aplicación de la Master Curve en la evaluación de la integridad estructural de la vasija. Así mismo se ponen de manifiesto los aspectos en los que es necesario seguir investigando, y la importancia del envejecimiento de los materiales en la gestión segura y fiable de la operación de las plantas.

Most of the degradation mechanism of nuclear components were not included on the design so they have to be treated "a posteriori", and that imply a loss of capacity.

In this paper the, state of the art on the reactor pressure vessel neutron embrittlement and on the irradiation assisted stress corrosion cracking that affects internal components, are explained. Special attention is devoted on the influence of the neutron fluence on IASCC process, on the material alterations promoted by irradiation and their consequences on the susceptibility to this phenomenon. Regarding the reactor pressure vessel degradation, this paper discuss the application of the Master Curve on the structural integrity evaluation of the vessel. Other aspects related to further developments are also mentioned and the importance of a good materials ageing management on the operation of the plant is pointed out.

INTRODUCCIÓN

A lo largo de la operación los materiales sufren un proceso de envejecimiento como consecuencia de su ex-

posición a las condiciones de operación. La mayoría de los problemas no fueron anticipados en la etapa de diseño y, en particular, en los códigos no existe una consideración adecuada del efecto del ambiente en los materiales. La fragilización por irradiación de los aceros de vasija es una excepción.

Los procesos de degradación tienen que ser manejados a posteriori, lo que conlleva una pérdida de disponibilidad de las plantas. Las condiciones actuales de operación de muchas plantas con ciclos más largos y mayores factores de carga aumentan el número potencial de fallos, el riesgo de paradas no programadas y el aumento de costes de operación y mantenimiento. Por tanto, la operación fiable y segura de las plantas descansa cada vez más en una adecuada gestión del envejecimiento de los materiales o, de otro modo, en el entendimiento de los procesos de degradación.

En este artículo se van a tratar dos componentes críticos para la gestión de la operación como son los internos del núcleo y la vasija a presión de los reactores. Se discutirán las diferencias existentes en el entendimiento de los procesos que les afecta, IASCC en el caso de los internos y fragilización por irradiación en el caso de la

vasija y las repercusiones que esto tiene en la capacidad de gestión de su envejecimiento.

COMPONENTES INTERNOS DE VASIJAS

Los componentes internos de la vasija de los reactores tipo LWR pueden sufrir un proceso de corrosión bajo tensión potenciado por la irradiación conocido como IASCC (Irradiation Assisted Stress Corrosion Cracking). Este modo de degradación da lugar a agrietamientos de morfología intergranular similares a los asociados al bien conocido proceso de corrosión bajo tensión, origen de los agrietamientos encontrados en la zona afectada por el calor de soldadura en los aceros inoxidables austeníticos (materiales sensibilizados), en reactores tipo BWR. Sin embargo, las grietas atribuidas a IASCC aparecen también en materiales recocidos, no sensibilizados, y en reactores tipo PWR.

Los procesos de IASCC se manifiestan cuando los materiales han acumulado una fluencia neutrónica superior a un valor umbral. Este valor está en torno 0.5×10^{21} n/cm² ($E > 1$ MeV), en las condiciones oxidantes, típicas de los

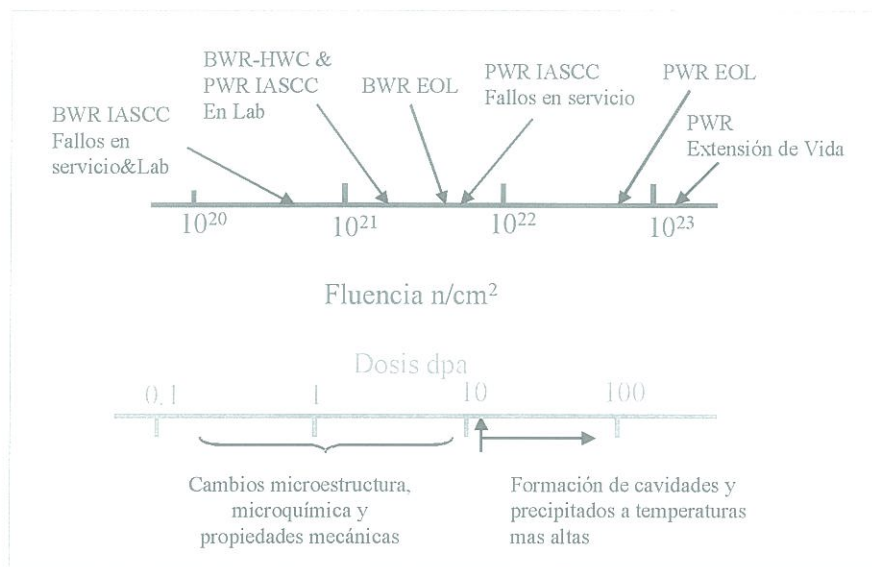


Figura 1. Efecto de la fluencia neutrónica en la susceptibilidad a IASCC de los aceros inoxidables austeníticos.

reactores del tipo BWR, siendo menor para los materiales sensibilizados térmicamente. A semejanza de lo que ocurre en un proceso típico de corrosión bajo tensión, el ambiente y el estado de tensión de los componentes influyen en su susceptibilidad a IASCC. Así, la fluencia umbral es mayor en los medios reductores propios de los reactores tipo PWR y se sitúa en 2×10^{21} n/cm² ($E > 1$ Mev). La figura 1 elaborada por Bruemmer [1] refleja la influencia de la fluencia neutrónica en el daño que sufren las aleaciones austeníticas y su efecto en la susceptibilidad a IASCC.

Como se ha mencionado anteriormente, este modo de degradación afecta a distintos componentes en los reactores tipo BWR ("control rod cladding", "core shroud", etc) y en los reactores tipo PWR ("baffle former bolts"). En el caso de los reactores tipo BWR, los agrietamientos suelen estar asociados a las soldaduras verticales y horizontales del "core shroud", fabricados de acero inoxidable AISI-304 o 304L. Debido a la baja fluencia a la que están sometidas estas soldaduras, los fallos han sido atribuidos a IGSCC (Intergranular Stress Corrosion Cracking) y justificados por la sensibilización del material provocada por el proceso de soldadura, conjuntamente con la existencia de tensiones residuales. Sin embargo, este mecanismo no justifica los agrietamientos observados en componentes fabricados de 304L, en los que no se produce la sensibilización del material. Por otro lado, en los reactores tipo PWR, se han detectado grietas intergranulares en los

"baffle former bolts", fabricados de 316 trabajado en frío o de 347, no sensibilizado. Este tipo de degradación se detectó por primera vez en 1989, en un "baffle bolt" de Bugey 2, fabricado de 316 trabajado en frío. Posteriormente se observó en los "bolts" de Tihange fabricados también en 316 trabajado en frío. Recientemente, se han detectado grietas similares en "bolts" fabricados de 347 procedentes de reactores americanos. Estos componentes están sometidos a una fluencia elevada que hace que se sobrepase la fluencia umbral en los primeros ciclos de operación.

Como consecuencia de su exposición a la radiación neutrónica, los componentes internos de los reactores que están usualmente fabricados de aceros inoxidables austeníticos tipo 304, 316 o 347 sufren modificaciones en su microestructura, su microquímica y sus propiedades mecánicas. La irradiación produce defectos y agrupaciones de defectos en la matriz de los materiales, altera la red de dislocaciones, los bucles de dislocaciones y las estructuras "channels" de las mismas, dando lugar a un endurecimiento del material ("radiation hardening"), con el consiguiente aumento del límite elástico y la disminución de la ductilidad y de la tenacidad del material. Asimismo, produce cambios en la estabilidad de las segundas fases precipitadas tales como γ' (Ni₃Si) y en la composición local cerca del borde de grano, de los precipitados y de las agrupaciones de defectos. Por otro lado, la microquímica del borde de grano se modifica por un proceso conocido como segregación

por irradiación (Radiation Induced Segregation, RIS) que da lugar a un empobrecimiento en Cr, Fe, Mo y Mn y a un enriquecimiento en Ni, Si y P. Además, la radiación neutrónica también afecta a la química del agua. Todos los efectos observables de la irradiación en los materiales presentan tendencias similares en función de la dosis acumulada, lo que hace difícil la identificación de un mecanismo controlante.

Durante un tiempo, el empobrecimiento en Cr producido por RIS se consideró como la causa de los agrietamientos intergranulares atribuidos a IASCC. Esta hipótesis estaba avalada por la similitud observada en la influencia de la química del agua en los materiales sensibilizados sometidos a IGSCC y en los materiales irradiados recocidos expuestos a IASCC. Sin embargo, esta hipótesis no explica las observaciones de IASCC en medios reductores típicos de PWR o de BWR operando con adiciones de hidrógeno, en los que el empobrecimiento en cromo no provoca IGSCC en aceros sensibilizados no irradiados.

Por otro lado, como ya se ha mencionado, el efecto más evidente de la irradiación en la microestructura de los materiales es su endurecimiento y es conocido que al aumentar el límite elástico de los materiales por trabajado en frío aumenta la velocidad de crecimiento de grietas, observándose, también, este efecto en las aleaciones austeníticas irradiadas. Esta observación sugiere que el endurecimiento, independientemente cual sea su origen, puede ser un parámetro determinante en la susceptibilidad a IGSCC. Sin embargo, distintos experimentos indican que el endurecimiento por sí solo no justifica los agrietamientos atribuido a IASCC, aunque si parece que puede favorecer la iniciación de la grietas. Por tanto parece que la causa de los procesos de IASCC es debida, probablemente, a una combinación de los factores principales o a efectos hasta ahora no considerados. Uno de estos efectos es el cambio en el modo de deformación observado en los materiales irradiados, como consecuencia de la interacción de las bandas de deformación localizadas con los bordes de grano [2].

Los distintos programas internacionales de investigación que se están llevando a cabo en torno a este proceso pretenden de modo global mejorar el entendimiento de los procesos de IASCC, establecer un mecanismo y encontrar soluciones de mitigación o materiales alternativos. Para alcanzar estos objetivos se están llevando a cabo distintas actividades que incluyen

examen de componentes procedentes de plantas en operación, obtención de datos de velocidad de crecimiento de grietas, estudios de susceptibilidad a IASCC de materiales irradiados y determinación de la tenacidad en materiales irradiados, entre otras.

Tanto en el marco del Programa CIR, coordinado por EPRI, como en otros programas de investigación llevados a cabo por otras organizaciones como Westinghouse y EdF se ha dedicado un esfuerzo importante al examen y caracterización de componentes agrietados procedentes de plantas tipo BWR y PWR. En particular, el programa CIR ha llevado a cabo un examen exhaustivo de muestras procedentes de "baffle former bolts" agrietados y no agrietados de Tihange y muestras procedentes del "core shroud" de Oyster Creek. La información obtenida sobre las semejanzas y particularidades de los materiales irradiados en BWR y PWR, y en particular las diferencias observadas en el modo de propagación de las grietas, contribuirán de modo decisivo al establecimiento de un mecanismo de IASCC. Por otro lado, del examen llevado a cabo por Westinghouse de algunos "bolts" no agrietados procedentes de plantas americanas se confirma que los materiales con mayores fluencias acumuladas presentan mayor susceptibilidad en condiciones de PWR y concluyen que la obtención de fracturas intergranulares en ensayos SSRT en laboratorio, es un índice de la susceptibilidad de los materiales a IASCC, pero que no puede considerarse por sí sola para predecir el comportamiento de los "bolts" en planta [3].

Hasta ahora se han llevado a cabo más ensayos para el estudio de la susceptibilidad a IASCC que para la obtención de datos de velocidad de crecimiento de grietas, y en la mayoría de los casos con materiales irradiados hasta dosis no muy elevadas. Sin embargo, en la actualidad existe una cierta unanimidad en que estos últimos son más adecuados no solo para la obtención de velocidades de propagación de grietas, necesarios para la evaluación de la integridad estructural, sino también para dilucidar el papel jugado por alguno de los parámetros considerados claves y discutidos en los párrafos anteriores. No obstante, los ensayos de velocidad de crecimiento de grietas necesitan muestras de un cierto tamaño que en el caso de materiales altamente activados, varias decenas de dpa, presentan dificultades para su manejo requiriendo instalaciones muy específicas, lo que contribuye al elevado coste de estos estudios.

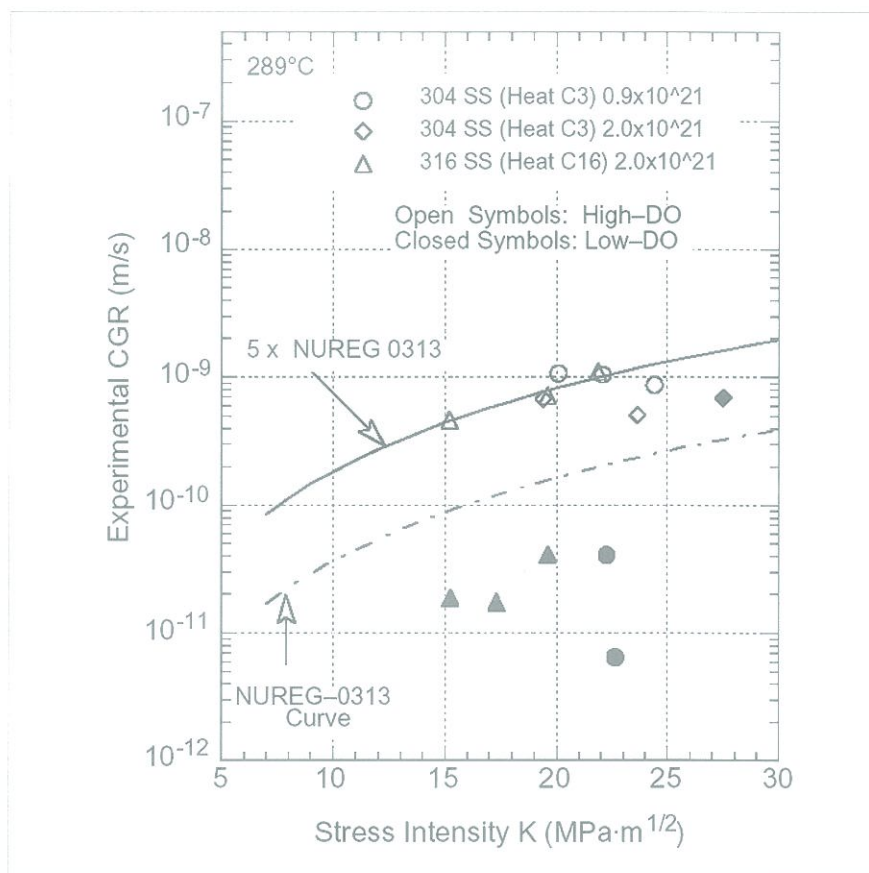


Figura 2. Velocidad de crecimiento de grietas de aceros inoxidables austeníticos irradiados.

En la figura 2 puede observarse que las velocidades de crecimiento de grieta para aceros inoxidables austeníticos irradiados, en condiciones de BWR, son cinco veces mayores que las de la curva del NUREG 0313, así como el efecto beneficioso de los medios con bajo oxígeno [4].

En la actualidad existe una tendencia a la modelización no solo del daño por irradiación de los materiales sino también de la iniciación y propagación de grietas. La información disponible sobre los efectos de la irradiación en los materiales y en la química del agua, en la susceptibilidad a IASCC, permite abordar con cierta confianza este tipo de trabajo pero sin duda es necesario continuar con la realización de experimentos sistemáticos para tratar de identificar los parámetros claves en la susceptibilidad de los materiales a IASCC y las sinergias existentes entre ellos. La elaboración de un mecanismo para IASCC que justifique tanto los fallos encontrados en BWR como en PWR y la generación de modelos que permitan extrapolar a altas dosis se consideran imprescindibles para soportar la gestión y los planes de extensión de vida de las centrales en operación.

VASIJIA

La principal causa de envejecimiento de los materiales de la vasija es la fragilización por irradiación neutrónica. Como ya se ha comentado anteriormente, el bombardeo neutrónico produce endurecimiento por acumulación de defectos que viene acompañado por un aumento del límite elástico y la resistencia mecánica, y por una reducción en la elongación uniforme y total. Estos efectos son comunes para los materiales de internos (aceros inoxidables austeníticos) y los materiales de vasija (aceros ferríticos). La principal diferencia entre los dos tipos de materiales es que los aceros ferríticos presentan una zona de transición frágil-dúctil (DBTT, Ductile-Brittle-Transition-Temperature) que se desplaza hacia temperaturas más altas debido a la irradiación neutrónica, lo que puede provocar que en condiciones de accidente, o incluso de transitorios, el material de la vasija se comporte de forma frágil y se produzca un fallo catastrófico de la vasija.

El método de evaluación de la integridad de la vasija, para evitar un fallo frágil, se basa en conceptos de

mecánica de fractura y se describe en el Código ASME y en las 10 CFR 50. Básicamente consiste en determinar la temperatura de referencia RT_{NDT} para indexar las curvas de tenacidad de fractura K_{IR} y K_{IC} , dependiendo de las condiciones de operación, que vienen descritas en el Apéndice G del código ASME. Por otra parte se calculan los factores de intensidad de tensiones K_I en función de la temperatura para cada condición y defecto postulado. La condición de que K_I sea siempre inferior a la tenacidad de fractura determinará los límites de presión y temperatura admisibles.

El valor de RT_{NDT} se va desplazando hacia temperaturas más altas como consecuencia de la irradiación. La determinación del valor de ese desplazamiento (ΔRT_{NDT}) en función de la fluencia neutrónica, y por lo tanto de la tenacidad de fractura, se realiza aplicando la Regulatory Guide 1.99, Rev. 2, a través de dos caminos:

- Sin ensayos experimentales a partir de la composición química del material

$$\Delta RT_{NDT} = (CF) f^{(0,28 - 0,10 \log f)}$$

donde:

CF es un factor químico, función del contenido en Cu y Ni, que viene dado en tablas tanto para material base como para material de soldadura.

f es la fluencia en la pared interior de la vasija, en unidades de 10^{19} n/cm²

- Mediante el ensayo de las probetas Charpy incluidas en las cápsulas de vigilancia.

$$\Delta RT_{NDT} = \Delta T_{41J}$$

donde ΔT_{41J} es el desplazamiento de la curva Charpy con la irradiación al nivel de 41 J de energía.

Cualquiera de los dos caminos son métodos indirectos, uno mediante correlaciones empíricas y el otro debido a que se relacionan dos propiedades del material de naturaleza diferente, es decir, se relaciona la variación de la curva de tenacidad de fractura estática, K_{IC} , con la variación de la curva de impacto de carácter dinámico, a través del ΔT_{41J} . Esta estimación indirecta se debe a que no es posible incluir en las cápsulas de vigilancia probetas de mecánica de fractura de tamaño suficientemente grande como para suministrar datos válidos siguiendo la normativa

tradicional. Desde que se desarrolló esta metodología (años 70) hasta hoy en día, la teoría de mecánica de fractura ha ido evolucionando, con lo que actualmente existen herramientas para la determinación directa de la tenacidad de fractura más fiables y exactas. Cabe destacar la metodología propuesta por K. Wallin [5] según la cual es posible obtener datos válidos de tenacidad de fractura con el ensayo de probetas de pequeño tamaño. Además, establece que la variación de la tenacidad de fractura con la temperatura de los aceros ferríticos puede describirse de una forma genérica de la forma:

$$K_{IC(med)} = 30 + 70 \exp(0.019(T - T_0))$$

La curva así determinada se denomina "Master Curve". Como puede observarse, esta curva está indexada a una temperatura de referencia T_0 como lo está la curva ASME a RT_{NDT} , pero la diferencia es que la temperatura de referencia T_0 está relacionada directamente con la tenacidad de fractura, cosa que no ocurre con RT_{NDT} . El procedimiento de obtención de la temperatura de referencia T_0 se encuentra recogido en la norma ASTM E 1921.

La utilización de la Master Curve para la evaluación de la tenacidad de fractura de material de vasija irradiado ha ganado gran aceptación en la comunidad científica internacional [6, 7], puesto que permite obtener valores de tenacidad de fractura mediante el ensayo de las probetas tipo Charpy, previo su pre-agrietamiento, incluidas en las cápsulas de vigilancia.

Recientemente ha sido aplicada en los Estados Unidos en la Central Nuclear de Kewaunee como una excepción a los requisitos del 10 CFR 50, Apéndice G, Apéndice H y Sección 50.61 [8]. Esta excepción se basa en la aplicación del Code Case N-629 del ASME, sección XI [9].

El ASME Code Case N-629 admite la posibilidad de utilizar datos de tenacidad de fractura para definir una nueva temperatura de referencia denominada RT_{T0} , definida como:

$$RT_{T0} = T_0 + 35 \text{ }^{\circ}\text{F}$$

Donde el valor de T_0 se determina mediante el ensayo de tenacidad de fractura de las probetas incluidas en las cápsulas de vigilancia. RT_{T0} puede ser usada como una temperatura de referencia alternativa a RT_{NDT} para las curvas ASME de tenacidad de fractura.

Actualmente se encuentra en proce-

so de revisión por parte de la NRC el uso de la temperatura de referencia RT_{T0} en otras centrales nucleares norteamericanas, como son Beaver Valley [10] y Point Beach [11]. Por otra parte ya se ha aceptado por parte de la NRC como alternativa a RT_{NDT} de las soldaduras tipo Linde 80 en estado de recepción [12]. Sin embargo, las discusiones entre la NRC y las plantas que han solicitado la aplicación de la Master Curve son largas y en algunos casos no se ha llegado a un acuerdo.

El principal beneficio de este procedimiento, es que se puede determinar el valor de RT_{T0} directamente en muestras irradiadas en vez de medir las propiedades iniciales y añadir un salto en la temperatura de transición. La utilización de RT_{T0} puede suponer en algunos casos una considerable mejora en cuanto a alejarse del límite de temperatura PTS y obtener unas curvas de operación de la vasija menos restrictivas. Así por ejemplo en la figura 3 se puede ver que se ganan 57 °C para la operación cuando al curva de tenacidad de fractura se indexa a RT_{T0} en vez de a RT_{NDT} [11].

En el programa de investigación del OIEA CRP V "Surveillance Programmes Results Application to Reactor Pressure Vessel Integrity Assessment" se ha intentado clarificar algunos de los puntos abiertos en la aplicación de la Master Curve en los programas de vigilancia. En concreto, se ha cuantificado el efecto de la geometría de probeta en el valor de T_0 para el material JRQ.

Por otra parte, dentro de este proyecto internacional, se ha redactado una Guía del OIEA en donde se pretenden clarificar aspectos de la Master Curve como son los relacionados con la determinación experimental de T_0 , el tratamiento de material no-homogéneo, la definición de márgenes e incertidumbres asociadas, entre otros. La participación del CIEMAT en este proyecto se enmarca en el PCI a través del proyecto "Aplicación de los resultados de los programas de vigilancia a la evaluación de la integridad estructural de la vasija de presión de los reactores nucleares" cofinanciado por el CIEMAT y CSN-UNESA.

Los programas de investigación futuros relacionados con la vasija se centran por una parte en responder a las cuestiones que se han puesto de manifiesto en las solicitudes de aplicación de la Master Curve de las Plantas USA, y por otra en la simulación computacional de los efectos de la irradiación multi-escala, en tiempo y dimensión, es decir, desde la colisión de un neutrón con la red cristalina hasta la simulación de la tenacidad de fractura.

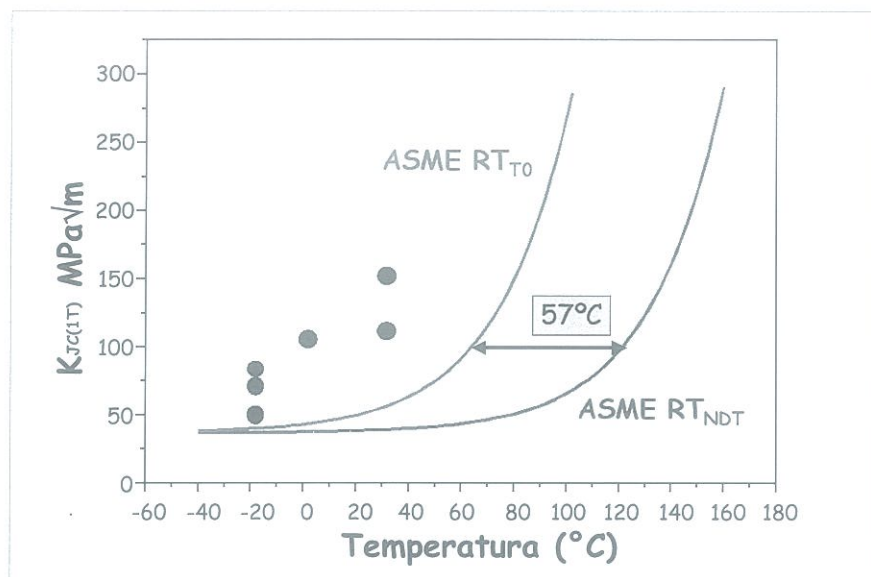


Figura 3. Argumento de modificador desconocido. Comparación de la curva de tenacidad de fractura de ASME indexada a RT_{NDT} y RT_{T0} .

CONCLUSIONES

En los dos modos de degradación discutidos, el efecto de la irradiación es un parámetro determinante en el envejecimiento de los materiales cuya influencia aumenta a medida que aumenta la operación de los reactores y será, asimismo, determinante en el alargamiento de la operación.

El conocimiento disponible sobre ambos procesos es claramente diferente, lo que justifica que la gestión del envejecimiento de la vasija esté adecuadamente resuelta y que el trabajo que queda por hacer esté encaminado a la disminución de los conservadurismos y a la optimización de la gestión, mientras que en el caso del IASCC, el camino a recorrer hasta llegar a una situación semejante es todavía largo, siendo necesario continuar con los programas experimentales para llegar a un entendimiento suficiente.

El desarrollo actual de la capacidad de cálculo computacional por un lado y la disponibilidad de nuevas técnicas experimentales por otro son una garantía de éxito en el desarrollo de modelos predictivos de los distintos fenómenos degradatorios a tener en cuenta en los programas de extensión de vida.

REFERENCIAS

1. Bruemmer, S.M. 10th Inter. Conf. on Env. Degradation of Materials in NPSWR 2001 Nevada.
2. Was, G. 11th Inter. Conf. on Env. Degradation of Materials in NPSWR 2003 Stevenson.
3. Thomas L.E. 11th Inter. Conf. on Env. Degradation of Materials in NPSWR 2003 Stevenson.
4. Chopra O.K. 11th Inter. Conf. on Env. Degradation of Materials in NPSWR 2003 Stevenson.
5. Wallin K. Engineering Fracture Mechanics 19(6), pp 1085-1093, 1984.
6. Yoon K. K. et al. The 2001 ASME Pressure Vessels And Piping Conference July 23-26, 2001 - Atlanta, Georgia, USA.
7. Rosinski S.T., Hardies R.O., Natishan M.A. NUREG CP 0172 NRC Water Reactor Safety Meeting October 24, 2000.
8. U.S. Nuclear Regulatory Commission. Docket No. 50-305," May 2001.
9. ASME Boiler and Pressure Vessel Code: An American National Standard, Code Case N-629. Section XI, Division 1, American Society of Mechanical Engineers, New York, May 7, 1999.
10. Server W.L. et al. WCAP-15624, November 2001.
11. Server W. L., Pfefferle J. R. Final Report ATI-021-030-2003-1, January 2003.
12. Yoon K.K. BAW-2308 Rev 1, Framatome ANP Document No. 43-2308-0, August 2003.



Dolores GÓMEZ BRICEÑO es Licenciada en Ciencias Químicas. Actualmente es la directora del Programa de Materiales del Departamento de Fisión Nuclear del CIEMAT. Pertenecer a diversos comités internacionales dedicados al estudio de los materiales estructurales y dispone de una larga experiencia en el estudio de la corrosión de componentes nucleares. Ha dirigido diversos proyectos de investigación en el marco del PCI.



Jesús LAPEÑA es Ingeniero Aeronáutico. Actualmente dirige la línea de investigación sobre efectos de la irradiación en las propiedades mecánicas de los materiales estructurales en el Programa de Materiales del Departamento de Fisión Nuclear del CIEMAT. Ha participado en numerosos proyectos internacionales de la OIEA como experto y en proyectos financiados por la Unión Europea.



Marta SERRANO es Ingeniero Industrial de ICAI. Actualmente trabaja como investigadora en el Programa de Materiales del Departamento de Fisión Nuclear del CIEMAT. Ha participado en proyectos internacionales sobre el efecto de la irradiación en las propiedades mecánicas de materiales estructurales.