

Comportamiento de material de vaina PWR altamente irradiado

M. Lloret, J.M. Rey Gayo y F. J. Fernández

CSN, ENRESA y ENUSA están trabajando conjuntamente en proyectos de Investigación y Desarrollo relacionados con el comportamiento de la vaina de ZIRLO fragilizada por hidruros. Las áreas de trabajo son representativas de la vida útil del combustible y del posterior almacenamiento en seco: desarrollo de modelos de disolución/precipitación de hidruros; análisis por elementos finitos de los factores determinantes de la rotura de vaina; ensayos de tracción de vainas fragilizadas mediante carga de hidrógeno; ensayos de tracción uniaxial y en anillo de material irradiado; ensayos de expansión debida a compresión sobre material irradiado; y ensayos de fluencia en condiciones representativas del almacenamiento en seco.

CSN, ENRESA and ENUSA collaborate in Research and Development projects related with the behavior of the hydrided cladding. The task areas represent different conditions for operation and dry storage: development of models for dissolution / precipitation of hydride; modeling the cladding rupture by finite element analysis; axial loading tests for hydrated cladding; axial and ring loading test for irradiated material; expansion due to compression test for irradiated material; and creep tests in dry storage conditions.

INTRODUCCIÓN

El comportamiento mecánico de las vainas de las barras combustibles varía a lo largo de la vida como consecuencia de la oxidación, la hidruración y el daño producido por la irradiación; factores cada vez más determinantes debido al aumento continuado de la eficiencia en las operaciones del reactor.

Teniendo en cuenta que el material de la vaina debe asegurar el confinamiento del material de fisión a lo largo de toda la vida del combustible: operación normal, transitorios de operación, accidentes y su posterior gestión como residuo, incluyendo su transporte y almacenamiento, el CSN, ENRESA y ENUSA están desarrollando programas de investigación nacionales y participando en programas internacionales, cuyo objeto es determinar y cuantificar en la medida del posible las características de la vaina y su respuesta ante las distintas sollicitaciones mecánicas que se pueden producir a lo largo de todo el ciclo del combustible.

La absorción de hidrógeno por parte de la vaina es un factor fundamental en cuanto al comportamiento mecánico de la misma. La consiguiente formación de hidruros, junto con la orientación de los mismos, que puede ser desfavorable respecto a la dirección de las tensiones que soporta la vaina, provocan la fragilización e incluso la fisuración de

la misma. Por ello, varios de los proyectos en curso están orientados al análisis en detalle de procesos relacionados con la morfología, distribución y orientación de los hidruros

PROYECTOS DE INVESTIGACIÓN EN CURSO

El CSN, ENRESA y ENUSA han emprendido en colaboración con la Universidad Politécnica de Madrid, una serie de proyectos de investigación relacionados con la morfología y distribución de los hidruros y su efecto en las características mecánicas de la vaina:

Modelización de la difusión asistida por la temperatura del hidrógeno en la vaina, incluyendo su precipitación y disolución

El mecanismo de corrosión de las vainas está ligado a la formación de hidruros metálicos en el seno de la aleación, que aparecen como consecuencia de la difusión del hidrógeno a través de la red cristalina de la misma. El hidrógeno que migra por difusión y está disuelto en la aleación se caracteriza por gozar de una alta movilidad en el seno de la red cristalina y se conoce como hidrógeno en fase α . La concentración elevada de forma local de este hidrógeno, puede dar lugar a precipitados de hidruros de muy baja movilidad que se conocen



M. LLORET. Ingeniero Industrial ETSII Madrid. Trabaja en ENUSA desde 1990. Actualmente se dedica fundamentalmente a actividades relacionadas con almacenamiento en seco de combustible gastado.



J.M. REY GAYO. Licenciado en Ciencias Físicas, trabaja en el CSN desde 1985. Actualmente se dedica a la evaluación de análisis de accidentes en aspectos neutrónicos, termomecánicos y termohidráulicos.



F. JAVIER FERNÁNDEZ. Ingeniero Industrial ETSII Madrid e Ingeniero Civil Físico (U. Libre de Bruselas). Departamento de Ingeniería de Residuos de Alta Actividad (RAA) de ENRESA, habiendo trabajado anteriormente en el Grupo ABB, Belgonucleaire.

como hidrogeno en fase δ . La precipitación de hidruros altera las propiedades de la red cristalina, dando lugar a la aparición de sobretensiones locales y a la degradación de las propiedades mecánicas de las vainas de combustible.

Partiendo de los trabajos de Sawatzky y Vogt, así como de los de Freund y Planman, se ha desarrollado la modelización y simulación numérica del fenómeno anteriormente descrito.

Se presenta en la siguiente figura los resultados preliminares obtenidos para un ejemplo de difusión de hidrógeno en una muestra cilíndrica de 1.2 cm de diámetro y 2.5 cm de longitud de Zircaloy-2, cargada inicialmente de forma homogénea con 130 ppm de hidrógeno y sometida posteriormente a un gradiente de temperatura. La concentración total de hidrógeno calculada al cabo de 34 días, se ajusta a los valores medidos experimentalmente (figura 1).

Los casos sobre los que se comprueba el buen ajuste de la modelización realizada, incluyen además de casos de la literatura pública, una barra irradiada durante 5 ciclos en una central PWR española, sobre la cual se ha realizado en celdas calientes la caracterización de la distribución de hidrógeno. EL modelo permitirá también analizar la redistribución en sentido longitudinal del hidrógeno durante el almacenamiento en seco, para una temperatura de 400°C y un tiempo de almacenamiento de 50 años.

En el futuro y una vez conseguido el ajuste del modelo en una dimensión, se abordará el análisis en dos y tres dimensiones.

Modelización del proceso de rotura de la vaina, en base a modelos avanzados de mecánica del daño

Este proyecto se compone de una fase experimental, en la que se realizarán ensayos de tracción anular sobre probetas de ZIRLO sin irradiar previamente hi-

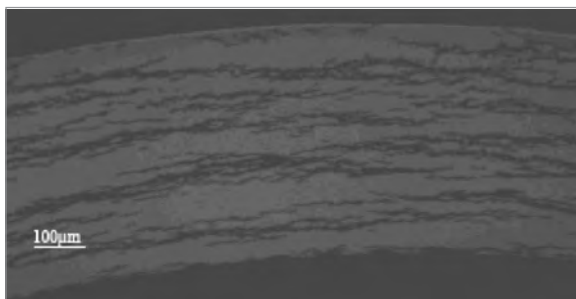


Figura 2

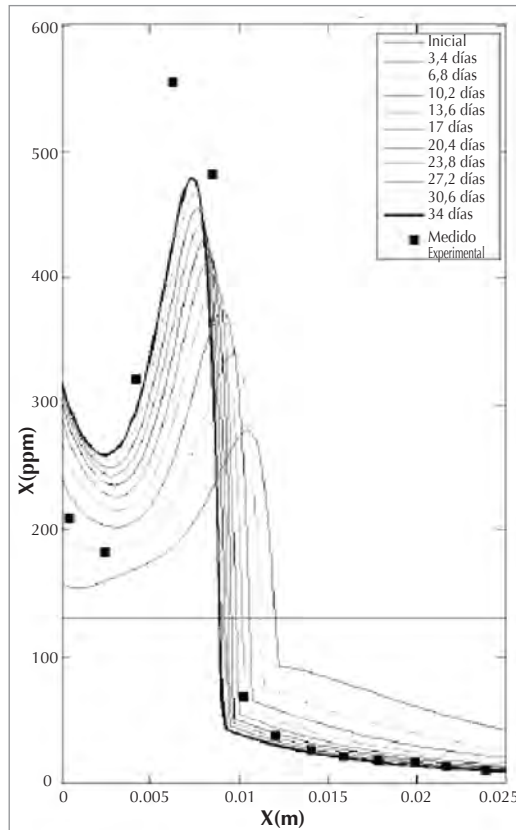


Figura 1: Concentración de uranio.

druradas, al objeto de obtener la deformación y la tensión local en la probeta.

La hidruración de las probetas se realiza mediante carga catódica en un medio básico (solución 0.1 M de KOH), siendo la probeta de ZIRLO el electrodo negativo, y un hilo de platino el electrodo positivo. En función de la densidad de corriente aplicada, la temperatura de la disolución y el tiempo de exposición, se obtiene un contenido de hidrógeno determinado. Posteriormente, se somete la probeta a un tratamiento térmico de homogenización al objeto de conseguir una distribución uniforme del hidrógeno en la probeta.

Mediante un analizador de hidrógeno, tras calentar y analizar la conductividad térmica del gas, se ha determinado el contenido de hidrógeno de las probetas. También se ha identificado, mediante difracción de rayos X que las fases de hidruros precipitados corresponden en su mayoría con la fase δ .

Se presenta a continuación una de las probetas cargada con 320 ppm de hidrógeno, en la que se aprecian las vetas de hidruros distribuidos circunferencialmente (figura 2).

Adicionalmente se ha diseñado un sistema de carga para realizar los ensayos de tracción anular, al objeto de lograr una distribución de tensiones lo más homogénea posible en la región entallada. La deformación local en la zona entallada se mide por medio de un sistema de extensometría sin contacto, basado en la interferometría Speckle.

Se ha realizado la calibración del sistema de interferometría sin contacto. La comparación de las medidas realizadas sin contacto y por medio de un extensómetro resistivo son prácticamente coincidentes, tal y como se observa en la figura 3.

Han sido realizados ensayos de tracción con vainas de ZIRLO sin irradiar y sin hidrurar, siendo el objetivo futuro realizar estos ensayos sobre vainas hidruradas con diferentes contenidos de hidrógeno, así como modelizar con elementos finitos tanto del proceso de carga como el comportamiento a rotura de las vainas.

El análisis microscópico de las superficies de fractura permitirá identificar los micromecanismos de rotura (clivaje, cuasi-clivaje, crecimiento y coalescencia de huecos) y determinar el papel de los hidruros

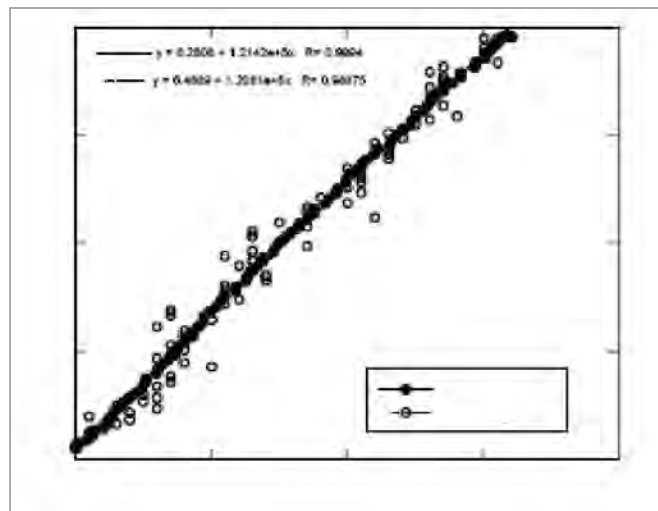


Figura 3

en dichos mecanismos, así como la incorporación del daño asociado a modelos mecánicos macroscópicos de fallo de Mecánica de Fractura.

Modelización numérica de los ensayos de fluencia y su extensión al secado y almacenamiento del combustible gastado

Disponiendo de los modelos de fluencia de aleaciones de Zirconio de la literatura publica, se está realizando el ajuste de dichos modelos a los resultados obtenidos en distintos ensayos de fluencia realizados sobre ZIRLO irradiado en las CCNN Españolas.

A título ilustrativo se incluye la siguiente figura, en la que se presenta el campo de deformación efectiva de fluencia calculado después de 300 horas a 4000°C con una sobrepresión interior de 10 MPa, considerando una grieta producida en el anillo de hidruros (figura 4).

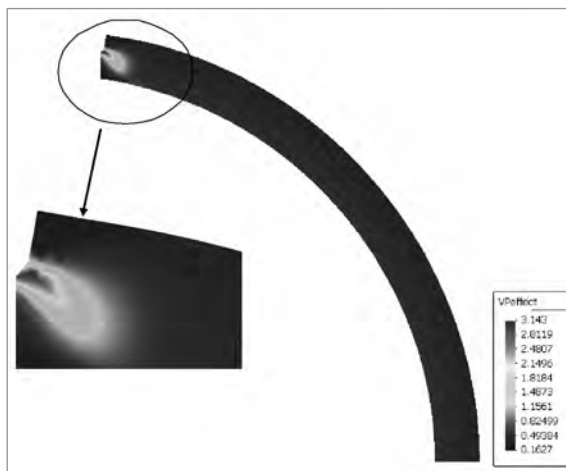


Figura 4

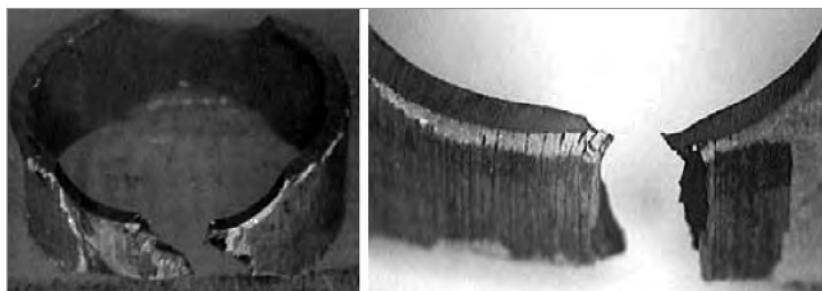


Figura 5



Figura 6

ENSAYOS REALIZADOS Y RESULTADOS OBTENIDOS

Se presentan a continuación una serie de ensayos mecánicos realizados sobre material ZIRLO, irradiado durante 5 ciclos en Vandellós II, alcanzado un quemado medio de barra de 67000 MWd/tU y espesores de óxido relevantes:

Ensayos representativos de las condiciones normales de operación y transitorios operacionales a velocidades de deformación del orden de 10^{-4} s^{-1} .

Se han realizado varios ensayos de tracción en anillo en probetas de ZIRLO con espesores de óxido relevantes, a temperatura representativas de la operación en reactor, 385°C, obteniéndose deformaciones totales del 4 al 8%. La presentación macroscópica de la rotura ha seguido las líneas de deslizamiento a

45° (dúctil) en algunos casos y en otros, ha sido perpendicular a la tensión existente en la probeta (figura 5).

A esta misma temperatura, se han realizado 2 ensayos de tracción uniaxial en probetas con 100 micras de espesor de óxido, obteniéndose elongaciones totales iguales o superiores al 1%. La rotura, en este caso se ha producido de forma frágil y coincidente con las zonas de interfase pastilla-vaina, en las que

la acumulación de hidrógeno es más elevada (figura 6).

1. Ensayos a velocidades de deformación rápida, representativos de accidentes. Ensayos de Expansión debida a Compresión

El ensayo de Expansión Debida a Compresión se realiza aplicando una carga de compresión muy rápida en una pastilla polimérica. La expansión diametral de esta pastilla genera una interacción mecánica pastilla-vaina que produce la deformación del tubo. De esta manera se pueden obtener velocidades de deformación en la vaina del mismo orden que las que se producen durante un accidente de inserción de reactividad, RIA (velocidades de deformación del orden de 1 s^{-1}). Adicionalmente, el ensayo permite medir la densidad de energía crítica de deformación, CSED, parámetro que está siendo propuesto como criterio de rotura por interacción mecánica pastilla-vaina (PCMI) durante el RIA.

La temperatura de los ensayos, 280-340°C, también ha sido representativa de la temperatura de la vaina durante la etapa inicial del RIA. Debido a que la ductilidad de la vaina disminuye con la temperatura, estas temperaturas son envolventes de las que se producen en este accidente en condiciones PWR.

Se han realizado 8 ensayos en probetas de ZIRLO altamente irradiado con espesores de óxido entre 90 y 120 micras a temperaturas de 280°C, 320°C y 340°C. En todas las probetas se ha producido la rotura, iniciándose en la zona de máxima deformación, y propagándose axialmente, en algunos casos a lo largo de toda la probeta, tal como puede observarse en la figura 7.

Los valores de la deformación alcanzada en la zona de inicio del fallo, varían entre 3 y 8,5%. Esta ductilidad de la vaina queda también soportada por el examen metalográfico y fractográfico de la zona de rotura.

En efecto, en las dos probetas examinadas metalográficamente se observa que la rotura se inicia en la dirección radial, seguida de una rotura aproximadamente a 45°, en la dirección de máximo cortante, indicativo de la ductilidad del material en esta zona (figura 8).

Las fractografías de las secciones radiales realizadas indican la existencia de una zona interior con nucleación, crecimiento y coalescencia de cavidades, lo que indica un mecanismo dúctil de rotura. En la zona exterior se observa una zona de rotura frágil, correspondiente al anillo de hidruros, y una zona de transición entre las dos anteriores (figura 9).

En todos los casos analizados hay que destacar que la rotura está asociada al



Figura 7

máximo de la suma el espesor local de óxido y del anillo de hidruros.

2. Ensayos de fluencia a velocidad de deformación lenta, inferiores a 10^{-9} s^{-1} , representativos de los procesos de carga y almacenamiento en seco del combustible gastado

El hecho de que las piscinas de algunas de las centrales nucleares españolas hayan alcanzado el 100% de su ocupación, o lo vayan a alcanzar en la próxima década, junto con la experiencia cada vez

más amplia y favorable del comportamiento de los elementos combustibles gastados durante el almacenamiento en seco, implica un aumento importante de este tipo de almacenamiento en España.

Durante los primeros años del almacenamiento en seco, la temperatura de la vaina es elevada y existe una relevante presión diferencial interior-exterior, por lo que se espera que el mecanismo de rotura fundamental durante el almacenamiento en seco podría ser la fluencia del material de la vaina. Por ello, se han realizado ensayos de fluencia en condiciones de tensión y temperatura conservadores respecto a las condiciones del almacenamiento, siendo las velocidades de deformación del orden de 10^{-10} s^{-1} .

Se han realizado 5 ensayos de fluencia de hasta 1000 horas de duración, a presiones internas superiores a las habituales de fin de vida del combustible y temperaturas iguales o inferiores a la máxima permitida por la Interim Staff Guidance 11 de la US NRC. Los resultados obtenidos indican una elevada ductilidad del ZIRLO de alto quemado, incluso con espesores de óxido de 120 micras.

En una de las probetas se ha alcanzado la rotura, siendo la deformación a rotura del 17%. La rotura ha sido frágil, perpendicular a la superficie externa de la probeta, en la zona del óxido y del anillo de hidruros. En el resto del material, en el que la concentración de hidruros es menor, la rotura es dúctil ya que se produce a lo largo de las líneas de deslizamiento a 45° .

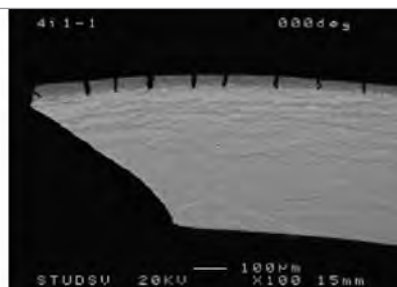
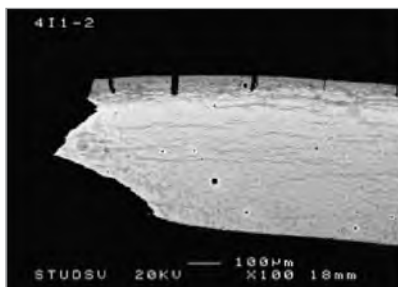


Figura 8

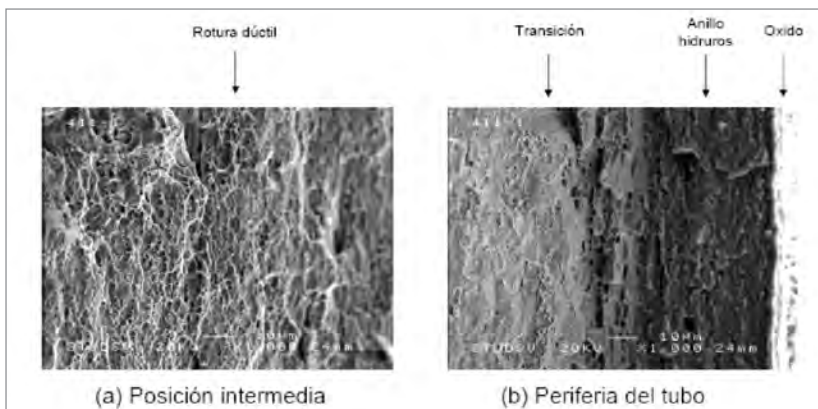


Figura 9

Las metalografías indican la existencia de grietas en el espesor de óxido, que en algunos casos, aunque no han llegado a ser penetrantes han progresado radialmente con una fractura frágil en la zona del anillo de hidruros (figura 10).

Los resultados de los ensayos realizados indican que en el caso del material analizado, con hidruros orientados circunferencialmente y concentrados en el exterior del vaina, la ductilidad de la vaina se mantiene elevada a altos quemados y con espesores de óxido relevantes, bajo sollicitaciones mecánicas representativas de la operación normal, accidentes y almacenamiento en seco.

La variable que controla el proceso de rotura en los distintos ensayos es el espesor del óxido y del anillo de hidruros.

Estos resultados son coherentes con los que se están obteniendo en los distintos programas internacionales, como son el de CABRI Lazo de Agua, el Studsvik Cladding Integrity Project, ambos de la OCDE/NEA y el programa de seguridad japonés, ALPS, donde se están realizando ensayos integrales sobre este mismo material de CN Vandellós II, y ponen de relieve el elevado interés de los proyectos de investigación en curso indicados anteriormente.

CONCLUSIONES

El CSN, ENRESA y ENUSA están participando en distintos proyectos de investigación nacionales e internacionales, al objeto de analizar el comportamiento mecánico de la vaina de ZIRLO altamente irradiada, con espesores de óxido representativos.

El efecto de los hidruros es un parámetro importante que se trata de modelizar.

Los ensayos realizados son representativos de distintos tipos de sollicitaciones mecánicas a las que puede verse sometida la barra combustible incluso durante el almacenamiento en seco.

Se puede concluir el buen comportamiento mecánico del ZIRLO altamente irradiado en base a la elevada deformación a rotura alcanzada en los ensayos. Cabe destacar, además, que el mecanismo macroscópico de fallo no depende del tipo de sollicitación, observándose en todos los casos una fractura frágil en el óxido y en el anillo de hidruros, que propaga de forma dúctil en el resto del material. Es por ello que el espesor de esta zona (óxido + anillo de hidruros) parece un parámetro fundamental en el comportamiento mecánico de la vaina, lo que corrobora la importancia de los esfuerzos analíticos de los proyectos en curso.