

“Revisitando” la vasija a presión del reactor para largos tiempos de operación

J. Lapeña, M. Serrano, G. de Diego y
M. Hernández Mayoral

La vasija a presión del reactor (VPR) es uno de los componentes clave en los planes de operación a largo plazo, principalmente porque es un componente no reemplazable, al menos con la tecnología actual. La integridad estructural de la vasija se evalúa dentro de los llamados programas de vigilancia, en donde se determina la degradación de las propiedades mecánicas debida a la irradiación neutrónica. Desde los primeros diseños de las VPR y de sus programas de vigilancia en los años 60-70, actualmente todavía en vigor, se han producido grandes avances en el conocimiento del daño por irradiación y en los métodos de evaluarlos. Así, se recomienda el uso de forjas en vez de placas en la construcción de la vasija con el propósito de reducir el número de soldaduras, más sensibles a la irradiación neutrónica, utilizando además materiales de partida con menor contenido de impurezas, principalmente cobre. En cuanto a los métodos de evaluación, actualmente se dispone de la metodología para evaluar la tenacidad de fractura directamente ensayando las probetas *charpy* de las cápsulas de vigilancia, utilizando la *Master Curve*.

En este artículo se presentan las últimas actividades del Ciemat relacionadas con los problemas asociados al uso de grandes forjas, como son la aparición de las *hydrogen flakes* de la vasija de Doel 3 y sus implicaciones. También se resumen los avances dentro de los proyectos de investigación europeos PERFORM60 y LONGLIFE, en el conocimiento del daño por irradiación en materiales de bajo contenido en cobre, tradicionalmente considerados poco sensibles a la irradiación, y el uso de la *Master Curve* en los programas de vigilancia avanzados.

The reactor pressure vessel (RPV) is one of the key components of nuclear power plants, especially for long time operation. It is a non-replaceable component, at least with current technology. The structural integrity of the vessel is evaluated within called monitoring programs where the degradation of the mechanical properties due to neutron irradiation is determined. From the first designs of the RPVs and monitoring programs in the years 60-70, currently still in force, there have been major advances in the understanding of radiation damage and methods of evaluation. Thus, it is recommended the use of forgings instead of plates in the construction of the RPVs in order to reduce the number of welds, more sensitive to neutron irradiation, and using starting materials with less content of impurities, particularly copper. To evaluate the embrittlement of RPVs the Master Curve methodology is currently used, through the testing of the charpy specimens from the surveillance capsules, to determine the fracture toughness.

This article summarizes the last activities of CIEMAT into the European research projects LONGLIFE and PERFORM60, about the knowledge of radiation damage in materials with low copper content, traditionally considered less sensitive to irradiation, and the use of the Master Curve in advanced surveillance programs. The activities related to the problems associated with the use of large forgings, such as the appearance of “hydrogen flakes” in the vessel of Doel 3, and its implications, are also presented

INTRODUCCIÓN

En Europa, un tercio de la producción de energía proviene de generación nuclear. La mayoría de las centrales en operación son del tipo de agua ligera, incluyendo las de agua a presión (PWR y VVER) y agua en ebullición (BWR), centrales avanzadas de gas (Reino Unido) y de tipo Candu (Rumania). Cerca del año 2030, la generación de energía nuclear caerá un 50 %, si no se construyen nuevas centrales o se establecen programas de operación a largo plazo. Actualmente se están considerando tiempos de operación de hasta 80 años [1]. Uno de los componentes clave en los periodos de operación a largo plazo es la vasija del reactor y su mecanismo de

degradación más limitante es la fragilización por irradiación a altas fluencias.

PROYECTOS ACTUALES FINANCIADOS POR LA UNIÓN EUROPEA

Ante la necesidad de mejorar el conocimiento del mecanismo de fragilización por irradiación así como el de establecer los programas de vigilancia en periodos largos de operación, se lanzó el proyecto LONGLIFE (*Treatment of Long Term Irradiation Embrittlement Effects in RPV Safety Assessment*) [2] en el año 2010, financiado por el 7º Programa Marco de la Unión Europea y con una duración de cuatro años. El coordinador del proyecto es el HZDR con 15 par-



JESÚS LAPEÑA

es ingeniero aeronáutico. Actualmente dirige la Unidad de Comportamiento Mecánico en la División de Materiales Estructurales del Departamento de Tecnología del Ciemat.



MARTA SERRANO

es ingeniera industrial especialidad mecánica (ICAI, 1991). Doctora ingeniera (ETSII UPM, 2007). Actualmente trabaja como investigadora en la División de Materiales Estructurales del Ciemat.



GONZALO DE DIEGO VELASCO

es doctor por la Universidad Complutense de Madrid en el Departamento de Ciencia de Materiales e Ingeniería Metalúrgica. Actualmente dirige la Unidad de Microscopía y Análisis de Superficie en la División de Materiales Estructurales del Departamento de Tecnología del Ciemat.



MERCEDES HERNÁNDEZ MAYORAL

es doctora en Ciencias Físicas por la Universidad Complutense de Madrid. Actualmente trabaja como investigadora en la División de Materiales Estructurales del Ciemat.

participantes europeos (HZDR, Areva, Serco, AEKI, Ciemat, Tecnatom, NRI, SCK-CEN, VTT, CNRS, CEA, RAB, Rolls-Royce, EDF, UOXXE). Los objetivos del proyecto son:

- La mejora del entendimiento de los fenómenos relevantes para operación a largo plazo.
- La evaluación y mejora de las herramientas de predicción.
- Elaborar una guía para la vigilancia de la fragilización por irradiación a largo plazo.

Para cumplir con estos objetivos, el proyecto está dividido en diferentes paquetes de trabajo que contemplan los siguientes aspectos:

- Condiciones de operación a largo plazo y datos disponibles.
- Microestructura de aceros de vasija irradiados.
- Propiedades mecánicas de aceros de vasija irradiados.
- Análisis de los métodos actuales de evaluación de la fragilización neutrónica.
- Educación y diseminación de resultados
- Guías para vigilancias a largo plazo.
- Colaboración con Rusia.

Dentro del proyecto LONGLIFE, se están caracterizando 16 materiales de vasija irradiados a alta fluencia (incluyendo diferentes flujos neutrónicos) representativos de las centrales europeas en operación, mediante la combinación de diferentes técnicas de exámenes microestructurales: microscopía de transmisión (TEM), microscopía de zona atómica (APT), medidas de dispersión de neutrones a bajo ángulo (SANS), microscopía Auger y aniquilación de positrones. De este modo se dispondrá de información suficiente para evaluar la evolución de la microestructura con la fluencia, la existencia de precipitados ricos en Mn, Si y Ni, el efecto del flujo neutrónico y la posibilidad de segregación de fósforo en borde de grano.

El proyecto también incluye la caracterización mecánica de los mismos materiales irradiados en las mismas condiciones, para así establecer un vínculo entre la microestructura y las propiedades mecánicas.

La División de Materiales Estructurales del Ciemat es la encargada de la coordinación del paquete de trabajo dedicado a la microestructura de aceros de vasija irradiados. También participa en el examen por microscopía de transmisión y microscopía Auger de materiales de vasija irradiados, y en la redacción de guías de vigilancia para largos tiempos de operación.

Como ejemplo de temas específicos abordados por el proyecto cabe destacar la evolución de la microestructura para altas fluencias, que correspondería con largos tiempos de operación. El daño por irradiación se entiende clásicamente co-

mo el endurecimiento por la formación de precipitados ricos en cobre y la producción de daño en la matriz (defectos puntuales). También se tiene que considerar la posibilidad de segregación de fósforo, inducida por irradiación, en borde de grano, mecanismo que provoca una fragilización por irradiación sin endurecimiento asociado. Así, se entendía que materiales de bajo contenido en cobre (que recordemos es una impureza del material) serían inmunes, o al menos presentarían baja sensibilidad a la irradiación neutrónica. Además los defectos puntuales creados por irradiación neutrónica, conocidos como daño en la matriz, eran difícilmente observables a fluencias típicas de final de vida (40 años de operación). Sin embargo, diferentes estudios, principalmente los liderados por B. Odette [3], apuntan la posibilidad de la formación de precipitados (con Mn, Si y Ni) inducidos por irradiación en materiales de bajo Cu, o en materiales de alto Cu para altas fluencias.

En la Figura 1 se puede ver la relación entre la fracción de volumen de precipitados para materiales de bajo cobre (determinada por SANS) y la fluencia

neutrónica [4]. En esta figura se puede observar que una vez superada una fluencia umbral, la presencia de precipitados se acelera considerablemente.

Con la evolución de las técnicas experimentales de microscopía, es posible hoy en día “visualizar” y analizar este tipo de precipitados y también evidenciar la formación de defectos puntuales para altas fluencias.

La Figura 2 muestra una imagen obtenida mediante microscopía electrónica de transmisión (TEM) en un acero de vasija irradiado en cápsulas de vigilancia a muy alta fluencia. En la imagen se observan dislocaciones y con flechas se indican ejemplos de bucles de dislocaciones. Estos son de pequeño tamaño, unos 5 nm, que han sido producidos por la radiación neutrónica y son responsables de parte del endurecimiento del material.

El estudio de materiales irradiados a altas fluencias pasa por el uso necesario de irradiaciones en reactores experimentales, en donde el flujo neutrónico es de más de dos órdenes de magnitud mayor que el existente en un reactor comercial. El efecto del flujo neutrónico en la fragilización por irradiación ha sido debatido extensamente en los últimos años, sin

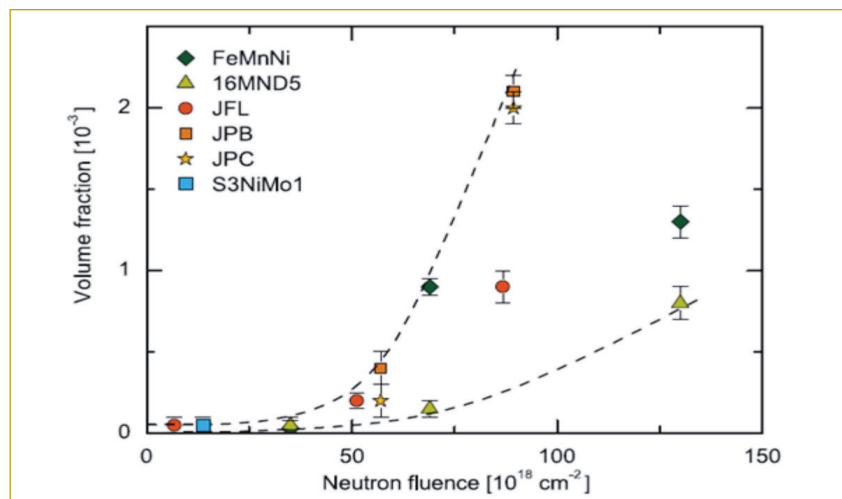


Figura 1. Dependencia de la fracción en volumen de precipitados inducidos por irradiación para materiales considerados de bajo contenido en Cu [A. Wagner 2012].

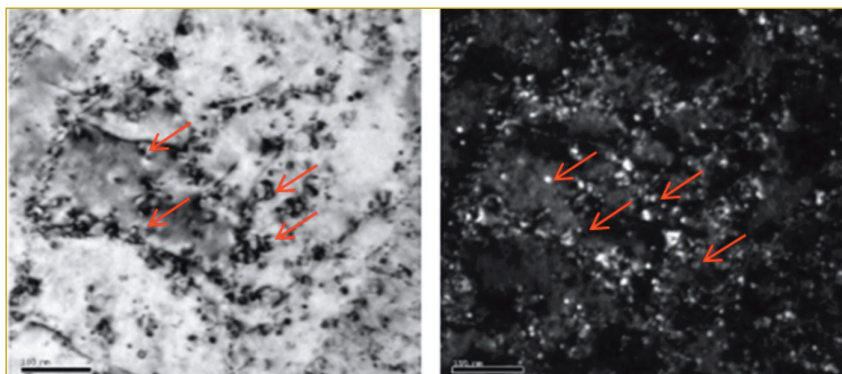


Figura 2. Imágenes TEM de una acero de vasija irradiado, proveniente de una cápsula de vigilancia a una fluencia neutrónica de $90.9 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ ($E > 1 \text{ MeV}$) a 275°C .

haber llegado a un consenso internacional en la comunidad científica. En el proyecto se ha identificado un posible efecto del flujo en el daño en la matriz, presentando los materiales irradiados a bajo flujo (más representativo de la vasija) un daño en la matriz más apreciable que para irradiaciones a alto flujo.

Por otra parte, dentro del proyecto LONGLIFE se ha determinado el valor de la temperatura de referencia T0 siguiendo el procedimiento conocido como *Master Curve* o Curva Patrón, mediante el ensayo de tenacidad de fractura de probetas tipo flexión en tres puntos, incluidas en las cápsulas de vigilancia. La validez de la *Master Curve* (MC) para material altamente irradiado ha sido cuestionada, principalmente por investigadores rusos (Margolin *et al*), proponiendo un método alternativo denominado *Unified Curve* (UC). Los resultados del proyecto LONGLIFE de materiales altamente irradiados apuntan a que ambas metodologías arrojan resultados similares, en cuanto a la forma de la curva de tenacidad de fractura frente a la temperatura, para temperaturas por debajo de la ambiente, y para valores de tenacidad menores de 100 MPam^{1/2} que es el valor que se utiliza como referencia para realizar los cálculos de integridad estructural. Estos resultados ayudan a demostrar que la forma de la *Master Curve* no cambia para materiales altamente irradiados, al menos en el rango de interés para la evaluación de la integridad estructural de la vasija.

Otro proyecto que incluye la vasija del reactor es el PERFORM60 [5], también financiado por el 7º Programa Marco de la Unión Europea, que surge como la continuación del proyecto Perfect (6º Programa Marco). Este proyecto está más focalizado en la simulación computacional multi-escala del daño por irradiación. El proyecto está liderado por EDF y participan EDF, Rolls-Royce, Tractebel, AMEC, Areva-NP GmbH, Areva-NP SAS, SCK.CEN, VTT, CEA, FZD, NRI, Ciemat, BGH2, CNRS, ULB, Armines, UNIMAN, UPC, U-LOUGH y U-Edinburgh.

El objetivo principal del proyecto es el de disponer de una herramienta capaz de predecir el daño por irradiación y el fenómeno de IASCC combinado e integrando diferentes técnicas de simulación computacional. En la Figura 3 se pueden ver las diferentes técnicas computacionales con su escala asociada.

Desde su lanzamiento en 2009, se han alcanzado diversos hitos en los diferentes sub-proyectos. En el dedicado a la vasija, se han identificado e implantado cuatro modelos predictivos de la tenacidad de fractura del material irradiado, así como un modelo de plasticidad cristalina para material irradiado.

En cuanto al grupo de usuarios, se han organizado diversas jornadas para el manejo de las herramientas predictivas, y revisión de la documentación necesaria para validar las simulaciones.

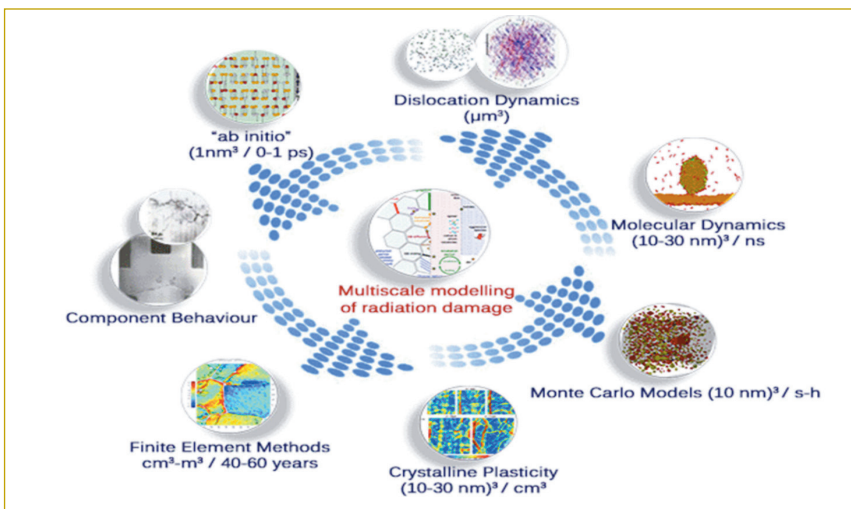


Figura 3. Simulación computacional multi-escala del daño por irradiación [6].

PROBLEMÁTICA DE LA VASIJAS DE LA CENTRAL DOEL 3

Un tema de actualidad referido a la vasija es el de la central nuclear belga Doel 3 [6]. Esta central nuclear comenzó su operación en 1982, mientras que la central análoga Tihange 2 lo hizo en 1983. Ambas centrales son del tipo PWR (*Pressurized Water Reactor*) y son operadas por Electrabel, que es parte del grupo GDF-Suez.

La vasija de presión de ambos reactores está fabricada con virolas forjadas en la parte cilíndrica, más la tapa y el fondo de la vasija. Fueron fabricadas por Rotterdamsche Droogdok Maatschappij (RDM), compañía holandesa, a partir de material suministrado por Krupp. Es importante mencionar que RDM no existe actualmente, habiendo quebrado hace años. El plaqueado y ensamblaje de la parte inferior de las vasijas (las dos virolas del núcleo, el anillo de transición y la placa inferior) fue realizado por Cockerill, mientras que la parte superior (tapa de la vasija y virola de las toberas) lo fue por Framatome, actualmente Areva NP, así como el ensamblado final.

En junio de 2012 se realizó una inspección por ultrasonidos en la vasija de Doel 3, para determinar la posible existencia de grietas bajo el plaqueado. El examen se centró en las dos virolas del núcleo y la soldadura entre ellas. No se encontraron indicios de este tipo de grietas; sin embargo se encontraron indicaciones inesperadas de defectos laminares en el plano circunferencial-axial de la vasija. La propiedad de la planta ordenó una inspección específica de la vasija, notificando al mismo tiempo este hecho al organismo regulador belga, *Federal Agency on Nuclear Control* (FANC).

Una inspección más detallada confirmó la presencia de un gran número de indicaciones laminares en las virolas

del núcleo. La virola inferior del núcleo es la más afectada con un total de 7205 indicaciones, mientras que la superior contiene 857. Han sido detectadas hasta una profundidad de 100 mm desde la superficie interior. Sin embargo la mayoría de ellas se localizan entre 20 mm y 70 mm. Son “quasi-laminares”, paralelas a la superficie, de forma circular y la mayoría de ellas menores de 10 mm. La mayor dimensión detectada es de unos 24 mm de diámetro.

Teniendo en cuenta los defectos encontrados en Doel 3 se decidió realizar en Tihange 2 el mismo tipo de inspección UT durante la parada de septiembre de 2012. Este examen reveló indicaciones similares, aunque en menor medida. Concretamente se observaron 1931 indicaciones en la virola superior del núcleo de la vasija y 80 indicaciones en la virola inferior.

A instancias de FANC se convocó a un grupo internacional de expertos para estudiar el problema. Se formaron tres grupos de trabajo dedicados a técnicas de ensayos no destructivos, origen metalúrgico y causa raíz de las indicaciones, y mecánica de fractura e integridad estructural. El Ciemat se integró en el grupo de trabajo sobre el origen metalúrgico y causa raíz de las indicaciones, dando apoyo y asesoramiento al Consejo de Seguridad Nuclear (CSN).

En el caso de Doel 3 están documentados la mayoría de los pasos de fabricación. Concretamente se conocen los datos del proceso de fabricación de Krupp, como la composición química (hidrógeno en particular) de los lingotes. Sin embargo se han perdido algunos documentos o son ilegibles. El caso más notable es que se ha perdido la documentación detallada del primer tratamiento térmico realizado por RDM (que de acuerdo con algunos documentos fue realizado), una inspección intermedia por UT y algunas especificaciones de RDM. Además el contenido de hidrógeno de la virola inferior del núcleo, que es la más afectada por las grietas, es ilegible en los documentos recuperados.

Tampoco se dispone de los datos del tratamiento térmico realizado en Tihange 2.

Hay que mencionar las particularidades de la fabricación de grandes piezas forjadas. Durante la solidificación de los lingotes de los que se parte se produce una heterogeneidad de las propiedades metalúrgicas del material: segregación positiva, principalmente de carbono, en la cabeza del lingote; segregación negativa concentrada en el pie del lingote, así como “líneas fantasmas”, zonas de segregación localizada enriquecidas en elementos de aleación tales como Mo, Cr, Ni y Mn que se producen por los movimientos de convección que se crean en el metal líquido durante la solidificación. Estos movimientos de convección se generan por la diferente densidad entre el metal líquido enriquecido en elementos de aleación (más ligero) próximo al frente de solidificación y el metal todavía líquido lejos del frente de solidificación (más pesado).

Se ha demostrado que las indicaciones están producidas por *hydrogen flakes*, defectos producidos por hidrógeno. La formación de estos defectos se debe a que el hidrógeno es más soluble en estado líquido que en estado sólido. Asimismo es más soluble en una estructura γ (cúbica centrada en las caras) del tipo austenita que en una estructura α (cúbica centrada en el cuerpo) del tipo ferrita. En la Figura 4 se indican los contenidos de hidrógeno en equilibrio con el hierro a diversas temperaturas. Se observa que el hierro puro fundido a 1539 °C puede disolver 0,0025 % de hidrógeno. Al solidificarse disminuye bruscamente la solubilidad hasta 0,0008 %. Si se sigue enfriando, disminuye aún más la solubilidad, que a la temperatura ambiente es de sólo 0,00012 (1,2 ppm).

En la colada del acero el hidrógeno, en estado atómico, entra en el metal líquido. Durante la solidificación de los grandes lingotes el hidrógeno segrega de forma que las zonas que solidifican las últimas están más enriquecidas en hidrógeno. Durante la refrigeración subsiguiente a la forja el material austenítico se transforma en primer lugar en ferrita en las zonas del material sin segregación o con segregación negativa. Esto conduce a un aumento del contenido de hidrógeno en las zonas que todavía se conservan en estado austenítico: la zona de segregación positiva y las líneas fantasmas. Cuando estas áreas se transforman finalmente en ferrita están sobresaturadas de hidró-

geno. El hidrógeno en estado atómico se recombina entonces en estado molecular y queda atrapado, dando lugar a un aumento de la presión interna que puede producir los defectos.

Se ha dispuesto de virolas rechazadas por contener *hydrogen flakes*, así como de otras con zonas de segregaciones. Después de exhaustivos análisis en los que se han estudiado todos los mecanismos posibles de producción de defectos y la realización de multitud de ensayos mecánicos se ha concluido que el único mecanismo posible de producción de defectos que den las indicaciones detectadas por UT es el de *hydrogen flaking*. La causa es la falta de un tratamiento térmico adecuado de deshidrogenación durante la fabricación de la virola. Este tratamiento se hace después de la forja, enfriando lo suficientemente rápido para evitar segregaciones, hasta por debajo de la temperatura adecuada de transformación de la ferrita, perlita o bainita, pero por encima de la temperatura de transformación a martensita (~ 200 °C). Después de mantener esa temperatura el suficiente tiempo para que se complete la transformación, se calienta hasta 600 – 680 °C y se mantiene a temperatura constante hasta la eliminación del exceso de hidrógeno. Desgraciadamente, como se ha comentado, no hay información sobre este tratamiento térmico en la documentación examinada. Persiste la duda de porqué no se detectaron los defectos en las inspecciones UT y, si lo fueron, porqué no se reportaron. El tamaño individual de los mismos era inferior al tamaño admisible, pero tal número de ellos debería haberse reportado. Dado que la empresa RDM ya no existe no hay posibilidad de aclarar esta contradicción.

La conclusión de los expertos, como se ha dicho, es que la causa de las indicaciones es el *hydrogen flaking*. Se ha comprobado que las propiedades del material, incluso en las zonas afecta-

das, son adecuadas. También que no han propagado durante la operación y que la integridad estructural de la vasija no está afectada. Con estas conclusiones FANC ha aceptado estas conclusiones, dando su aprobación al arranque de las centrales. Este tuvo lugar en junio de 2013 en ambas centrales.

Aunque finalmente las centrales han vuelto a funcionar, todo lo expuesto revela la importancia que el hidrógeno tiene en la fabricación de las grandes piezas forjadas. Hasta ahora no se había considerado que fuera posible la existencia de defectos en operación debidos al hidrógeno, pero ahora hay un debate sobre este tema y sobre la conveniencia, en determinados casos, de inspeccionar la vasija durante alguna operación de recarga. De todas formas hay que tener en cuenta que en la mayoría de los casos se dispone de la documentación apropiada sobre tratamientos térmicos realizados durante la fabricación y sobre las inspecciones UT, que pueden descartar *a priori* estos problemas.

CONCLUSIONES

El tema de la vasija se pensaba que era suficientemente conocido como para no dedicarla más atención en programas de investigación. Sin embargo los resultados del proyecto LONGLIFE están demostrando que hay aspectos no conocidos anteriormente, como la formación de precipitados inducidos por irradiación en materiales de bajo Cu y la aparición de bucles de dislocaciones a altas fluencias y principalmente bajo flujo de irradiación. Por otra parte el proyecto PERFORM60 incorpora las modernas herramientas de simulación computacional capaces de predecir el daño por irradiación, lo que puede redundar en un mejor conocimiento del comportamiento de la vasija. Los avances, a través de estos proyectos, en la comprensión de los fenómenos que influyen en la degradación de las propiedades de la vasija son vitales para los programas de extensión de vida.

Las indicaciones encontradas en las centrales Doel 3 y Tihange 2 han puesto también de manifiesto que pueden surgir problemas inesperados, cuyo estudio y resolución requiere un tiempo y unos recursos importantes.

Se puede concluir que aunque la vasija es uno de los componentes mejor conocidos de una central nuclear es necesario seguir investigando sobre determinados aspectos, así como no bajar la guardia sobre posibles problemas inesperados que pueden surgir. ■

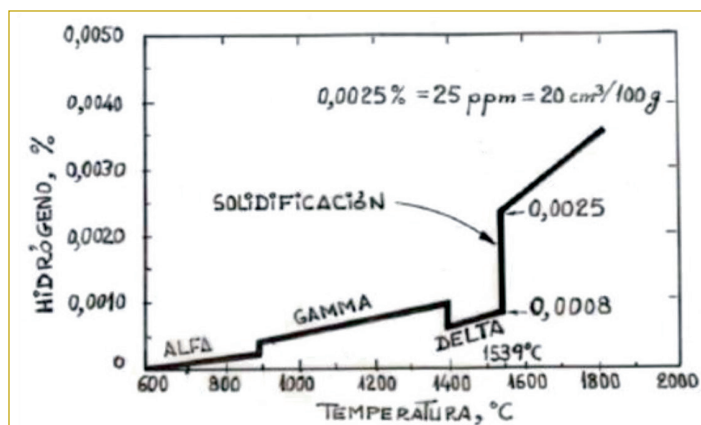


Figura 4. Solubilidad del hidrógeno en Fe en función de la temperatura y el estado alotrópico (austenítico o ferrítico).