

ESTUDIO DEL COMPORTAMIENTO EN FRACTURA DE VAINAS DE COMBUSTIBLE NUCLEAR FRAGILIZADAS POR HIDRUROS.

M.A. Martin-Rengel^(1,2), F.J. Gomez⁽¹⁾, J. Ruiz-Hervias⁽¹⁾, L. Caballero⁽¹⁾, A. Valiente⁽¹⁾

¹Departamento de Ciencia de Materiales, UPM, E.T.S.I. Caminos, Canales y Puertos
Profesor Aranguren s/n, E-28040 Madrid, Spain
E-mail: jr@mater.upm.es

²Consejo de Seguridad Nuclear (CSN)
Justo Dorado 11, E-28040 Madrid, Spain
E-mail: mamartin@mater.upm.es

RESUMEN

En este artículo se ha estudiado, mediante el ensayo de compresión diametral (RCT), el comportamiento mecánico y en rotura de vainas de combustible nuclear de ZIRLOTM hidruradas. El hidrógeno se introdujo en las muestras mediante carga catódica y se precipitó en forma de hidruros circunferenciales mediante un tratamiento térmico. Los ensayos de compresión diametral se realizaron para concentraciones de hidrógeno de 150 a 2000 ppm. Los resultados experimentales obtenidos muestran que este ensayo es particularmente útil para el estudio del comportamiento en fractura de las vainas. Con este fin, se desarrolló un modelo de elementos finitos en el que se implementó la teoría de la fisura cohesiva. Aplicando dicho modelo se ha logrado calcular la energía de fractura de las vainas de combustible nuclear en dirección circunferencial para los distintos contenidos de hidrógeno estudiados a partir de los registros experimentales carga-desplazamiento del ensayo.

Palabras clave: Vaina de combustible nuclear, ensayo de compresión diametral, fractura, fragilización por hidrógeno.

ABSTRACT

The mechanical and fracture behaviour of unirradiated hydrogen-charged ZIRLOTM cladding was studied in this paper by using the ring compression test (RCT). Cathodic charging followed by a thermal treatment was employed to precipitate hydrides in the circumferential direction of the cladding samples. Samples with hydrogen concentrations from 150 ppm to 2000 ppm were prepared and tested using the RCT. The experimental results have shown that this test seems to be particularly useful to study cladding fracture. To this end, a finite element model incorporating the cohesive crack theory was developed. As a result, the fracture energy of nuclear fuel claddings in hoop direction was calculated as a function of the hydrogen concentration from the experimental RCT load vs. displacement curves.

Key words: Nuclear fuel cladding, ring compression test, fracture, hydrogen embrittlement.

1. INTRODUCCIÓN.

Las vainas de combustible nuclear constituyen la primera barrera estructural de contención de las pastillas cerámicas del combustible y de los productos de fisión generados. Estas vainas se fabrican con aleaciones de circonio debido a la transparencia al flujo neutrónico que presenta este material, a sus buenas propiedades mecánicas y a su resistencia a la corrosión en condiciones de operación. En servicio, la reacción de oxidación que tiene lugar en la superficie exterior de la vaina (en contacto con agua o vapor de agua a 300°C), produce hidrógeno, el cual es absorbido por la vaina y se difunde por la misma debido a los gradientes de temperatura existentes. Este hidrógeno precipita en forma de hidruros cuando se sobrepasa su límite de solubilidad. Dichos hidruros de circonio degradan las propiedades mecánicas de las vainas [1-3].

El hinchamiento de las pastillas cerámicas del combustible y los gases de fisión generados a lo largo del ciclo de vida del combustible generan una tensión circunferencial en la vaina. Dado que las vainas son anisótropas, es necesario disponer de ensayos para caracterizarlas mecánicamente en la dirección circunferencial. En la literatura se proponen distintos ensayos para la caracterización mecánica de las vainas en dirección circunferencial, aunque no hay acuerdo sobre cuál de ellos es el mejor [4].

El ensayo de compresión en anillo ha sido utilizado para simular las condiciones a las que se encuentran sometidas las vainas durante algunos transitorios de potencia [5] y para el estudio de reorientación de hidruros en dirección radial [6]. Este ensayo es particularmente atractivo a la hora de trabajar con material irradiado, ya que consume muy poca cantidad

de muestra y las probetas empleadas no requieren de una compleja mecanización.

En este trabajo se han empleado muestras no irradiadas de vainas de ZIRLO™ con distintos contenidos en hidrógeno (0, 150, 250, 500, 1200 y 2000 ppm) fueron sometidas a compresión diametral a 20 °C. El hidrógeno se introdujo en las muestras mediante un procedimiento de carga catódica en disolución básica. Se desarrolló un modelo de elementos finitos para simular los resultados experimentales. Implementando en dicho modelo la teoría de la fisura cohesiva fue posible determinar los parámetros del comportamiento en fractura del material entre ellos la energía de fractura.

2. EXPERIMENTAL

2.1. Material y ensayos.

En este trabajo se emplearon vainas sin irradiar de ZIRLO™ [7] con 9.5 mm de diámetro exterior y 0.57 mm de espesor de pared.

Las probetas utilizadas para los ensayos de compresión diametral fueron tubos de 10 mm de longitud axial cortados de vainas de combustible nuclear.

Los ensayos se realizaron en una máquina universal de ensayos usando una célula de carga de 5 kN. Para comprimir las probetas se utilizaron platos de acero plano paralelos, como se muestra en fig.1. Los ensayos se realizaron con una velocidad de desplazamiento del pistón constante de 0,3 mm/min. Este desplazamiento se midió con un LVDT de ± 5 mm de recorrido.

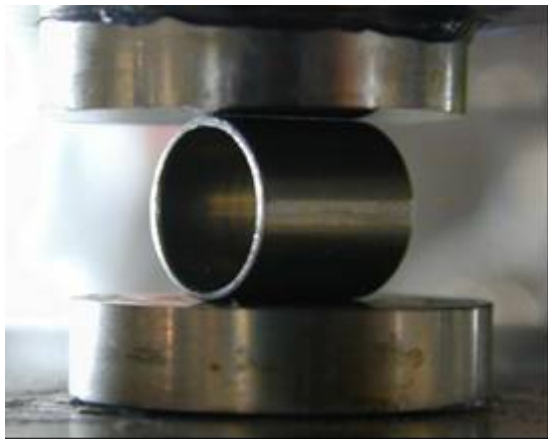


Figura 1. Probeta de compresión diametral al comienzo del ensayo.

Al final del ensayo, la sección transversal de la probeta se deforma adoptando forma de ocho, como puede verse en la figura 2.

2.2. Carga con hidrógeno.

Se desarrolló e implementó una técnica de carga catódica para introducir cantidades conocidas de hidrógeno en las muestras. Este proceso se efectuó en

medio básico, concretamente en una disolución acuosa de KOH. La temperatura de la disolución se mantuvo entre 299 K (150 ppm de hidrógeno) y 353 K (2000 ppm de hidrógeno). Durante el proceso de carga las muestras de ZIRLO™ se emplearon como cátodo de la reacción electroquímica, mientras que como ánodo se empleó un hilo de platino enrollado alrededor de la muestra. La densidad de corriente se mantuvo constante para cada concentración (con valores entre 0.25 y 2.15 A/cm²) variando el tiempo (de 3 a 25 horas) en función de la cantidad de hidrógeno a introducir en la muestra.

Después de la carga catódica, se sometió a las muestras a un tratamiento térmico en atmósfera de Ar. Primeramente se mantuvieron las muestras a 723 K durante 7 horas, para lograr que el hidrógeno se distribuyese de forma homogénea por toda la muestra, y posteriormente, las probetas fueron enfriadas muy lentamente hasta temperatura ambiente (1.2 K/min) para conseguir que el hidrógeno precipitase en forma de hidruros δ , por ser éstos los que se encuentran en condiciones de operación. El tratamiento térmico empleado no modifica el comportamiento mecánico de las muestras. El procedimiento de carga con hidrógeno y la morfología de los hidruros obtenidos se describen detalladamente en [8].



Figura 2. Probeta de compresión diametral al final del ensayo.

La concentración de hidrógeno en las muestras fue medida usando el método de extracción en caliente en corriente de gas inerte con un analizador HORIBA JOBIN-YVON EMGA-621W.

Se realizó un estudio metalográfico de las muestras para observar la morfología y distribución de los hidruros. Las muestras se montaron en resina epoxi y se pulieron usando suspensión de diamante (llegando hasta 1 μ m). En la última etapa de pulido se empleó una mezcla de dispersión de sílice coloidal (0.05 μ m), H₂O₂ (30 % vol.) y HF (40% w) en proporción (50 volúmenes, 10 vol., 1 vol). Después del pulido, las muestras fueron atacadas durante 90 segundos en una disolución de HNO₃ (69 %w), ácido láctico (95 % w) y HF (40 % w) en proporción (48.5 w: 48.5 wt: 3 wt) con el objetivo de revelar los hidruros creados.

2.3. Modelo de elementos finitos

Para simular el ensayo de compresión diametral se desarrolló un modelo de elementos finitos en 2D con el programa comercial ABAQUS v. 6.7-5. Debido a las simetrías geométricas y de carga se consideró solamente un cuarto de la probeta.

Se empleó una malla semiestructurada en la zona de daño y en la región de aplicación de carga (ver figura 3). Los elementos de la zona estructurada son cuadriláteros de 8 nodos, con un tamaño de 5 μm . En la figura 4 se muestra un detalle de la zona estructurada, correspondiente a la zona marcada con un círculo en fig.3.

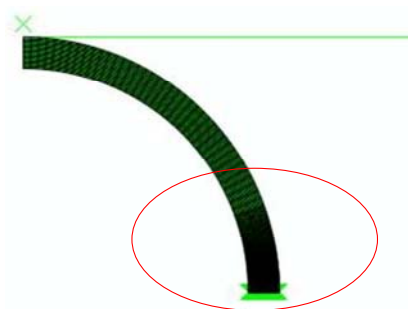


Figura 3. Esquema de la malla empleada

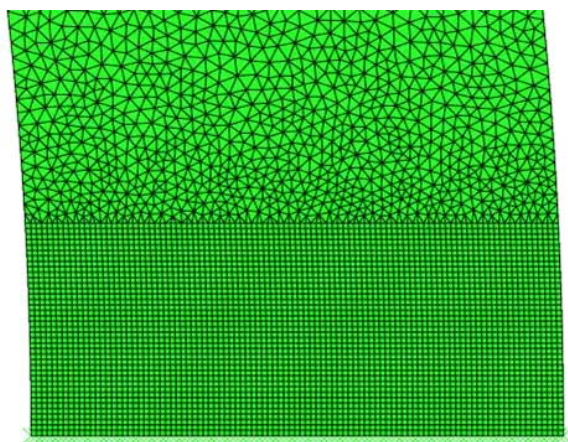


Figura 4. Detalle de la zona estructurada de la malla empleada

La muestra fue modelizada como una malla deformable mientras que el sistema de carga como una superficie rígida. Se restringieron los desplazamientos perpendiculares al plano vertical de simetría.

La ecuación constitutiva del material se obtuvo de la simulación numérica de ensayos de tracción en anillo realizados sobre vainas de ZIRLOTM con los mismos contenidos de hidrógeno [8].

El comportamiento del material se consideró elastoplástico, y para la modelización numérica se empleó un material isótropo con criterio de

plastificación de Von Mises [1]. En todos los cálculos se consideró no linealidad geométrica.

La caída de la carga que se produce debido a la fisuración de la probeta se simuló mediante el modelo de la fisura cohesiva. Para ello fue necesario programar una subrutina de elemento especial en el código ABAQUS. Se trata de una subrutina para modelizar la intercara entre los elementos. Dicha subrutina se aplica a elementos lineales de tres nodos y consiste en calcular el valor de las cargas nodales y de la derivada de las cargas nodales respecto a los desplazamientos de los nodos.

Debido a la gran deformación que se produce durante el ensayo, es necesario plantear la subrutina en grandes deformaciones para conseguir transmitir adecuadamente la tensión cohesiva. Este es el motivo que hizo necesaria dicha subrutina dado que el código ABAQUS v 6.7-5 sólo proporciona elementos cohesivos aplicables a cálculos sin no linealidad geométrica.

Para evitar problemas de bloqueo volumétrico en el resto de la malla se emplearon elementos bilineales (el elemento tiene nodos en los vértices y en el punto medio del lado) de tres y cuatro lados. Esto obliga a poner en la zona cohesiva o bien dos elementos cohesivos de dos nodos por lado o bien un elemento cohesivo de tres nodos. En las modelizaciones se ha optado por esta última posibilidad.

Para conseguir la convergencia de los cálculos, éstos se realizaron controlando el desplazamiento del nodo cohesivo crítico (donde se produce la fisura real).

En la literatura se recoge que para el caso de materiales metálicos, una curva de ablandamiento rectangular modeliza bien su comportamiento [9]. La curva de ablandamiento está caracterizada por dos parámetros: la resistencia cohesiva, f_t , y la energía de fractura, G_F . La energía de fractura está determinada por el área bajo la curva de ablandamiento, y para el caso que nos ocupa (curva de ablandamiento rectangular) viene dada por el producto entre la resistencia cohesiva y w_c , la separación crítica entre los labios de la fisura. En la figura 5 se presenta una curva de ablandamiento rectangular y los parámetros del modelo de la fisura cohesiva.

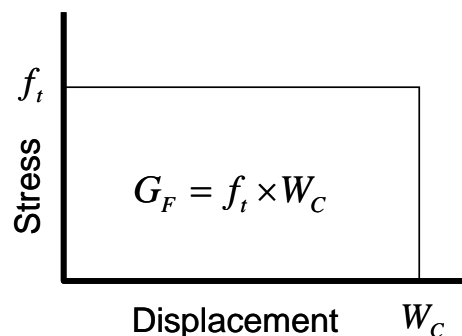


Figura 5. Curva de ablandamiento rectangular

El comportamiento real de la zona cohesiva no es una curva rectangular ideal, puesto que sería imposible de modelizar [10]. Los lados del rectángulo tienen una ligera pendiente. La pendiente en la línea vertical se ha introducido para facilitar la descarga y es del 1%. Al emplear valores inferiores a éste se han encontrado problemas de convergencia.

Los dos parámetros de la curva de ablandamiento se determinan por prueba y error a partir del punto donde se produce la descarga y de la pendiente de dicha descarga. El procedimiento seguido es el siguiente. Se propone un valor de la resistencia cohesiva f_{i0} . Este valor está acotado entre el límite elástico del material y su tensión de rotura. Se calcula la curva carga-desplazamiento con el valor propuesto de f_{i0} y una energía de fractura elevada. En el punto donde se separan las curvas carga-desplazamiento experimental y numérica se calcula el valor de w_{c0} que produciría la descarga y se repite el cálculo con los valores f_{i0} y w_{c0} . A continuación se rehace el proceso con varias parejas de valores (f_{ti} , w_{ci}) y se obtiene una familia de curvas numéricas. Finalmente, se toma como solución la curva que mejor ajusta los resultados experimentales.

Una vez conocida la energía de fractura, G_F , bajo las suposiciones realizadas, se puede calcular la tenacidad del material aplicando la ecuación de Irwin:

$$E' G_F = K_{IC}^2 \quad (1)$$

Donde K_{IC} es la tenacidad del material, G_F , la energía de fractura y E' (en condiciones de deformación plana) viene dada por la ecuación (2)

$$E' = \frac{E}{1 - \nu^2} \quad (2)$$

Donde E es el módulo de Young y ν es el coeficiente de Poisson.

3. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

El método de carga de hidrógeno empleado da lugar a población de hidruros de elevado tamaño distribuidos de forma homogénea en el espesor de la muestra, como se puede apreciar en la figura 6. Los hidruros son las líneas negras sobre la superficie clara del circonio.

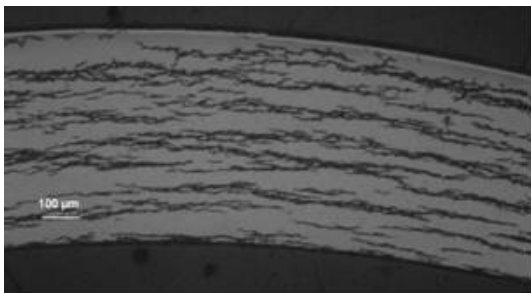


Figura 6. Distribución de hidruros en una muestra de compresión diametral con 500 ppm de hidrógeno.

Se prepararon muestras para la realización de ensayos de compresión diametral con distintas concentraciones de hidrógeno (150, 250, 500, 1200 y 2000 ppm), realizándose tres ensayos para cada una de las concentraciones. Dichos ensayos se efectuaron a 20 °C. Las curvas carga vs. desplazamiento obtenidas se presentan en la figura 7.

En las curvas experimentales de la figura 7 se puede observar un máximo de carga. Este máximo corresponde con el instante anterior a que las generatrices del tubo contenidas en el plano medio del mismo y que es perpendicular a la dirección de compresión comienzan a fisurarse. A partir de ese momento la fisura comienza a propagarse a lo largo de la dirección axial del tubo, lo que provoca una caída de la carga. Una vez que la fisura se ha propagado a lo largo de toda la probeta la carga comienza a incrementarse rápidamente debido a que las dos partes del tubo sobre las que se está ejerciendo la carga entran en contacto. Esta es la última etapa del ensayo (ver figura 2).

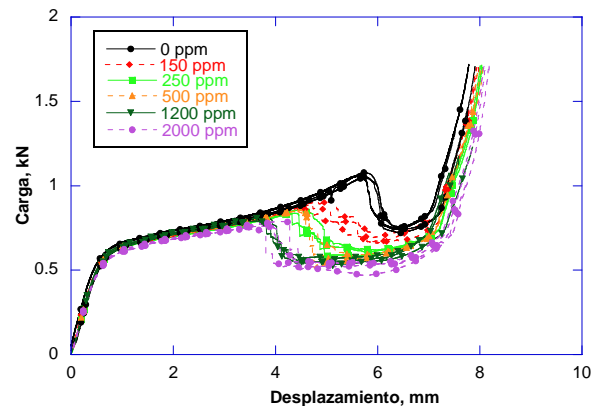


Figura 7. Curvas experimentales carga-desplazamiento para distintas concentraciones de hidrógeno.

Observando la figura 7, se puede afirmar que con sólo 150 ppm de hidrógeno se aprecian cambios importantes en los registros experimentales carga-desplazamiento, con lo que el ensayo de compresión diametral es muy sensible a la presencia de hidrógeno en las muestras. Un aumento en la concentración de hidrógeno hasta 250 ppm hace que el valor del máximo de carga, y el desplazamiento al que se alcanza disminuyan. Dicho máximo es muy similar para 250 y 500 ppm, y vuelve a decrecer para 1200 ppm. Las curvas experimentales carga-desplazamiento son prácticamente coincidentes para 1200 y 2000 ppm.

En las siguientes figuras, fig.8-fig.13, se muestra, para cada concentración, los registros experimentales y los ajustes numéricos efectuados por el método de los elementos finitos implementando la teoría de la fisura cohesiva. Puede observarse como los ajustes recogen la caída de carga, existiendo una muy buena concordancia entre los resultados experimentales y numéricos.

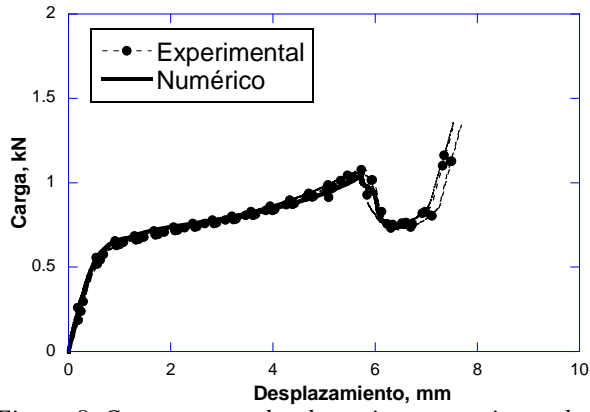


Figura 8. Curvas carga-desplazamiento experimentales y numéricas, 0 ppm

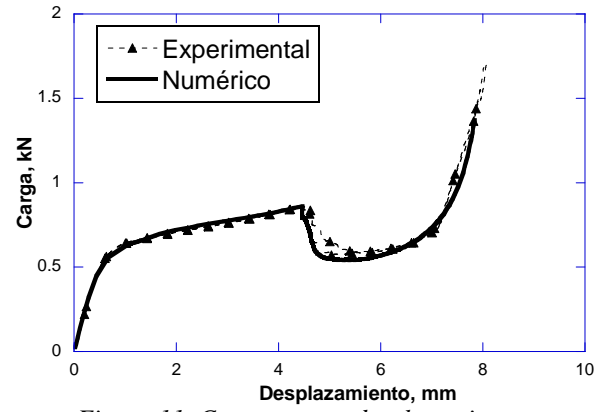


Figura 11. Curvas carga-desplazamiento experimentales y numéricas, 500 ppm

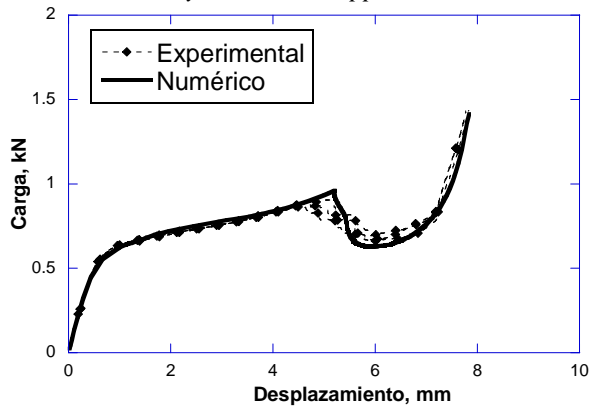


Figura 9. Curvas carga-desplazamiento experimentales y numéricas, 150 ppm

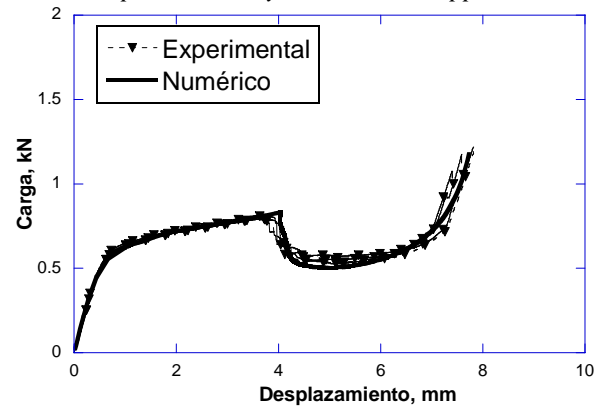


Figura 12. Curvas carga-desplazamiento experimentales y numéricas, 1200 ppm

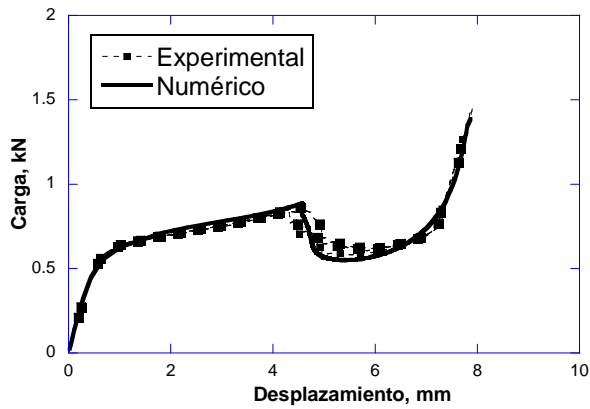


Figura 10. Curvas carga-desplazamiento experimentales y numéricas, 250 ppm

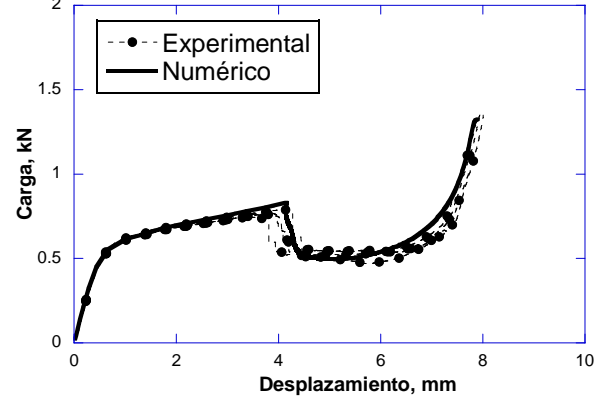


Figura 13. Curvas carga-desplazamiento experimentales y numéricas, 2000 ppm

Los parámetros del modelo cohesivo empleado en los cálculos numéricos para las distintas concentraciones de hidrógeno se recogen en la tabla 1.

Tabla 1: Parámetros del modelo cohesivo para las distintas concentraciones de hidrógeno

H, ppm	f_t (MPa)	w_c (μ m)	G_F (kN/m)
0	930	41.0	38.13
150	928	36.6	33.96
250	922	34.4	31.72
500	915	34.0	31.11
1200	912	33.0	30.10
2000	906	32.4	29.98

Los resultados de la tabla 1 muestran que la resistencia cohesiva no varía de forma determinante por la presencia de hidruros en la muestra. Su valor sólo se reduce un 3 % cuando la concentración de hidrógeno cambia de 0 a 2000 ppm. Sin embargo, el valor del desplazamiento crítico, w_c , y consecuentemente el valor de la energía de fractura, G_F , cambian considerablemente. Ambos valores sufren una reducción del 30 % cuando la concentración de hidrógeno pasa de 0 a 2000 ppm.

Puede observarse que con tan solo 150 ppm de hidrógeno, w_c y G_F se reducen en un 11 %. Esto vuelve a indicar la sensibilidad del ensayo a la presencia de hidruros en la muestra. Para concentraciones de hidrógeno superiores a 500 ppm no se producen variaciones importantes de G_F .

Como se ha explicado anteriormente, la tenacidad de fractura se puede calcular a partir de G_F , utilizando las ecuaciones (1) y (2). Los valores del módulo de Young ($E = 88$ GPa) y del coeficiente de Poisson ($\nu = 0.37$) son los mismos para todas las concentraciones de hidrógeno, dado que dichas constantes no varían con la concentración de hidrógeno en el intervalo estudiado [8].

En la figura 14 se muestra la variación de K_{IC} con la concentración de hidrógeno. Puede observarse que hasta concentraciones de 500 ppm las variaciones en la concentración de hidrógeno provocan cambios sustanciales en los valores de K_{IC} , sin embargo, para concentraciones superiores a 500 ppm, K_{IC} se mantiene prácticamente constante.

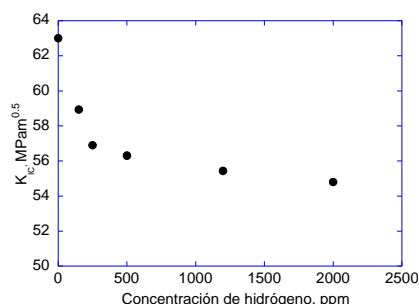


Figura 14. Tenacidad de fractura calculada K_{IC} en función del contenido de hidrógeno en la muestra

4. CONCLUSIONES

El ensayo de compresión diametral ha demostrado ser muy sensible a la presencia de hidruros en las muestras, ya que una pequeña concentración de hidrógeno, 150 ppm, modifica apreciablemente los registros experimentales carga-desplazamiento del ensayo.

Implementando la teoría de la fisura cohesiva en el modelo numérico, se ha conseguido recoger en los ajustes la caída de carga producida por la fisuración de la probeta. A partir de las constantes cohesivas empleadas en el modelo, se ha podido determinar la

energía de fractura para las distintas concentraciones de hidrógeno.

Se puede concluir que para concentraciones bajas de hidrógeno, hasta 500 ppm, K_{IC} permanece prácticamente constante.

AGRADECIMIENTOS

Los autores quieren agradecer la financiación recibida del ministerio de Educación y Ciencia (proyecto ENE2005-06478/CON) y a ENUSA, ENRESA y al CSN por su colaboración y financiación del proyecto. El presente proyecto se encuadra dentro de los proyectos DUMEINPA financiados por la comunidad de Madrid y SEDUREC del plan nacional CONSOLIDER-INGENIO 2010.

REFERENCIAS

- [1] Arsène, S. "Effet de la microstructure et de la temperature sur la transition ductile-fragile des zircaloy hydrures". Ph.D. dissertation, École Centrale Paris (1997).
- [2] Grange, M. "Fragilisation du zircaloy-4 par l'hydrogene: comportement, mecanismes d'endommagement, interaction avec la couche d'oxyde, simulation numerique". Ph.D. dissertation, École des Mines de Paris (1998)
- [3] Bertolino, G., Meyer G. y Perez-Ipiña, J. "Effects of hydrogen content and temperature on fracture toughness of Zircaloy-4". Journal of Nuclear Materials 320. 272-279 (2003).
- [4] Desquines J., Cazalis B., Possad Ch., Averty X., Yvon P. "Mechanical Properties of zircaloy-4 PWR Fuel cladding with Burnup 54-64 Mwd/KgU and Implications for RIA Behaviour" Journal of ASTM international 2 n°6 paper ID JA112465 (2005)
- [5] Kim, J.H., Lee, M.H., Choi, B.K., "Failure behaviour of zircaloy-4 cladding after oxidation and water quench" Journal of Nuclear Materials 362 36-45 (2007)
- [6] Robert S. Daum, S. Majumdar, Y. Liu, M. C. Billone "Radial-hydride embrittlement of high-burnup zircaloy-4 fuel cladding" Journal of nuclear science and technology. 43 n°9. 1054-1067 (2006)
- [7] George P. Sabol "ZIRLOTM an alloy development success". Journal of ASTM international. 2 n°2, paper ID JA112942 (2005)
- [8] M.A. Martín-Rengel, "Integridad estructural de vainas de combustible nuclear en condiciones de almacenamiento temporal en seco". Tesis doctoral. Universidad Politécnica de Madrid (2009).
- [9] F.J. Gómez, A. Valiente, M. Elices, "Cohesive modelling of the fracture of a neutron irradiated pressure Wessel steel". Nuclear engineering and Design. 219 111-125 (2002)
- [10] J. Planas, D. Cendón, J.M. Sancho, "Oscilaciones de tensiones y rigidez inicial en elementos de interfaz para simulación numérica de fisuras cohesivas". Anales de mecánica de la fractura 20 119-124 (2003) (in Spanish).