

INFLUENCIA DEL TRATAMIENTO TERMOMECANICO EN VAINAS DE ZIRCALOY-4 EN ENSAYOS MECANICOS DE TRACCION

S. Mintzer*, J. Falcone*, O. Carpineta**

* Departamento Combustibles Nucleares

** Departamento Materiales

Comisión Nacional de Energía Atómica

Gerencia Desarrollo

INTRODUCCION

La calificación de las vainas de los elementos combustibles de los reactores de potencia refrigerados por agua se efectúa en base a procedimientos y especificaciones rigurosas en lo que respecta a ensayos mecánicos de recepción (tracción, creep, explosión) de acuerdo a las exigencias a que está sometido el material en servicio y al alto grado de confiabilidad requerido. De particular interés resulta ser la resistencia y ductilidad de las vainas. La razón puede apreciarse si se considera (1,2) que para una dosis de neutrones de 3.10^{24} nts/m² ($E > 1$ Mev) la tensión de fluencia de la vaina a temperatura ambiente aumenta hasta 130% y la deformación permisible puede reducirse a menos del 2%. De modo que concentración de tensiones (tales como las que se producirían por crackeo de los pellets) pueden provocar la rotura de la vaina. A su vez dichos factores dependen de diversas variables, como ser: tratamiento térmico y mecánico previo, textura, precipitados, etc.

Con el objeto de lograr un mejor conocimiento del comportamiento mecánico de las vainas para la evaluación de tubos y de los procesos de fabricación de los mismos, se ha efectuado un estudio comparativo de los parámetros importantes del comportamiento a la tracción en tubos de Zry-4 en las siguientes condiciones: a) vainas procedentes de distintos proveedores. En este caso se ha encontrado diferencias significativas, relacionadas con la microestructura, en la tensión de fluencia (a deformación del 0.2%, resistencia a la tracción y deformación total; b) vainas procedentes de lotes diferentes de un mismo proveedor. La evaluación estadística de dichos parámetros también indica diferencias en este caso; c) en vainas de un mismo lote y para diferentes tratamientos térmicos. Se analiza la variación de la resistencia y ductilidad de los tubos, en el proceso de recuperación y recristalización. Las curvas correspondientes han permitido determinar la energía de activación para recristalización primaria.

El estudio de la microestructura se ha efectuado por microscopía óptica, microscopía electrónica de barrido y rayos X.

PROCEDIMIENTO EXPERIMENTAL

Las probetas de Zry-4 utilizadas en los ensayos de tracción fueron cortadas de tubos que se usan como vainas de elementos combustibles y procedentes de tres proveedores diferentes: "A", "B" y "C", en lo sucesivo se designarán tubos: tipo "A", tipo "B" y tipo "C".

La medición de los diámetros interiores y exteriores se efectuaron

con un alesómetro micrométrico y banco micrométrico respectivamente, en los extremos y centro de la probeta y tomando cuatro mediciones a 45° una de la siguiente en cada plano transversal. Dimensiones características de los tubos fueron: tipo "A": longitud (l_0) = 15 cm; diámetro interior (d_i) = 10.794 mm; diámetro exterior (d_e) = 11,908 mm; tipo "B": l_0 = 15 cm; d_i = 10,430 mm; d_e = 11,730 mm; tipo "C": l_0 = 15 cm; d_i = 12,228 mm; d_e = 13,057 mm.

Los ensayos se efectuaron a temperatura ambiente en una máquina de tracción Instron TTM a una velocidad de deformación de: $6,7 \cdot 10^{-5} \text{ seg}^{-1}$.

Para las tensiones de fluencia a una deformación del 0.2%, las elongaciones fueron medidas con extensómetro mecánico sobre una longitud de referencia de 5 cm. Las determinaciones de tamaño de grano en los tubos "A", "B" y "C" se efectuaron por metalografía óptica en una sección transversal de los tubos, utilizando como reactivo de ataque una solución diluida de NO_3H (48%) y FH (2%). Dicho reactivo también fue utilizado para el estudio de la superficie de los tubos mediante microscopía electrónica de barrido.

RESULTADOS EXPERIMENTALES

En la Tabla I aparecen los valores medios de la tensión de fluencia a una deformación de 0.2% ($\sigma_{0.2}$), resistencia a la tracción (σ_r) y deformación total (ϵ_r) para las vainas tipos "A", "B" y "C". En lo que se refiere a tensiones, se puede apreciar que estas son mayores (en particular resistencia a la tracción), para tubos tipo "A" (55,51 y 73,2 kg/mm^2) que en tubos tipo "C" (49,25 y 62,52 kg/mm^2), un comportamiento intermedio lo presentan los tubos "B" (49,49 y 67,13 kg/mm^2). Aún más notable que la tensión, es la diferencia en las deformaciones. Contrariamente a lo que sucede con las tensiones, las deformaciones totales son mayores en tubos "C" (30,13%) y menores en los "B" (18,75%). A su vez los tubos "B" de menores tensiones que los "A" también presentan menores deformaciones totales.

Los polígonos de frecuencias de las Figs. 1 y 2, para vainas correspondientes a lotes diferentes provenientes de un mismo proveedor (tubos tipo "A"), indican la distribución de frecuencias relativas (porcentuales) N_{σ} , N_{σ_r} en función de las tensiones: $\sigma_{0.2}$ y σ_r respectivamente. Se observa en ambas que los valores de las tensiones determinan una distribución de frecuencias bimodal. El polígono de frecuencias correspondiente para las deformaciones totales está representado gráficamente en la Fig. 3.

La micrografía óptica (Fig. 4) en una sección transversal de la vaina, tipo "A", tal como se recibe de fábrica, permite apreciar la distribución de granos fuertemente deformados como consecuencia del trabajado mecánico. Similares micrografías se observaron en tubos "B" y "C". Fotografías con un mayor poder de resolución, Figs. 5(a) y 5(b), obtenidas mediante microscopía electrónica de barrido, indican (barriendo un rango considerable de aumentos: 300X - 12000X) una distribución relativamente fina y uniforme de precipitados en las vainas. Dichos precipitados de acuerdo al equipo dispersivo en energías (EDAX) están constituidos por Zr, Cr y Fe ($\text{Zr}_x\text{Cr}_y\text{Fe}_z$).

El precipitado se introduce en el proceso de fabricación de las vainas luego de la operación de forjado en caliente del lingote, por calentamiento hasta la fase β y subsecuente templado rápido en agua o aire.

Es sabido que durante la fabricación de los tubos de Zry, los granos desarrollan una orientación preferencial. Durante la etapa de fabricación Extrusión en caliente el material sale con textura de polos basales en dirección tangencial. Posteriormente una textura de polos basales radiales o formando un cierto ángulo con la dirección radial se introduce en la etapa de laminación en frío. De modo que tubos manufacturados por diferentes caminos pueden tener diferentes proporciones de granos en diferentes orientaciones. Esto puede apreciarse en las figuras de polos para el plano (0002) para vainas tipo "A" y "C" en las Figs. 6(a) y 6(b) respectivamente.

Las representaciones gráficas de las Figs. 7(a) y 7(b) muestran las variaciones de las tensiones $\sigma_{0.2}$ y σ_r en función de la temperatura de recocido (400°C-635°C) para recocidos isocronos (dos horas a las temperaturas indicadas) de vainas tipo "A" tal como se reciben de fábrica. En el rango 400°C-510°C se puede apreciar una variación suave en la pendiente de las gráficas, para luego aumentar gradualmente en el rango 510°C-560°C y alcanzar saturación a temperaturas superiores a 610°C. Una representación análoga se efectúa para las deformaciones totales en la Fig. 8, exhibiendo el comportamiento opuesto al de las tensiones a partir de 515°C. La Fig. 9 es una micrografía óptica de la superficie de un tubo recocido a 635°C (2 horas) sin deformar, claramente se pueden observar los granos correspondientes a recristalización total.

DISCUSION Y CONCLUSIONES

Para explicar las diferencias observadas en los valores de las tensiones de fluencia, resistencia a la tracción y deformaciones de las vainas procedentes de los diferentes proveedores (Tabla I) y también de vainas correspondientes a lotes diferentes y procedentes de un mismo proveedor, tratándose de una misma aleación de circonio, es necesario analizar la posible influencia de las siguientes variables microestructurales: tamaño de grano, presencia de precipitados, textura y diferencias provocadas por tratamientos térmicos distintos. Con el propósito de simplificar el análisis, se considerará los dos comportamientos extremos: tubos tipo "A" y "C".

La inspección metalográfica efectuada no indica variaciones importantes en los tamaños de granos. En los tres tipos de tubos, los tamaños de granos oscilan alrededor de un valor medio de 7 μ (Fig. 4). Además y debido a que los granos están al estado deformado no es de esperar contribución apreciable a las diferencias de tensión de los tubos para tracción a temperatura ambiente.

Los modelos de endurecimiento por presencia de partículas de segunda fase en metales (3,4) predicen para el incremento de la tensión de fluencia, en el caso de precipitado fino, una dependencia proporcional a la raíz cuadrada del producto del tamaño de precipitado por la fracción de volumen precipitada. En las observaciones preliminares efectuadas sobre tamaño y distribución de precipitado (Figs. 5(a) y 5(b)), no se ha podido detectar

diferencias significativas entre tubos del tipo "A" y "C" ni tampoco con tubos recocidos 24 horas a 600°C. En consecuencia, las diferencias observadas (Tabla I) para las tensiones de fluencia son muy elevadas como para poderlas explicar por este camino.

El comportamiento anisótropo del Zry es debido a la diferencia entre granos que deforman por deslizamiento y los que deforman por maclado, teniendo presente que las tensiones para maclado son superiores (5, 6). En el caso de tracción y de acuerdo a las texturas que se pueden introducir en los tubos, si los polos basales se encuentran en la dirección radial se producirá deslizamiento en los planos prismáticos $\{10\bar{1}0\} < \bar{1}2\bar{1}0 >$ en la dirección axial y por contracción transversal en la dirección tangencial y maclado en los planos $\{10\bar{1}2\}$ $\{11\bar{2}1\}$ $\{11\bar{2}2\}$ y $\{11\bar{2}3\}$ por contracción transversal en dirección radial. En consecuencia, el tubo deforma por reducción del diámetro y con variación mínima del espesor de pared (mayores elongaciones). En el otro extremo, si los polos basales se hallan en la dirección tangencial, hay deslizamiento en los planos prismáticos en dirección axial y contracción transversal en dirección radial y maclado por contracción transversal en dirección tangencial. La deformación del tubo por tracción se produce en forma opuesta a la del caso anterior. En la Fig. 6(b) puede apreciarse en los tubos "C" los polos basales alineados alrededor de la dirección radial o dentro de un ángulo de 30° en la dirección tangencial. En los tubos tipo "A" los polos basales están más extendidos en dirección tangencial. Dado que el deslizamiento piramidal es operativo en la dirección axial en ambos casos no es de esperar variaciones en la tensión de fluencia y resistencia a la tracción por textura de los tubos, pero sí una componente de contribución a las diferencias en las deformaciones totales observadas (7) en la Tabla I.

Una contribución importante a la resistencia y ductilidad es la que resulta de los tratamientos térmicos, como puede apreciarse en las Figs. 7(a), 7(b), 8 y 10, para tubos tipo "A". De acuerdo a las mismas entre 400°C y 510°C el proceso se restringe a recuperación con cambio en la distribución y densidad de dislocaciones. Entre 510°C y 600°C entra a jugar un rol importante el proceso de recristalización primaria con nucleación de granos libres de tensiones. Por la forma de las curvas la fracción recristalizada aumenta al comienzo gradualmente y luego rápidamente hasta alcanzar saturación (Fig. 9). Debido a ambos procesos la resistencia de los tubos disminuye, Figs. 7(a) y 7(b), pero aumenta su ductilidad, Fig. 8. La combinación óptima para tracción se ha de encontrar en una posición intermedia o de acuerdo a lo que se desee obtener como de mayor preponderancia (ductilidad o resistencia). En consecuencia, el tratamiento térmico final puede ser muy importante a las diferencias observadas (Tabla I) entre tubos tipo "A", "B" y "C". Las diferencias de tratamientos termomecánicos también pueden ser las causantes de las distribuciones de tensiones y deformaciones, Figs. 1,2,3, para vainas de lotes diferentes de un mismo proveedor ("A"). Para lograr las dimensiones finales que son por especificaciones estrictas puede ser necesario introducir deformaciones diferentes, esto puede cambiar la dirección de las tensiones internas, aún si se las somete a un mismo recocido final. También puede influir la homogeneidad de la distribución de temperatura de los hornos en donde se efectúan los recocidos. Con el propósito de obtener información adicional sobre los procesos representados por las curvas sigmoidales, Figs. 7(a), 7(b) y 8, se analizaron los resultados utilizando una expresión general para considerar cinéticas de transformación, que varían con la temperatura y el tiempo, la ecuación de Johnson-Mehl (8):

$$f = 1 - e^{-F \cdot t}, \quad F = F_0 \cdot e^{-\frac{Q}{R \cdot T}}$$

f = fracción de cambio de una propiedad del material que depende del tiempo (t) y temperatura (T), Q = energía de activación, R = cte. de los gases. Por desarrollo en serie, en la aproximación de primer orden y considerando como propiedad la variación de la resistencia a la tracción (Fig. 7(b)) con la temperatura de recocido:

$$f = F_0 \cdot t \cdot e^{-\frac{Q}{R \cdot T}}, \quad f = R_\sigma = \frac{\sigma_s - \sigma}{\sigma - \sigma_i} \therefore \sigma = \sigma_i + \frac{(\sigma_s - \sigma_i)}{(R_\sigma + 1)}$$

σ_s = valor de saturación de la resistencia a la tracción (σ)
 σ_i = valor inicial, $t = 2$ horas

La energía de activación puede determinarse en la representación (Fig. 9) semilog:

$$\ln R_\sigma = \ln (F_0 \cdot t) - \frac{Q}{R \cdot T}$$

La porción inferior no lineal de la curva (Fig. 9) corresponde a recuperación, la parte lineal a recristalización y recuperación. Por regresión lineal resultó: $Q = 78,7$ Kcal.

AGRADECIMIENTOS

* Por la amplia colaboración prestada en algunas fases del trabajo a los Dres. J. Hermida, A. Pochettino y a la Srta. L. Garaycochea.

REFERENCIAS

1. D. Hardy. ASTM-STP-478, 1970, 215.
2. E. Harbinson, C. Baroch. J. Mater. JMISA, 1968, 107.
3. M. Witt, V. Gerold, Z. Metall., 1969, 482.
4. H. Haberkorn, V. Gerold, Phys. Stat. Solid., 1966, 167.
5. E. Rapperport, Acta Met. 1955, 208.
6. J. Martin, R. Reed Hill, Trans. AIME, 1964, 780.
7. S. Mintzer, R. Bordoni, J. Hermida. A publicarse
8. W. Johnson, R. Mehl, Trans. AIME 135, 416.

TIPO de VAINA	"A"	"B"	"C"
\bar{V}_{Q_2} (kg/mm ²)	55,51	49,49	49,25
\bar{V}_R (kg/mm ²)	73,2	67,13	62,52
\bar{E}_R (%)	21,91	18,75	30,13

TABLA I

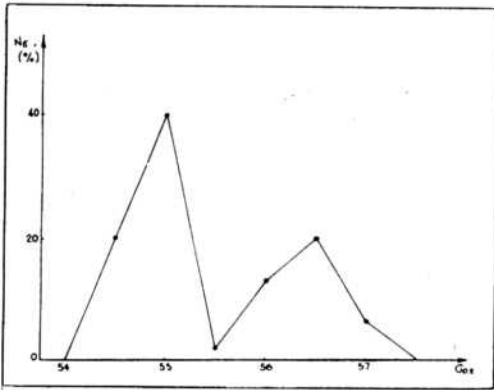


FIG. 1

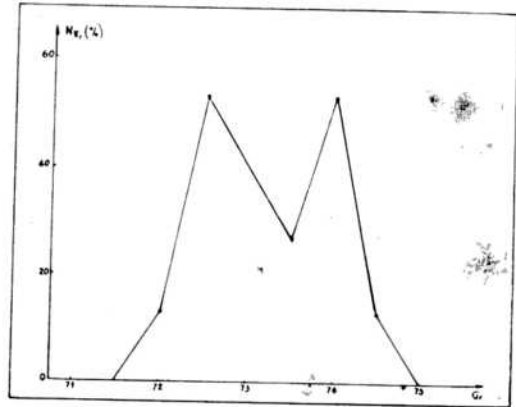


FIG. 2

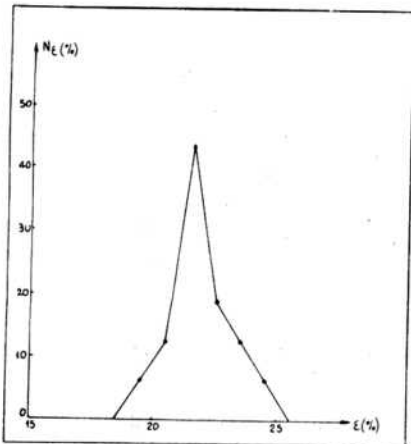
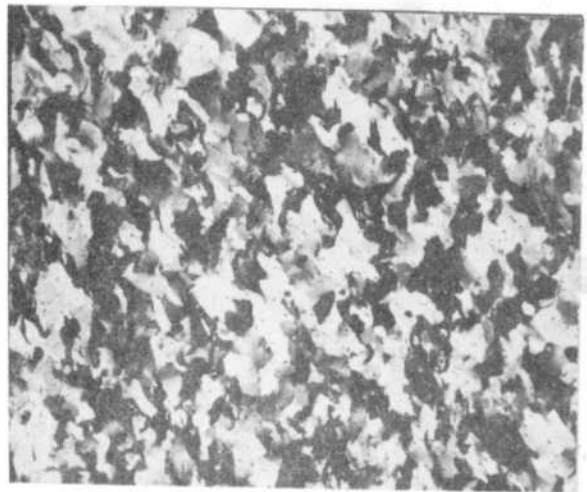
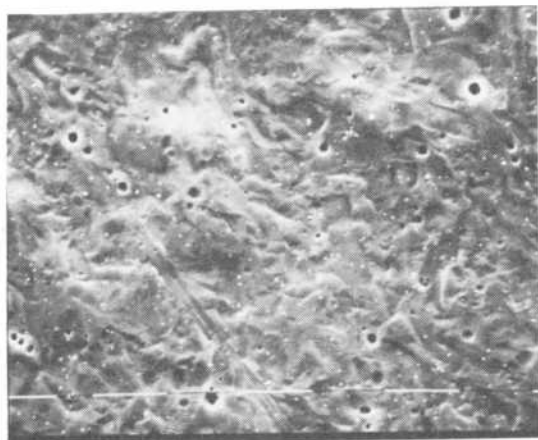


FIG. 3

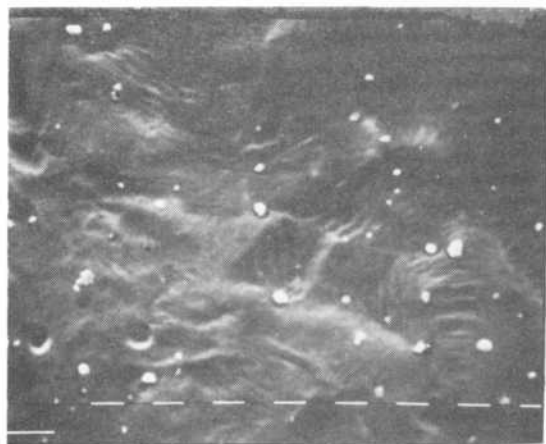


X600

FIG. 4



X1600
FIG. 5(a)



X6400
FIG. 5(b)

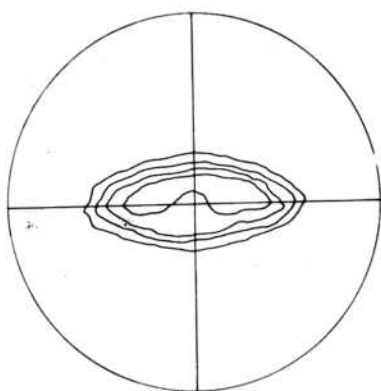


FIG. 6(a)

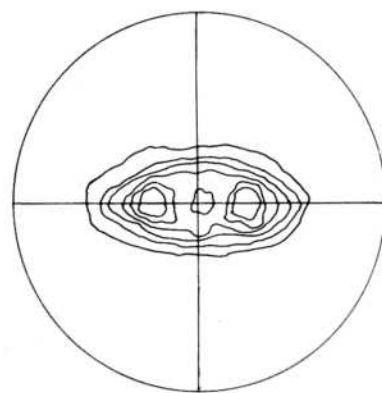


FIG. 6(b)

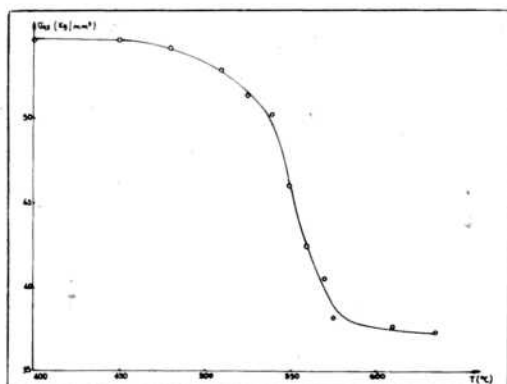


FIG. 7(a)

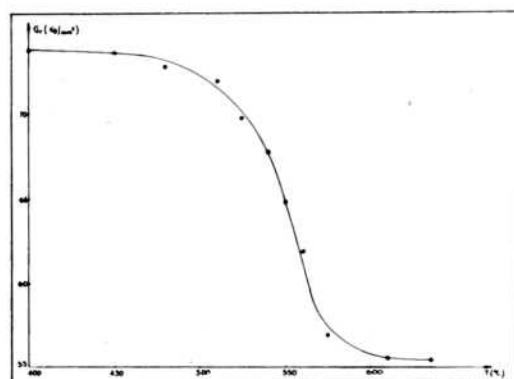


FIG. 7(b)

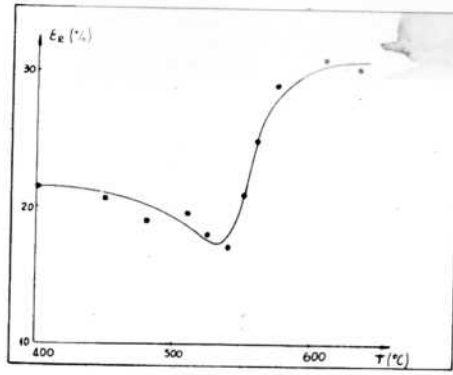


FIG. 8

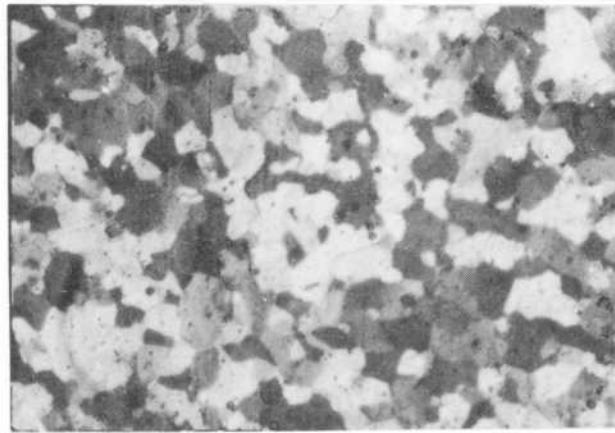


FIG. 9

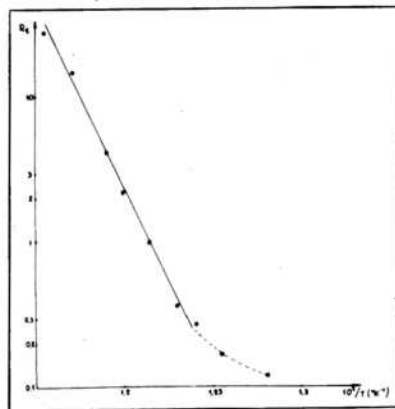


FIG. 10