

ANALISIS DE TENSIONES DURANTE LA PROPAGACION
TRANSGRANULAR DE FISURAS POR CORROSION BAJO
TENSIONES DE VAINAS DE ZIRCALLOY

POR

R.E. HADDDAD ANDALAG y A.O. DORADO

Comisión de Energía Atómica
República Argentina

Trabajo a ser presentado en las 17. Jornadas metalúrgicas de la
Sociedad Argentina de Metales; 2. Encuentro argentino de
cerámicos y refractarios el 13-16 de April de 1993 San Carlos
de Bariloche -Argentina-

COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA		NUMERO DE SERIE
TRAMITE DE PUBLICACIONES		0090/93
TITULO Y SUBTITULOS ANALISIS DE TENSIONES DURANTE LA PROPAGACION TRANSGRANULAR DE FISURAS POR CORROSION BAJO TENSIONES DE VAINAS DE ZIRCALOY		FECHA DE ENVIO ORGANISMO PROMOTOR
AUTORES R.E. HADDAD y A.O. DURADO		FECHA DE RECEPCION COMISION DE PUBLICACIONES
ORGANISMO PROMOTOR Y DEPENDENCIAS GCIA DESARROLLO GAID		TIPO DE PUBLICACION EXPOSICION JORNADAS SAM
DIRECCION POSTAL Y TELEFONO		NUMERO DE EJEMPLARES
		AREAS RELACIONADAS INIS

PALABRAS CLAVE INIS:

ZIRCALOY, STRESS CORROSION, CRYSTALLOGRAPHY, STRESSES

RESUMEN (adjunto)

- hacer portada
- sacar fotocopia

INFORME DEL ORGANISMO PROMOTOR	DICTAMEN COMISION PUBLICACION
1.- ASPECTOS CIENTIFICOS	CALIFICACION Aprobado
2.1 IMPLICANCIAS TECNOLOGICAS NO	CLASIFICACION
2.2 IMPLICANCIAS COMERCIALES NO	NO RESTRINGIDA
2.3 IMPLICANCIAS LEGALES NO	FECHA
2.4 IMPLICANCIAS DE IMAGEN INSTITUCIONAL NO	18-3-93
FIRMA DEL RESPONSABLE DEL ORGANISMO	TRAMITE:
Dr. ALDO TROVARETTO a/c Gerente de Desarrollo	A LA GAPCyC-DPTO. INF. TEC. ☐
E. Celso	AL ORGANISMO PROMOTOR ☒

GRAIN BY GRAIN STUDY OF THE MECHANISMS OF CRACK PROPAGATION DURING IODINE SCC OF ZRY-4.

R. E. HADDAD¹ AND A. O. DORADO²

¹National Atomic Energy Commission (CNEA), Libertador 8250, 1429 Bs. As., Argentina

²National Research Council (CONICET), Rivadavia 1917, 1033 Bs. As., Argentina

ABSTRACT

SCC induced by fission product iodine has been the most probable cause of PCI failures in Zry cladding of nuclear fuel. Many different mechanisms of crack propagation have been proposed, involving effect of large inclusions or second phase particles, chemical attack, hydriding, etc. However, in many circumstances, cracking has been produced by pseudo-cleavage in grains that show no metallurgical inhomogeneities at the initiation sites. This paper describes the tests conducted to determine the conditions leading to cracking of a specified grain of metal, focusing on the crystallographic orientation of crack paths, the critical stress conditions and the significance of the fractographic features encountered. In order to get orientable cracking, a technique was developed to produce iodine SCC, by means of pressurizing tubes of a specially heat treated Zry-4 having very large grains, shaped as discs of a few millimeters in diameter and grown up to the wall thickness. Careful orientation of fractured grains, performed by means of a back-reflection Laue technique with a precision better than one degree, has proved that transgranular cracking occurs only along basal planes. The effect of anisotropy, plasticity, triaxiality and residual stresses originated in thermal contraction, has to be considered to account for the influence of the stress state. A grain by grain calculation led to the conclusion that transgranular cracking always occurs on those bearing the maximum resolved tensile stress on basal planes. There are clear indications of the need of a triaxial stress state for the process to occur. Fracture modes other than pseudo-cleavage have been encountered, including intergranular separation, ductile tearing produced by prismatic slip and propagation along twin boundaries. In each case the fractographic features have been identified, and associations have been made with fractographs obtained in normal fuel cladding.

ANALISIS DE TENSIONES DURANTE LA PROPAGACION TRANSGRANULAR DE FISURAS POR CORROSION BAJO TENSIONES DE VAINAS DE ZIRCALOY.

R. E. Haddad¹ y A. O. Dorado²

¹Depto. Materiales - Gcia. de Desarrollo - CNEA

²Becario CONICET (Actualmente en ASTRA S.A., Cdro. Rivadavia, CP9000 Chubut)

RESUMEN

Se analiza la influencia del estado de tensiones en la Corrosión Bajo Tensiones (CBT) de aleaciones de Zirconio en presencia de Iodo a 400 °C, utilizando vainas de Zircaloy-4 (Zry-4) especialmente tratadas para crecer monocristales de tamaño suficiente como para permitir su orientación mediante técnicas convencionales. Se establece que las fisuras se inician en aquellos granos del metal que sufren la mayor tensión tensil resuelta en los planos basales. En el cálculo debe considerarse la componente radial de las tensiones, habitualmente despreciada frente a las componentes tangencial y axial, en la aproximación de Tubo de Pared Delgada (TPD). La reducción del espesor de las vainas inhibe la propagación, lo que puede indicar necesidad de un estado de tensiones triaxial para que ocurra el fenómeno. En estas condiciones estarían más restringidas las posibilidades de relajación de tensiones por activación de los mecanismos de deformación; aparentemente, el avance de las fisuras estaría condicionado a la inhibición del maclado.

INTRODUCCION

Los elementos combustibles nucleares suelen fallar por fisuración de las vainas de Zry debido a procesos de CBT en presencia de productos de fisión agresivos del tipo del Iodo¹, cuando los tubos están tensionados debido a la interacción con las pastillas de óxido de Uranio dilatadas. Se ha establecido² que si bien el proceso se ve favorecido por la presencia de inhomogeneidades químicas y/o metalúrgicas, éstas no son necesarias, pudiendo iniciarse, si las condiciones químicas son apropiadas, en cuanto se aplican tensiones de tracción suficientemente altas. Se han medido tensiones umbrales³, aunque éstas varían con el tratamiento termomecánico previo del material, las condiciones de ensayo, irradiación, etc. Estos valores son usados habitualmente por los códigos que simulan el comportamiento de las vainas de elementos combustibles, para establecer las condiciones límites aceptables de operación. Sin embargo, los valores de literatura son parámetros ingenieriles que no han podido ser relacionados en forma clara con mecanismos que expliquen el fenómeno.

También se sabe⁴ que la propagación transgranular de fisuras ocurre por pseudo-clivaje únicamente a lo largo de los planos basales, con la única excepción de aquellos granos que han sufrido deformación por maclado previamente a la CBT, en los que

es posible la fractura por separación de los bordes de macla, lo que puede considerarse como un caso particular de propagación intergranular. Teniendo en cuenta que los planos basales son los planos teóricos de clivaje⁵, o sea los menos ligados entre sí, se induce que la CBT de Zry por Iodo tendría lugar cuando al aplicar tensiones de tracción se supera la energía de unión de los mismos, disminuída por la acción del Iodo. En este contexto, el factor mecánico determinante sería la tensión tensil aplicada al grano en el que se inicia la corrosión, fundamentalmente, la componente resuelta sobre el plano basal; las tensiones umbrales estarían determinadas por el balance entre energías de ligadura, química y la carga.

El objetivo del presente trabajo es establecer el papel de las tensiones, determinando si efectivamente la CBT está controlada por la componente resuelta en basal y si existe un valor límite mínimo para que se inicie la fisuración.

DISPOSICIÓN EXPERIMENTAL

Se realizaron ensayos de presurización con Iodo en caliente³ de vainas de Zry-4 de las dimensiones correspondientes a las usadas en elementos combustibles de la Central Nuclear de Atucha-1, previamente tratadas para permitir el crecimiento de los granos hasta tamaños del orden de los milímetros de diámetro y extendidos de pared a pared⁴. Se cortaron probetas de 15 cm de largo, que en algunos casos fueron rebajadas en una zona central de 5 cm por medio de torno mecánico o decapado químico en solución fluonítrica, luego de lo cual fueron limpiadas en agua tridestilada hirviendo, hasta eliminar el fluoruro remanente; todas fueron desengrasadas mediante triple lavado en tricloroetileno en ebullición. El gas de presurización fue Argón 99,99 % de pureza y se usó 1 g. de Iodo bisublimado por ensayo. La falla de las probetas se detectó por la caída de presión medida con un transductor conectado a un registrador, ubicándose la pérdida mediante burbujeo con una pequeña sobrepresión.

Se hicieron cortes metalográficos de la zona fisurada, orientando los granos por medio de diagramas de Laue y se realizó en cuatro de estas secciones un análisis de tensiones en las distintas direcciones cristalinas de todos los granos (un total de 140 determinaciones). La presión de trabajo en estas cuatro probetas fue, de 100 bar para la probeta 1 y de 150 bar para las 2, 3 y 4. En el caso de tubos rebajados, se aplicó una presión tal que generara una tensión tangencial en la cara interna de los tubos igual a la correspondiente a una presión de 120 bar en una probeta sin rebaje.

El sistema de tensiones aplicado en los ensayos se puede describir, mediante un tensor diagonal en coordenadas cilíndricas, cuyas componentes no nulas en la cara interna de los tubos, $\sigma_{\theta\theta}$, σ_{zz} y σ_{rr} se pueden calcular asumiendo material isótropo y lineal, simetría cilíndrica y ausencia de tensiones residuales⁷. En la aproximación TPD, la componente σ_{rr} se desprecia frente a las otras dos y se considera un sistema de tensiones biaxial. Sin embargo, dada la textura normal de los tubos utilizados, los polos basales tienden ser radiales, por lo que la proyección radial tiende a crecer respecto

de las otros dos; por lo tanto, ya no resulta correcto despreciar la componente radial en el cálculo de la tensión resuelta en basal.

RESULTADOS

El análisis de los resultados indica que, en todos los casos, el proceso se inició en aquellos cristales para los que la tensión tensil resuelta sobre los planos basales es máxima. Esta correlación no se cumple para la componente tangencial; por ejemplo, en la Sección 1, el máximo valor de ésta se da para el grano N° 5, que no presenta indicios de CBT. La consistencia se pierde totalmente si se utiliza la aproximación TPD.

En la Tabla 1 se muestran los tiempos de falla medidos para varias probetas fisuradas, indicándose los valores respectivos de tensión tensil resuelta en basal calculados. No se observa correlación, por lo que no se puede extraer un valor de tensión umbral para el monocristal, equivalente al que se obtiene en policristales para tiempos de falla que tienden a infinito.

TABLA 1: Tensiones resueltas en basal y tiempos de falla por SCC

N° probeta	1	2	3	4	5	6	7	8	9
σ_{0002} (MPa)	50	28	44	70	49	72	95	53	79
tiempo (hs)	38	59	59	57	95	6	60	10	38

En los ensayos realizados con probetas de menor espesor se produjeron fisuras incipientes que no propagan más de 10 a 30 μm , independientemente del tiempo del ensayo. En la Tabla 2 se muestra la densidad de microfisuras por unidad de longitud en la circunferencia de la metalografía, viéndose que disminuye con el espesor del tubo.

TABLA 2: Efecto del rebaje en la densidad de microfisuras.

% Rebaje	0	10	17,5	24	26	27	40
N° ensayos	3	3	1	1	1	1	1
Densidad (1/cm)	2,1 1,5 2,8	0 0,15 0,1	0,05	0	0,05	0,1	0

DISCUSIÓN

El hecho de que el material se fisure siempre en aquellos granos que tengan la máxima tensión tensil resuelta sobre el plano basal, que es el único plano de propagación transgranular, indica que la tensión es directamente responsable de la separación de dichos planos. Sin embargo, la imposibilidad de establecer una relación entre dicha componente de tensión y el tiempo de falla indica que existen etapas del proceso en las que su influencia no resulta tan clara. Entre los posibles causantes de indeterminaciones se encuentran los factores químicos, ya que en los ensayos de larga duración

no se puede asegurar que la química interna sea constante, y los errores debidos a las tensiones residuales de origen térmico; ambos afectan a cada probeta en forma disímil, por lo que se pierde consistencia en los resultados generales pero se mantiene en las comparaciones internas entre granos de una probeta. También, a una dada temperatura de trabajo debe existir una distribución estadística de energías, lo que implicará que, en una proporción de los átomos, la decohesión sea suficiente como para permitir movimientos redistributivos para formar y propagar una fisura, como lo describe el modelo de CBT basado en la difusión superficial⁶. La cinética de avance está limitada por la generación de condiciones químicas adecuadas en el extremo de la fisura, mientras que no existe una tensión umbral, sino que la velocidad de propagación tiene una dependencia exponencial con las tensiones que implica, en todo caso, velocidades de avance despreciables por debajo de determinados valores.

La inhibición producida por efecto del rebaje resulta contradictoria ya que se producen microfisuras, lo que indica que las tensiones son suficientes para iniciar el proceso, pero su avance se detiene, a pesar de que las tensiones aumentan a medida de que progresa. Lo que cambia al disminuir el espesor de los tubos es la relación entre las distintas componentes del tensor de tensiones, ya que disminuye en términos relativos la tensión radial, por lo que el sistema aplicado tiende a ser biaxial (TPD). Este efecto parece ser preponderante frente al valor absoluto de la tensión resuelta. El hallazgo de evidencias de maclado en la punta de varias de estas microfisuras permitiría suponer que las mismas se detuvieron al relajarse las tensiones en su extremo. La activación de este mecanismo de deformación puede estar favorecida por la reducción relativa de la tercera componente de tensión.

REFERENCIAS

¹B. Cox, "Pellet-Clad Interaction (PCI) Failures of Zircaloy Fuel Cladding - A Review", Journal of Nuclear Materials, Vol. 172 No. 3 (1990), pp. 249-292.

²R. Haddad and B. Cox, "On the Initiation of cracks in Zircaloy tubes by Iodine and Cs/Cd vapours", Journal of Nuclear Materials, Vol. 138 (1986), pp. 81-88.

³R. Haddad, "Corrosión Bajo Tensiones del Zr y de sus aleaciones en presencia de Iodo", Revisión Bibliográfica, CNEA NT-14 (1980).

⁴R. Haddad, "Nuevos Aspectos de la Corrosión Bajo Tensiones del Zircaloy-4 por Iodo", XVI Reunión de la AATN (1988).

⁵A. Taylor y B. J. Kagle, en "Crystallographic Data on Metal and Alloy Structures", Dover Publications Inc., New York (1963).

⁶J. R. Galvele, "A Stress Corrosion Cracking Mechanism Based on Surface Mobility", Corrosion Science, Vol. 27 No. 1 (1987), pp. 1-32.

⁷Timoshenko and Wornonsky-Krieger, Theory of Plates and Shells, Mc Graw-Hill Book Company (1959), chapter 15.