

FORMACION DE AMPOLLAS DE HIDRUROS EN ALEACIONES DE CIRCONIO

POR

G.DOMIZZI, J.O. OVEJERO

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 TRAMITE DE PUBLICACIONES	NUMERO DE SERIE 73-93
TITULO Y SUBTITULOS FORMACION DE AMPOLLAS DE HIDRUROS EN ALEACIONES DE CIRCONIO	FECHA DE ENVIO ORGANISMO PROMOTOR
AUTORES Gladys Domizzi José Ovejero García	FECHA DE RECEPCION COMISION DE PUBLICACIONES 10-2-93
ORGANISMO PROMOTOR Y DEPENDENCIAS CNEA - Gcia Desarrollo - Dpto Materiales.	TIPO DE PUBLICACION <i>CRAL - ANALES SAM. 93</i> NUMERO DE EJEMPLARES
DIRECCION POSTAL Y TELEFONOS CAC - int. 287	AREAS RELACIONADAS INIS
PALABRAS CLAVE INIS: Zirconium alloys, hydrogen, hydride blister	
RESUMEN La formación de ampollas (blisters) de hidruros de circonio en aleaciones de circonio, debido a la presencia de un gradiente térmico, es un fenómeno factible de ocurrir en componentes estructurales de un reactor (tubos de presión), de ahí la importancia que reviste este tema para la industria nuclear. Por este motivo se iniciaron una serie de experimentos en el laboratorio de Daño por hidrógeno para obtener ampollas en aleaciones de circonio y estudiar aspectos relacionados a las mismas. Se obtuvieron ampollas en Zry-4 y Zr-2,5%Nb. Se analizó la propagación de una fisura presente en una ampolla y se observó la superficie de fractura. La fisura propagó frágilmente en la ampolla y se detuvo en la matriz de Zry-4.	
INFORME DEL ORGANISMO PROMOTOR 1.-ASPECTOS CIENTIFICOS <i>Si</i>	DICTAMEN COM. PUBLICACIONES
2.1-IMPLICANCIAS TECNOLOGICAS <i>Si</i>	CALIFICACION <i>Aprobado</i>
2.2-IMPLICANCIAS COMERCIALES <i>NO</i>	CLASIFICACION <i>NO RESTRINGIDA</i>
2.3-IMPLICANCIAS LEGALES <i>NO</i>	FECHA
2.4-IMPLICANCIAS DE IMAGEN INSTIT. <i>NO</i>	<i>18-3-93</i>
FIRMA DEL RESPONSABLE DEL ORGANISMO  Dr. ALBERTO PROCHETTINO a/c Gerente de Desarrollo	TRAMITE A LA GAPCYC-DPTO. INF. TEC. ☐ → AL ORGANISMO PROMOTOR ☒

FORMACION DE AMPOLLAS DE HIDRUROS EN ALEACIONES DE CIRCONIO

Gladys Domizzi* - José Ovejero García**

*Investigador **Jefe División Metalografía

Comisión Nacional de Energía Atómica. Av. el Libertador. 8250.

El hidrógeno disuelto en una aleación de circonio difunde en presencia de un gradiente térmico y precipita como hidruros de circonio en las zonas donde la concentración de H supera la solubilidad sólida terminal; una aglomeración de hidruros producida por un gradiente térmico localizado es lo que se conoce como ampolla o blister ¹. Debido al comportamiento frágil de los hidruros este tipo de formación puede originar fisuras y posterior fractura del material, tal como ocurrió en un tubo de presión de Zry-2 en el reactor Pickering-2 en 1983 ².

El reemplazo del Zry-2 por Zr-2,5%Nb disminuyó el ingreso de H en los tubos de presión, reduciendo notablemente el riesgo de fractura por presencia de ampollas. No obstante el tema continúa siendo de apreciable interés para la industria nuclear.

En vista de ello, iniciamos una serie de experimentos con el propósito de reproducir en laboratorio la formación de ampollas en aleaciones de Zr y así estudiar diferentes aspectos asociados a las mismas. En particular, en este trabajo se reporta la propagación de fisuras en una ampolla.

TRABAJO EXPERIMENTAL

1) Introducción de hidrógeno

Para acelerar la formación de ampollas se trabajó con concentraciones de hidrógeno del orden de 150 - 250 ppm. La introducción de hidrógeno, en muestras de Zry-4 y Zr-2,5%Nb, se realizó mediante carga catódica a 90-100°C en solución de SO_4H_2 0,1M con una densidad de corriente superior a 100mA/cm². Mediante este método se obtiene la formación de una capa superficial de hidruro de circonio³.

Un tratamiento térmico posterior permite disolver dicha capa y obtener una distribución uniforme de hidruros. La concentración final de hidrógeno queda determinada por la temperatura del tratamiento elegida de acuerdo a la solubilidad sólida terminal de disolución ($\text{SSTD} = 60500 \exp(33300/(RT))$, donde T es la temperatura en K y R = 1.987 cal/mol K).

2) Formación de ampollas

Para obtener un gradiente térmico localizado se construyó un horno abierto en su parte superior. La muestra se coloca sobre un bloque metálico ubicado

dentro del horno, de esta forma alcanza unos 400°C de temperatura en su superficie inferior; en la cara superior se coloca una punta fría de aluminio refrigerada con agua (figura 1).

Se emplearon puntas frías con forma cuadrada de 12mm de lado y circulares de 0,9 y 2,5 de diámetro. El gradiente térmico se evaluó entre 20 y 40 °C/mm, y se aplicó por periodos de 5 a 20 días.

3) Propagación de fisuras en la ampolla

Sobre una muestra de Zry-4 con 200 ppm de hidrógeno se formaron ampollas, la mayor de las cuales poseía un diámetro de 3mm y presentaba una fisura. Se flexionó la muestra entre tres puntos en una prensa adosada al microscopio óptico, esto permitió observar la propagación de dicha fisura. Posteriormente se abrió la muestra por la zona fisurada y se observó la superficie de fractura en el microscopio electrónico de barrido (MEB).

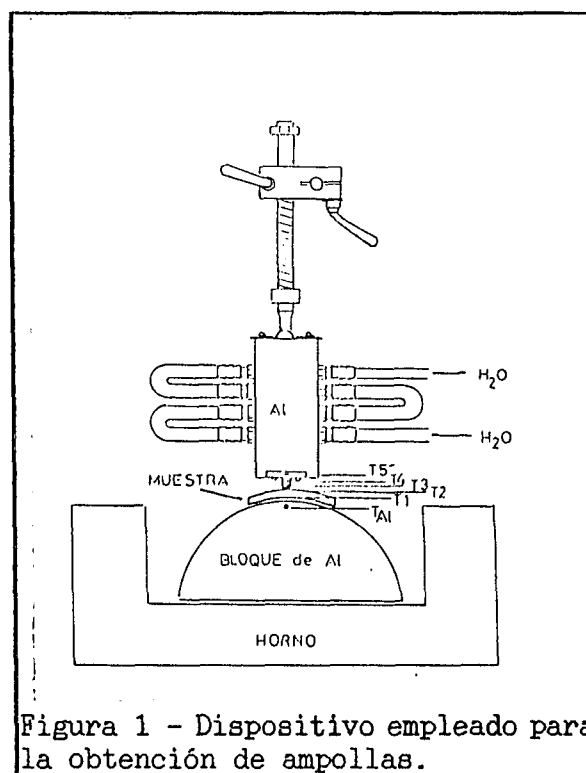


Figura 1 - Dispositivo empleado para la obtención de ampollas.

RESULTADOS

1) Formación de ampollas

En la tabla siguiente se presentan algunos ejemplos de ampollas obtenidas con las puntas frías circulares, se observó que el diámetro de la ampolla es aproximadamente igual al diámetro de la punta fría y en todos los casos se encontraron fisuras en las ampollas.

MUESTRA	CONTACTO diámetro (mm)	AMPOLLA	
		diámetro(mm)	profun.(mm)
Fleje de Zry-4 recocido	2,5	2,4	0,6
Tubo de Zr-2,5%Nb laminado	0,9	1,0	-
Tubo de presión Zr-2,5%	2,5	2,9	1,1

Aplicando la punta fría cuadrada sobre una muestra de Zr-2,5%Nb se obtuvieron varias ampollas, esto se debió a que el contacto no fue uniforme.

No se observaron fisuras en las ampollas, la mayor de las cuales tenía 1,2 mm de diámetro y 0,37 mm de profundidad.

Como se observa en estos resultados la presencia de fisuras en las muestras no están asociadas al tamaño de las ampollas sino más bien a la naturaleza del contacto. Los contactos circulares ejercen una mayor presión sobre la ampolla en crecimiento favoreciendo su fisuración.

2) Propagación de fisuras en la ampolla

Aunque la tensión aplicada no se pudo medir se comprobó que la fisura presente en la ampolla se propaga en forma casi instantánea, atravesando toda la ampolla y la zona de interfase ampolla-matriz y deteniéndose cuando alcanza la matriz de Zry-4.

Una segunda fisura se inició a 45° de la anterior y se propagó en condiciones semejantes (foto 1).

Se comprobó que cuando las fisuras alcanzan la zona de alta densidad de hidruros de la interfase ampolla-matriz su propagación se realiza preferentemente por los hidruros. Se observó la formación de pequeñas fisuras próximas a la punta de la fisura inicial, a la cual se unen cuando aumenta la tensión aplicada.

Aplicando mayor tensión se comprobó que la matriz comienza a deformar plásticamente en los extremos de las fisuras sin que éstas alcancen a propagarse, aún cuando se llegó a la máxima deformación permitida por la prensa (foto 2). Es importante notar que existía una alta densidad de hidruros en la matriz, sin embargo su orientación (preferentemente paralela a la superficie de la muestra) no es la apropiada para permitir la propagación de las fisuras.

La observación en MEB de la superficie de fractura, una vez abierta la probeta, mostró que la fractura fue totalmente frágil en la zona de la ampolla constituida por hidruros de Zr. En la zona de interfase ampolla-matriz la fractura fue dúctil-frágil y se encontraron fisuras secundarias asociadas a los hidruros. En el resto de la muestra la fractura fue dúctil.

CONCLUSIONES

No se encontró una relación directa entre el tamaño de las ampollas y la presencia de fisuras en las mismas, siendo más significativo el tipo de contacto empleado. Se requiere de un análisis más exhaustivo para llegar a una conclusión definitiva.

Se corroboró que las ampollas son sumamente frágiles y que las fisuras se propagan instantaneamente en su interior hasta alcanzar la interfase ampolla-matriz.

No se produce propagación de fisuras en la matriz de Zry-4.

Agradecimientos:

Se agradece a los Srs. Diego F. Zalcmán, Edgardo Elvis y Elio Buzzi por su apoyo técnico.

REFERENCIAS

1. A. Zawatzky. Canadian Met. Quarterly. 24 N°3, 1983, pp. 227-234.
2. G.J. Field, J.T. Dunn y B.A. Cheadle. Canadian Met. Quarterly. 26 N°3, 1985. pp. 181-188.
3. A. Sawatzky. AECL N° 1046.

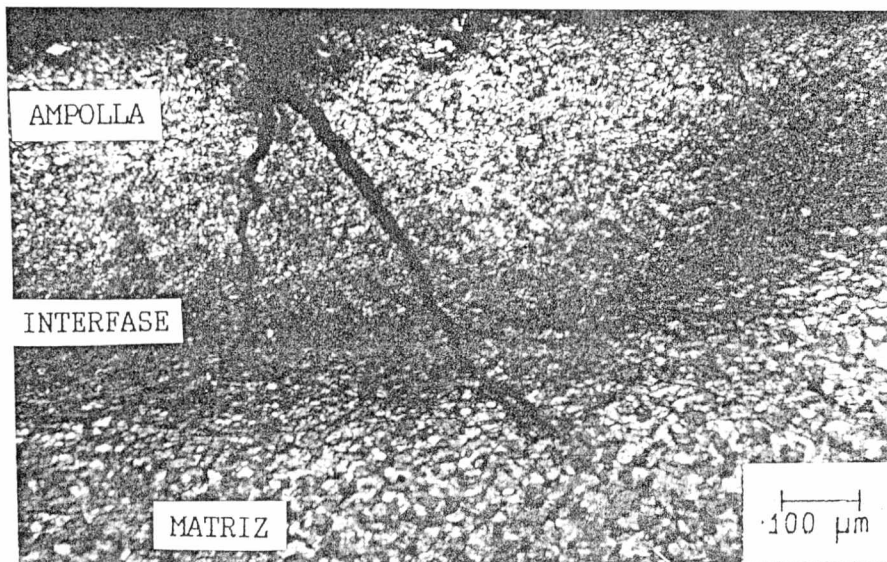


Foto 1 -
Fisuras que se
han propagado
en una ampolla
de hidruro de
circonio por
flexión de la
muestra de
Zry-4.

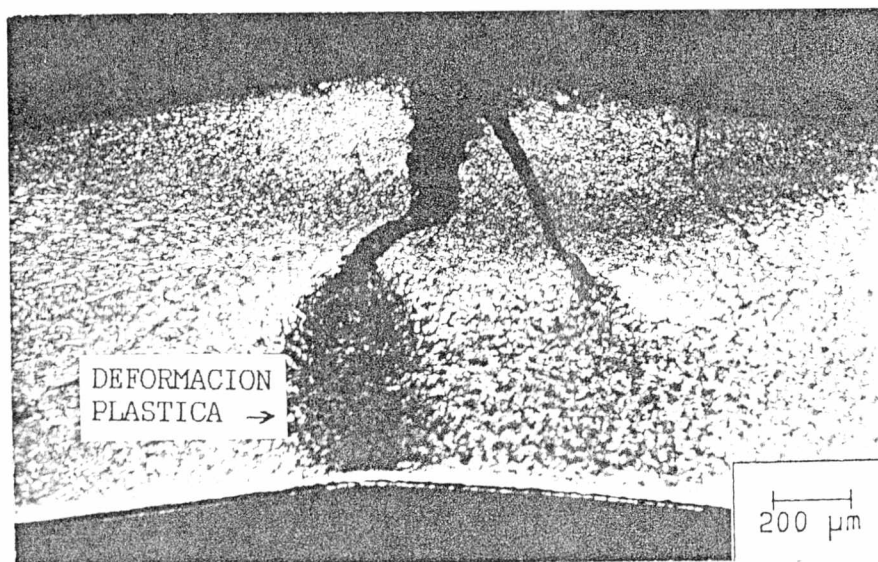


Foto 2 -
Estado de la
muestra una
vez alcanzada
la máxima de-
formación po-
sible.