

CONTROL DE LA CORROSIÓN DE ELEMENTOS COMBUSTIBLES GASTADOS EN ALMACENAMIENTO EN HÚMEDO

Babiche I. cbabiche@ipen.gob.pe; Revilla A. arevilla@ipen.gob.pe

Instituto Peruano de Energía Nuclear / Lima 41, Perú

RESUMEN

El objetivo de este estudio es la determinación que factores promueven la corrosión de los elementos combustibles gastados durante el almacenamiento en húmedo y de este modo definir las alternativas de control de la corrosión. El trabajo se inició identificando los materiales que constituyen los elementos combustibles y las estructuras del tanque principal y pileta auxiliar, así como también la calidad del agua del RP-10. Teniendo esta información se obtendrá el protocolo que estandarizará el seguimiento y monitoreo de estos materiales. Este protocolo permitirá tomar acciones de supervisión y control evitando que se produzca un deterioro por corrosión debido a picado, corrosión galvánica y/o hendiduras, y de esta manera, asegurar la integridad de las vainas durante el almacenamiento en húmedo previo a su disposición final.

1 INTRODUCCIÓN

El Instituto Peruano de Energía Nuclear (IPEN) posee dos reactores de investigación cuyos elementos combustibles gastados deberán ser gestionados en el futuro. Para ello, uno de los problemas que nos enfrentaremos es como asegurar la integridad de los contenedores o vainas de estos elementos durante el almacenamiento en húmedo por lo menos 25 años. Para lograr este objetivo, es necesario evaluar la resistencia a la corrosión de estos materiales en las condiciones de almacenamiento en húmedo actuales, lo cual nos permitirá establecer si se requiere modificarlas para inhibir su agresividad, previo a su disposición final.

Reactor RP-10

El reactor nuclear RP-10 del Centro Nuclear "RACSO" es un reactor tipo piscina de potencia nominal 10 MW. Este reactor alcanzó su criticidad el año 1988 y utiliza elementos combustibles tipo MTR enriquecido con U^{235} al 20%, Fig.1.

Para llevar a cabo el control de la corrosión de los elementos combustibles gastados, se debe considerar como primera etapa en este estudio el identificar los materiales involucrados y la calidad de agua presente en las piscinas de los reactores.

A. Caracterización de Materiales en el RP-10

• Elemento Combustible

1.Fuel element type	FLAT PLATE
2.Longitud nominal y sección transversal (cm)	L:65.5 / ST: 6.72x0.176
3.Dimensiones nominales del meat del combustible	61.5 x 6.275 x 0.1
4.Peso nominal total del meat del combustible (g)	168.2
5.Forma química del meat del combustible	U_3O_8 -Al
6.Peso total U, peso del U^{235} (g)	U : 88.6 , U^{235} : 17.5±0.26
7.Material disperso	U_3O_8 en Aluminio
8.Material de la vaina / Método de sellado	AlMg1 / Well proven picture technique
9.Grosor de la Vaina (cm)	0.38

En general existen tres tipos de elementos combustibles:

Elemento Combustible Normal (ECN): (ISO) AlMg1 (Si 0.3, Fe 0.7, Cu 0.2, Mn 0.2, Mg 0.5 – 1.1, Cr 0.1, Zn 0.25, otros 0.15).

Elemento Reflector de Berilio (ECR): (ISO) AlSi1MgMn – (DIN) AlMgSi1 (Si 0.7 – 1.3, Fe 0.5, Cu 0.1, Mn 0.4 – 1.0, Mg 0.6 – 1.2, Cr 0.25, Zn 0.2, Ti 0.1, otros 0.15).

Elemento Reflector de Carbono (ECR): (ISO) AlMgSi – (DIN) AlMgSi0.5 (Si 0.3 – 0.6, Fe 0.1 – 0.3, Cu 0.1, Mn 0.1, Mg 0.35 – 0.6, Cr 0.05, Zn 0.15, Ti 0.1, otros 0.15).

- **Material Tanque Principal y Pileta Auxiliar**

Linner : Acero Inoxidable 316L (SS Austenítico X10CrNiTi189)

Grilla : Aluminio 99.5 IRAM 681 (Al 99.5 min., Si+Fe 0.5 max., Zn 0.1 max., Cu 0.1 max., Mg 0.05 max., Mn 0.05 max.)

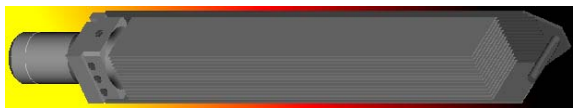


Figura 1. Esquema del elemento combustible tipo MTR.

B. Agua de la Piscina del Reactor RP-10

B.1 Química del Agua

El agua de la piscina es controlada cada vez que se opera el reactor en los parámetros de temperatura, conductividad y pH en forma continua; además, semanalmente se toma muestras de agua de la superficie, nivel intermedio, fondo y pileta auxiliar midiendo el pH, conductividad, temperatura, concentración de cloruros y fierro. Los niveles de los cinco parámetros controlados según normas internas del IPEN, los cuales son considerados los más importantes son indicados en la siguiente tabla:

Tabla 1.

Parámetro	Intervalo de Trabajo
Temperatura °C	15 < °C < 45
Conductividad µS/cm	< 2.00
pH u.p.h.	5.5 < pH < 6.5
Cloruros mg/L	< 1.00
Fierro mg/L	< 0.05

B.2 Radionucleídos en el RP-10

Se envían muestras de agua de la piscina del reactor para que se les realice un análisis radiométrico mediante espectrometría gamma de alta resolución. El contenido de radionucleído de la piscina es medido principalmente para controlar la presencia de Cesio-137. El Cesio es extremadamente soluble en el agua y la tasa de actividad está directamente relacionada a la tasa de corrosión del uranio.

C. Seguimiento y Monitoreo de la Corrosión de Elementos Combustibles Gastados

Generalmente el agua de las piscinas de los reactores es agua desmineralizada y, a temperatura ambiente, las velocidades de corrosión son bajas. Sin embargo, se debe asegurar la resistencia a la corrosión de estos materiales para el almacenamiento de los elementos combustibles gastados durante períodos largos de tiempo Ref.[2].

Para realizar la evaluación de la resistencia a la corrosión de los elementos combustibles se deben considerar los siguientes factores que influyen en su deterioro: composición de la aleación, calidad de agua (pH, conductividad, y presencia elementos pesados), efectos galvánicos y de hendidura Ref.[3]. Otros problemas que ocasionan también corrosión corresponden al daño mecánico producido en las vainas por remoción de termocuplas, ampollas causadas por el gas hidrógeno y la deformación por efectos térmicos.

Para efectuar este seguimiento y monitoreo, en el marco del proyecto RLA/4/018, se realizarán experiencias in situ y experiencias de laboratorio, siendo estas últimas de carácter opcional para cada país. Debido a la cantidad de variables que deben ser consideradas (movimiento de agua, presencia de lodos, gradientes de temperatura, actividad de radionucleídos, etc.) el desarrollo del Protocolo, es la etapa más importante del proyecto, ya que nos permitirá estandarizar los métodos de control de tal forma que los resultados sean comparables entre los países participantes.

Perú está realizando experiencias de laboratorio con el fin de caracterizar la susceptibilidad al picado del aluminio 6061 y del acero 304, materiales comunes encontrados en nuestros reactores.

Experiencia de Laboratorio

El reactor nuclear RP-10 posee elementos combustibles tipo MTR enriquecido con U²³⁵ al 20%, los cuales son fabricados de Aluminio 6061.

Se deberán realizar ensayos electroquímicos, utilizando como electrodo de trabajo Al 6061 y acero inoxidable 304L. Con una celda de tres electrodos, platino como electrodo auxiliar y Ag/AgCl como electrodo de referencia. Definiéndose previamente el área del electrodo de trabajo. La superficie del electrodo será lijada y posteriormente pulida con alúmina. El electrolito a utilizar será agua de la piscina

del reactor. Esta experiencia tendrá como finalidad la evaluación de la corrosión con respecto a la composición de la aleación, concentración del ión cloruro, conductividad, pH, etc.

En la caracterización electroquímica se utilizarán técnicas potenciodinámicas, potencioestáticas y galvanostáticas. A través de técnicas de caracterización de superficies se podrá evaluar la morfología, estructura de los productos de corrosión, etc. Para ello se deberá utilizar SEM, DRX y XPS, etc.

El desarrollo de estas técnicas se encuentra en plena implementación.

Caracterización de la agresividad del agua de la piscina del reactor RP-10 [3, 4].

Utilizando la correlación de Pathak y Godard, Ref.[4], se quiere predecir la corrosividad del aluminio en agua. Este índice de velocidad de pit (PRI) está definido como el número de semanas necesarias para alcanzar una profundidad máxima de pit de 40 mils. La correlación de Pathak y Godard tiene la siguiente expresión:

$$\text{Log PRI} = 2.5 - 0.28 \log[\text{SO}_4^-] + 0.18 \log[\text{Cl}^-] - 0.20 \log [(\text{pH}-7)^2 \times 100] - 0.42 \log (30000/\text{R}) - 0.064 \log (\text{cobrex}10^3)$$

Donde R = 1/C (conductividad en $\mu\text{S}/\text{cm}$)

Un índice de velocidad de pitting menor que 25 semanas es indicativo de un agua agresiva.

2 CONCLUSIONES Y RECOMENDACIONES

En el reactor RP-10 durante años se ha efectuado un riguroso control de la calidad del agua, controlando principalmente la conductividad, pH y los iones cloruro y Hierro total. Durante todo el tiempo que el reactor RP-10 ha estado operando, sólo en forma ocasional estos valores han sobrepasado los máximos de la norma, tomándose en forma inmediata las medidas necesarias para corregir esta situación.

Como una manera de caracterizar la agresividad el agua del RP-10, se utiliza la correlación de Pathak y Godard obteniéndose un índice de 429 semanas, éste indica que se está ante un agua que no es agresiva. Por lo cual, de mantenerse los

actuales niveles de elementos químicos, pH y conductividad no debería presentarse corrosión que pueda provocar la perforación de la vaina de los elementos. Esta situación concuerda con lo registrado y observado en la actualidad, no se detectándose ningún tipo de corrosión a pesar de haber estado los elementos combustibles sumergidos en agua más de 15 años.

Si se analiza el índice de Pathak y Godard obtenido y la información bibliográfica existente para el almacenamiento de elementos combustibles gastados se encuentra que los niveles presentes en el agua del RP-10 están bajo los máximos informados para evitar la corrosión y asegurar su integridad por lo menos 25 años.

De la información bibliográfica existente se encuentra que los factores más importantes para evitar la corrosión son la composición y química del agua. Manteniendo un estricto control de la conductividad, pH y presencia de impurezas (metales pesados y otros) bajo los valores sugeridos por la bibliografía sería posible prevenir la corrosión o minimizarla en períodos largos de tiempo.

Si no se controla la calidad de agua y las cuplas metálicas, los tipos de corrosión que pueden presentarse en los elementos combustibles y estructuras del reactor corresponderían a: corrosión localizada (pitting), galvánica y de hendidura.

La corrosión por picado, es la más peligrosa por ser localizada, en la cual el metal es removido preferentemente en puntos sobre la superficie manifestándose en cavidades o pits. Este ataque es generalmente limitado a pequeñas áreas mientras el área remanente permanece intacta. Este tipo de daño puede causar la penetración y sobretodo la perforación de la vaina y la posterior liberación de productos de fisión. El ión cloruro sigue siendo el más perjudicial cuando se encuentra presente en concentraciones mayores a 1 ppm en las piscinas de los reactores. El aluminio y el acero inoxidable son susceptibles a sufrir este tipo de corrosión.

La corrosión galvánica ocurre cuando dos metales, generalmente diferentes están acoplados eléctricamente en un mismo electrolito. En el caso de la piscina del RP-10, la estructura es de acero inoxidable, los elementos combustibles y algunas

estructuras son de aluminio y los racks sumergidos están compuestos de varios tipos de aluminios y aceros. Esta situación podría dar origen a corrosión galvánica.

De las aleaciones identificadas el Aluminio y el acero inoxidable forman un par galvánico, aún a bajas concentraciones del ión cloruro. Donde el aluminio actuará como ánodo presentando corrosión y el acero inoxidable como cátodo. Esta cupla o par está presente en el RP-10. De las referencias bibliográficas se confirma que la diferencia de potencial existente entre el acero inoxidable y el Aluminio es lo suficiente como para generar alteraciones en el metal menos noble (Aluminio).

De la experiencia en otras piscinas REF. [5], los pares galvánicas entre el acero inoxidable y las vainas de aluminio de los elementos combustibles y el almacenamiento en racks juegan un rol muy importante en la aceleración de los procesos de corrosión por picado.

La corrosión por hendiduras posee un mecanismo complejo y los medios para disminuirla son limitados. Se presenta en metales que producen capas de óxidos protectoras los que son especialmente susceptibles a las hendiduras. Se presentan especialmente en aluminios.

Por todo lo anteriormente mencionado, los materiales que componen los elementos combustibles e instalaciones del reactor RP-10 se puede presentar: corrosión por picado, galvánica y hendidura.

Es importante comparar las características del agua del RP-10, por lo menos con los demás países de la región, para así, mejorar las condiciones actuales de almacenamiento de los elementos combustibles gastados. Tomando las precauciones para que el almacenamiento de los elementos combustibles gastados cumplan con las condiciones de seguridad establecidas.

3 REFERENCIAS

[1] ASM International. Aluminum and Aluminum Alloys / Volume I. Introduction to aluminum and aluminum alloys

[2] Workshop on Characterization, Management and Storage of Spent Fuel from Research and Test Reactors [IAEA Project RER/9/058 in Swierk, Poland, 8-12 May 2000).

[3] Howell JP. Corrosion of Aluminum-Clad Spent Fuel in Reactor Basin Water Storage (U). NACE International Annual Conference (Corrosion '95).

[4] Pathak BR, Godard HP. Equation for predicting the corrosivity of natural fresh waters to aluminum. Nature. 1968; 218: 893-894.

[5] James P. Howell. Durability of Aluminum-Clad Spent Nuclear Fuels in Wet Basin Storage. The NACE International Annual Conference and Exposition Corrosion 96, Paper N°128, p. 128/1 –128/20.