

C.N.E.A. Biblioteca	
ARCHIVO PUBLICACIONES	
NO 1	AÑO 1978

01.78.34

CNEA-NT 2/78

COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA  
PRESIDENCIA DE LA NACION

CRECIMIENTO POR IRRADIACION DE CIRCONIO Y SUS ALEACIONES

D. Fainstein de Pedraza\*

E.J. Savino

A.J. Pedraza\*

\* Dirección actual: Universidade Federal de Minas Gerais,  
Escola de Engenharia, Dept. Enga. Metalurgica, 30000  
Belo Horizonte, M.G., Brasil

Departamento de Materiales  
Buenos Aires - Argentina

1977

## A B S T R A C T

A review of the experimental information available on neutron irradiation growth in  $\alpha$ -Zirconium and its alloys and related phenomena, is first presented. In connection with the latter, particular attention is paid to irradiation induced dislocation loops. Since irradiation growth is a consequence of crystalline anisotropy, various anisotropic properties of Zr-base alloys and their possible relationship with the process, are briefly discussed. Next, a critical analysis of the known models - both qualitative and quantitative - which attempt to explain the growth phenomenon is performed. In the final part of this work, a simple model for explaining irradiation growth of polycrystalline zirconium-base alloys has been developed by considering the operation of two point defect sinks, namely the lattice dislocation network and the grain boundaries. The grain shape resulting from pre-irradiation mechanical treatments has been taken into account as well. This model predicts growth strains that are in good agreement with experimental data concerning cold-worked material. For annealed specimens, agreement with experimental strain rates is achieved at high doses only.

The proposed (dislocation) model has been next extended by incorporating the influence upon growth of irradiation induced extrinsic dislocation loops. Again, agreement of experimental results on cold worked material and this (loop) model may be obtained though calculated strains seem to be rather lower than the experimental ones, but it fails to explain the growth behavior of annealed specimens.

## RESUMEN

Se presenta en primer término una revisión de la información experimental existente acerca del crecimiento por irradiación neutrónica en Circonio- $\alpha$  y sus aleaciones, y fenómenos vinculados. Relativo a estos últimos, se presta particular atención a los anillos de dislocación inducidos por irradiación. Dado que el crecimiento por irradiación es una consecuencia de la anisotropía cristalina se discuten brevemente diversas propiedades anisotrópicas de las aleaciones de base circonio y su posible vinculación con el proceso. A continuación se analizan y discuten los modelos de crecimiento conocidos en la literatura. En la parte final de este trabajo se propone un modelo simple para explicar el crecimiento en especímenes policristalinos. En este modelo se considera la operación de dos sumideros de defectos puntuales, a saber, las dislocaciones de la red y los bordes de grano. También se toma en cuenta la forma de grano resultante de tratamientos mecánicos previos a la irradiación. Este modelo predice deformaciones de crecimiento que ajustan bien los datos experimentales relativos a material trabajado en frío. Para especímenes recocidos, el acuerdo con las velocidades de crecimiento se encuentra a altas dosis solamente.

El modelo de dislocaciones propuesto se extiende luego con el objeto de incorporar la influencia en el crecimiento de los anillos de dislocación inducidos por irradiación. Nuevamente, puede obtenerse un buen acuerdo entre los resultados experimentales de material trabajado en frío y este modelo, si bien los crecimientos calculados parecerían un poco menores que los experimentales. Sin embargo, el modelo de anillos no puede explicar la ley de crecimiento de especímenes recocidos.

## I N D I C E

	pág.
I INTRODUCCION .....	1
II REVISION BIBLIOGRAFICA .....	4
II.1. Formación de anillos de dislocaciones en Zr- $\alpha$ y aleaciones .....	4
1. Irradiación por neutrones .....	5
2. Bombardeo iónico .....	9
3. Bombardeo electrónico .....	11
4. Resumen .....	11
II.2. Crecimiento por irradiación en Zr- $\alpha$ y sus aleaciones .....	14
III ANISOTROPIAS EN Zr- $\alpha$ Y SUS ALEACIONES .....	21
III.1 General .....	21
III.2 Modelos de crecimiento por irradiación ....	22
IV DESARROLLO DE MODELOS PARA EXPLICAR EL CRECIMIEN TO EN ALEACIONES DE Zr BAJO IRRADIACION NEUTRONICA	30
IV.1. Anisotropía de la red de dislocaciones ....	31
1. Resultados numéricos y comparación con datos experimentales .....	34
IV.2. Anisotropía de los anillos de dislocación inducidos por irradiación .....	38
IV.3. Discusión y conclusiones .....	45
TABLAS .....	52
APENDICE I .....	63
APENDICE II .....	65
APENDICE III .....	77
APENDICE IV .....	79
REFERENCIAS .....	82
FIGURAS .....	85

## CRECIMIENTO POR IRRADIACION DE CIRCONIO Y SUS ALEACIONES

### I. INTRODUCCION

Los metales al ser irradiados sufren modificaciones microestructurales que no sólo influyen en su comportamiento -por ejemplo el endurecimiento y la fragilización por irradiación- sino que también pueden dar lugar a cambios en sus dimensiones físicas. Esta variación dimensional, provocada o acentuada por la irradiación, resulta de importancia fundamental en el diseño de los elementos combustibles y de los componentes del núcleo de un reactor.

El cambio dimensional relativo a una variación de volumen del cuerpo se denomina hinchado. Además de éste, el material sometido a irradiación en general se deforma plásticamente, deformación inexistente o que sigue distintas leyes en ausencia de irradiación. Esta deformación resulta en un cambio de forma a volumen constante. Ello implica, por lo tanto, la existencia de direcciones preferenciales ya que para que un cuerpo cambie su forma sin alterar su volumen debe dilatarse en ciertas direcciones y contraerse en otras. Estas direcciones pueden estar determinadas ya sea externamente -por ejemplo en el caso de una tensión direccional aplicada, que da lugar a creep, o bien por anisotropías internas características del material y del proceso de fabricación.

El cambio de forma (a volumen constante) que experimenta un material sometido a irradiación y libre de tensiones externas se denomina crecimiento por irradiación. Este fenómeno es una consecuencia de la irradiación y de la existencia de anisotropía cristalina que se manifiesta en anisotropías de distintas propiedades

físicas. Por lo tanto, sólo puede ser observado en muestras monocristalinas o texturadas.

Paine y Kirtel (1) observaron que la longitud de barras de uranio laminadas en frío aumenta exponencialmente con la dosis total de neutrones según la ley

$$l = l_0 \exp (Gf)$$

donde  $l$  y  $l_0$  son las longitudes instantánea y original respectivamente, y  $f$  es la fracción de átomos fisionados (quemado). Puede verse que la velocidad instantánea de crecimiento depende de la irradiación previa y puede parametrizarse mediante el factor  $G$ . Para elongaciones pequeñas,

$$G \approx \frac{l - l_0}{f l_0} = \frac{\epsilon}{f}$$

$G$  puede depender de las condiciones de irradiación, temperatura, dosis, como así también de las imperfecciones de la red, orientación de los granos y, en especial, de la anisotropía del material.

Debido a su baja absorción neutrónica, diversas aleaciones de circonio son utilizadas en componentes del reactor que se hallan en la zona del núcleo. Estos materiales son anisotrópicos y, en general, el proceso de fabricación determina una orientación preferencial de los granos (textura). Como se comprueba experimentalmente, dichos componentes varían su forma durante la vida útil del reactor; esta variación puede ser significativa, en cuyo caso debe ser incluida en los cálculos del diseño. Tratándose de un material no fisionable, irradiado con neutrones el coeficiente de crecimiento se define como (2)

$$G = \frac{d\varepsilon}{\sigma d(\phi t)}$$

donde  $\sigma$  es la sección transversal para colisiones neutrónicas y  $\phi$  es el flujo integrado. Esto es,  $G$  es el cociente entre la extensión fraccional y la fracción de átomos de la red que sufren colisiones neutrónicas.

Como se señaló más arriba, la existencia del fenómeno de crecimiento debe necesariamente vincularse a la anisotropía cristalina. Para que haya cambio de forma es necesario que se transfieran átomos de un plano cristalino -lo cual se evidencia por una contracción normal a dicho plano- a otro plano cristalino, dando lugar a una expansión normal a este último. Este proceso puede realizarse a través de diversos mecanismos, v.g., por migración individual de átomos o por un movimiento atómico cooperativo (deformación plástica, maclado, deslizamiento). Estos procesos pueden ocurrir en forma atérmica o por movimiento difusional.

El conocimiento de los mecanismos físicos que dan lugar al crecimiento por irradiación es relevante para el desarrollo de nuevas aleaciones o posibles modificaciones en la ruta de fabricación. Sin embargo, hasta el presente no existe en la literatura un modelo coherente con la totalidad de los resultados experimentales que explique el origen del fenómeno en aleaciones de base circonio.

El propósito del presente trabajo es:

- 1) Compilar la información existente sobre crecimiento por irradiación y fenómenos vinculados en circonio y sus aleaciones.
- 2) Enumerar diversas propiedades anisotrópicas del material y señalar su posible vinculación con el proceso de crecimiento.

- 3) Realizar un análisis crítico de los modelos que aparecen en la literatura.
- 4) Elaborar un modelo cuantitativo del crecimiento por irradiación bajo neutrones.

## II. REVISION BIBLIOGRAFICA

Uno de los fenómenos cuya influencia en el proceso de crecimiento ha sido muy controvertido, es el de la formación de anillos de dislocaciones inducidos por irradiación. Es por esta razón que resulta importante brindar una revisión de los trabajos experimentales conectados con la generación de dichos defectos. La revisión que se ofrece a continuación está basada en un trabajo anterior de Maddeñ (3).

### II.1. Formación de anillos de dislocaciones en Zr- $\alpha$ y Aleaciones

El efecto de la irradiación en la microestructura del circonio ha sido estudiado por diversos investigadores en diferentes rangos de dosis incidente, temperatura de irradiación, trabajado en frío y/o recocidos previos a la irradiación, recocidos post-irradiación, etc. Los detalles de varios experimentos se resumen en la Tabla I. Las investigaciones se hicieron irradiando con neutrones, con iones pesados, o con electrones.

El bombardeo iónico permite simular los efectos de la irradiación por neutrones en una escala de tiempo mucho más reducida, siempre que se evite el estadio en que los efectos químicos de las impurezas se hacen importantes. El bombardeo electrónico - por otra parte- ofrece la posibilidad de observaciones in-situ del daño por radiación a medida que éste se produce.

### 11.1.1. Irradiación por neutrones

En la Tabla I puede verse que las dosis de irradiación están en el rango de  $3.0 \times 10^{19} \text{ ncm}^{-2}$  a  $8 \times 10^{21} \text{ ncm}^{-2}$  ( $E > 1 \text{ MeV}$ ) y las temperaturas de irradiación, entre la ambiente y  $550^\circ\text{C}$ .

Williams y Gilbert (4) observaron en Zircaloy-2 que la densidad de agrupamientos de defectos y anillos de dislocaciones alcanza un valor de saturación de  $\approx 3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  para dosis inferiores a  $5.0 \times 10^{20} \text{ ncm}^{-2}$  a  $300^\circ\text{C}$ . Esta densidad no aumenta significativamente con dosis más elevadas (hasta  $\approx 10^{22} \text{ ncm}^{-2}$ ); sin embargo, se observa un aumento en el diámetro promedio de esos defectos.

Así, el pico del espectro de tamaños se corre de  $50 \text{ \AA}$  para dosis de  $4 \times 10^{19} \text{ ncm}^{-2}$  a  $100 \text{ \AA}$  para dosis de  $2 \times 10^{21} \text{ ncm}^{-2}$ . A  $300^\circ\text{C}$  y en el rango de dosis utilizadas no observaron crecimiento ni interacción de anillos de dislocaciones. Los defectos inducidos por irradiación a  $\approx 500^\circ\text{C}$  son similares a los observados en el Zircaloy-2 irradiado a  $300^\circ\text{C}$ , si bien la proporción de anillos de mayor tamaño es más alta. La evolución de los defectos frente a recocidos post-irradiación a  $\approx 500^\circ\text{C}$  durante 1 h es similar para materiales irradiados a  $300^\circ\text{C}$  y a  $500^\circ\text{C}$ , esto es, o bien se aniquilan o bien crecen hasta alcanzar un diámetro de  $\approx 300 \text{ \AA}$ . Para recocidos de 1 h a  $550^\circ\text{C}$ , los anillos que no desaparecen interaccionan durante su crecimiento formando una red de dislocaciones. No se observó una disminución significativa de defectos en la vecindad de bordes y subbordes de grano en material irradiado (sin recocidos posteriores) así como tampoco la formación de huecos. Por otra parte, aparecen hidruros con morfología de placa, efecto que aumenta con la dosis. Williams y Gilbert asociaron estas placas con fuentes de

dislocaciones y sugirieron que las trazas libres de defectos observadas en los especímenes sometidos a recocido post-irradiación, se forman a medida que las dislocaciones emitidas desde los hidruros durante la precipitación o durante el enfriamiento subsiguiente-aniquilan los defectos inducidos por irradiación en el curso de su movimiento.

Especímenes de Zr, Zr-2, Zr-2.5 Nb y Zr-2 Mo fueron irradiados por Carpenter y Watters (5) con dosis de  $5.5 \times 10^{19} \text{ ncm}^{-2}$  a una temperatura de 50-100°C. El daño inducido por irradiación fué analizado por microscopía electrónica en dos grupos con distintos tratamientos previos a la irradiación. En uno, los materiales fueron recocidos en la fase  $\alpha$  con el objeto de alcanzar la estructura de equilibrio. En el otro, las muestras fueron templadas en agua desde la fase  $\beta$  luego de un recocido de 1 h a 1000°C. En los especímenes pre-recocidos en la fase de bajas temperaturas se observaron agrupamientos de defectos puntuales con un diámetro de 30-70 Å y una concentración estimada de  $5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ . En las muestras de Zr-Nb y Zr-Mo templadas desde la fase  $\beta$  y sometidas a un recocido post-irradiación de 1 h a 460°C, se observó una densidad de precipitados finos, no pudiéndose distinguir si había algún daño residual.

La influencia de tratamientos previos a la irradiación y de la temperatura de irradiación en la microestructura resultante en Zr y en Zircaloy-2 fueron estudiados por Riley y Grundy (6). La mayoría de los anillos observados presentan un diámetro inferior a 500-600 Å, mostrando ulteriormente una tendencia a formar líneas de dislocaciones por algún proceso de combinación. En Zircaloy-2 pre-recocido e irradiado a 300°C, el diámetro promedio de los anillos es de 250 Å. Independientemente de los valores particulares relativos al tamaño de los defectos, los resultados presentados en (6) indican las siguientes características: 1) En Zircaloy-2, en el rango de temperatura de irradiación de 200-400°C, a medida que disminuye la temperatura de irradiación la distribución de tamaños es más estrecha y el pico de tamaño

es más pronunciado que en la distribución que se obtiene para el Zr puro; 2) para ambos materiales, la eficiencia del trabajado en frío previo a la irradiación para la aniquilación de defectos inducidos aumenta a medida que disminuye la temperatura de irradiación. Dicha eficiencia es mayor en Zircaloy-2 que en Zr puro; 3) las distribuciones de tamaños son semejantes para ambos materiales pre-recocidos e irradiados a 400°C. En este trabajo, los vectores de Burgers no pudieron ser determinados sin ambigüedades. No obstante, los autores señalaron que algunas observaciones pueden explicarse por los valores  $\frac{1}{3} [11\bar{2}3]$  y  $\frac{1}{3} [11\bar{2}0]$ . Asimismo, los planos de hábito parecen ser básicamente piramidales (los  $\{10\bar{1}0\}$  y  $\{11\bar{2}0\}$ ) si bien otros resultados sugieren que también los planos  $\{11\bar{2}5\}$  pueden ser significativos en el Zr ya que hallaron evidencia de crecimiento de anillos y movimiento de dislocaciones en esos planos.

Kelly y Blake (7) estudiaron las características de los anillos de dislocaciones inducidos por irradiación en Zr sometido a recocidos post-irradiación. Concluyeron que, en Zr irradiado con una dosis de  $1.4 \times 10^{20} \text{ ncm}^{-2}$  y luego recocido durante 1 h en el rango 450-500°C, se forman anillos perfectos. Tanto en este caso como en el de especímenes irradiados a 300°C sin recocido ulterior, el vector de Burgers es el  $\frac{a}{3} [11\bar{2}0]$  y no hay anillos en el plano basal. Los anillos no son  $\frac{3}{4}$  de borde puro y el ángulo entre la normal al plano de hábito y el vector de Burgers disminuye a medida que aumenta el radio del anillo. Al cabo de un recocido de 1 h a 490°C, encuentran que  $\frac{2}{3}$  de los anillos son intrínsecos (de vacancias).

Adamson, Bell y Lee (8) estudiaron el daño por radiación en Zr puro recristalizado y en Zircaloy-2 recristalizado, trabajado en frío y recocido previo a la irradiación. En Zircaloy-2

de alta pureza irradiado a 327°C con una dosis de  $6.4 \times 10^{20} \text{ ncm}^{-2}$  observaron defectos con un diámetro de  $\approx 100 \text{ \AA}$ . Zircaloy-2 de menor pureza exhibe una estructura de daño similar para las mismas condiciones. Estos autores observaron además un efecto de contraste peculiar en la microscopía electrónica de láminas delgadas de ambos materiales consistente en bandas alternadas de contraste blanco y negro superpuestas a la estructura usual de daño. Este efecto, observado en Zircaloy-2 irradiado a 327°C con una dosis de  $6 \times 10^{20} \text{ ncm}^{-2}$ , fué denominado "corderoy". Estas dosis son  $\approx 1$  orden de magnitud mayores que las utilizadas en las referencias (6) y (7) en donde no se observó este efecto. Bell (9) describió las características esenciales del corderoy en los siguientes términos: a) Se observa sólo cuando el cristal tiene una orientación muy cercana a una posición de Bragg exacta; b) en general, la dirección de las bandas coincide con la traza de un plano basal (0001) en la lámina; c) la extensión, intensidad y espaciado del corderoy varían de un espécimen a otro; d) el corderoy puede eliminarse por deformación plástica severa o por un recocido post-irradiación de  $\approx 1$  h a 450°C o más alta, aún cuando queda una cantidad considerable de daño residual; y e) el corderoy no es debido a un alineamiento de defectos inducidos por irradiación.

Northwood y Gilbert (10) observaron un contraste de corderoy similar en Zircaloy-2 irradiado a 290°C con una dosis de  $7.8 \times 10^{21} \text{ ncm}^{-2}$ ; este contraste permaneció luego de un recocido de 1 h a 400°C. Kelly, Blake y Jostsons (11), a diferencia de Bell, interpretaron el efecto de corderoy en Zr en términos de un alineamiento de anillos de dislocaciones con vector de Burgers  $\frac{a}{3} [11\bar{2}0]$  en bandas paralelas al plano basal y una consecuente relajación de las láminas delgadas usadas en microscopía electrónica de transmisión. Estos autores señalan que obviamente

el cordero no existe en especímenes masivos de Zr irradiado, pero puede ser considerado como un efecto típico de lámina delgada causado por la relajación de la lámina debido al largo alcance del campo de tensiones de los anillos alineados.

### 11.1.2. Bombardeo iónico

La masa de los iones de  $\text{Kr}^+$  es similar a la de los átomos de Zr. Por esta razón, Gulden y Bernstein (12) bombardearon láminas de Zr con iones de  $\text{Kr}^+$  de 150 keV para estudiar el daño por radiación mediante microscopía electrónica. La dosis utilizada fué de  $10^{13}$  iones  $\text{cm}^{-3}$  y la implantación fué realizada a temperatura ambiente. Los resultados obtenidos a una temperatura estimada de  $600^\circ\text{C}$  (las láminas fueron calentadas con el haz electrónico para mejorar la superficie) son similares a los obtenidos por Kelly y Blake (7) ya que todos los anillos inducidos por irradiación presentan un vector de Burgers basal, del tipo  $\frac{a}{3} [11\bar{2}0]$ . Además, los anillos tienen -al igual que en la referencia (7)- una componente de tornillo, siendo el ángulo entre la normal al plano de hábito y el vector de Burgers de hasta  $30^\circ$ . Estos autores sugieren que la dispersión de orientación de los anillos puede explicarse por tensiones locales debidas a anillos vecinos o por tensiones térmicas generadas durante el calentamiento de la lámina por el haz electrónico. Por otra parte, y a diferencia de Kelly y Blake, encuentran que todos los anillos son extrínsecos (de carácter intersticial).

Riley y Grundy (6) obtuvieron resultados diferentes de los de Gulden y Bernstein bombardeando láminas delgadas de Zircaloy-2 con  $\text{Kr}^{+2}$  de 80 keV y una dosis de  $10^{14}$  iones  $\text{cm}^{-3}$ . Con un recocido post-implantación observaron anillos de dislocacio-

ciones grandes cuyo plano de hábito es el  $(11\bar{2}5)$  y vector de Burgers no basal, posiblemente del tipo  $\frac{1}{3} [11\bar{2}3]$ .

Adamson y coautores (8) y Lee y Koch (13) realizaron estudios en Zircaloy-2 irradiado con iones de  $\text{Ni}^{+2}$  y de  $\text{Ni}^{+6}$ . Los primeros utilizaron iones de 5 MeV y de 46.5 MeV en el rango de temperatura 300-600°C durante la implantación y dosis de aproximadamente dos órdenes de magnitud superiores a las usadas en las experiencias con  $\text{Kr}^+$  (dosis variables entre 0.65 y 87.0 dpa; 1 dpa equivalente a  $8 \times 10^{14}$  iones  $\text{cm}^{-2}$  para  $\text{Ni}^+$  de 5 MeV. Ver Apéndice 1). Los efectos con ambas partículas debieran ser similares, pero dada la alta dosis de  $\text{Ni}^{+6}$  la posibilidad de influencias químicas no debiera descartarse. Adamson et al (8) muestran que para dosis menores que 10 dpa (equivalente a  $8 \times 10^{21}$   $\text{ncm}^{-2}$ ) y temperaturas inferiores a 400°C, los defectos predominantes son manchas negras y anillos de un diámetro de  $\approx 100 \text{ \AA}$ . Para estas condiciones, el daño es similar al producido por neutrones excepto la estructura de corderoy. Para dosis de  $2.5 \times 10^{-4}$  dpa/seg se observa muy poco daño residual al cabo del bombardeo a 500°C. A  $1.7 \times 10^{-2}$  dpa/seg. se retiene daño cuando el bombardeo es a 500°C, pero se recupera in-situ cuando es a 600°C. Tanto en (8) como en (13) se describen estructuras de defectos alineados en planos  $\{0002\}$  para altas dosis de implantación ( $>3$  dpa) y temperaturas entre 400 y 500°C. Los defectos individuales en las líneas tienen un diámetro de  $\approx 70 \text{ \AA}$  siendo el espaciado entre líneas de  $\approx 300 \text{ \AA}$ . Superpuesta a estas líneas se observa una distribución al azar de defectos de  $\approx 120 \text{ \AA}$  de diámetro. Lee y Koch (13) sugieren que estos defectos alineados se originan por la presencia de hidruros, circonio y probablemente complejos de Zr-Ni.

### 11.1.3. Bombardeo electrónico

La variación de la estructura de defectos inducidos por irradiación en función de la temperatura de irradiación y de la dosis ha sido estudiada en Zr irradiado con electrones de 1 MeV por Gelles y Harbottle (14). Los resultados de estos autores pueden resumirse como sigue: 1) A temperaturas inferiores a 300°C se observa una alta densidad de manchas negras, pero por encima de 350°C se pueden discernir anillos individuales con un diámetro mayor que 100 Å; 2) la estructura de anillos no se observa cuando la temperatura es de 600°C o existe una alta densidad inicial de dislocaciones. Estos resultados son similares en Zr y en Zry-2; 3) se observan anillos para dosis superiores a 0.1 dpa ( $1 \text{ dpa} = 2 \times 10^{22} \text{ ncm}^{-2}$  suponiendo una sección eficaz de dispersión de 30 barns para electrones de 1 MeV) y a medida que aumenta la dosis los anillos se alinean en la dirección  $(11\bar{2}0)$ ; 4) para dosis mayores que 0.6 dpa a 400°C ya no pueden distinguirse los anillos individuales porque los mismos interaccionan formando una red compleja de dislocaciones; 5) la mayoría de los anillos tienen un vector de Burgers del tipo  $\frac{1}{3} [11\bar{2}0]$ . Sin embargo  $\approx 5\%$  de los anillos están caracterizados por un vector de Burgers no-basal.

### 11.1.4. Resumen

Las observaciones más importantes acerca de la formación de anillos de dislocaciones en materiales irradiados de base Zr pueden sintetizarse como sigue:

- 1) En Zry-2 irradiado a 300°C, la densidad de defectos (anillos y agrupamientos) se satura para una dosis  $\approx 5 \times 10^{20} \text{ ncm}^{-2}$ ,

- Ilegando las observaciones hasta una dosis de  $8 \times 10^{21} \text{ ncm}^{-2}$ . No se observa ni crecimiento ni interacción de anillos (4).
- 2) En Zry-2 irradiado a  $500^\circ\text{C}$  con una dosis de  $4 \times 10^{21} \text{ ncm}^{-2}$  se observan defectos similares a los del material irradiado a  $300^\circ\text{C}$  (4).
  - 3) En las irradiaciones de 1) y 2) no se encuentran anillos con diámetro superior a los  $200 \text{ \AA}$  (4).
  - 4) En Zry-2 y en Zr irradiados a temperaturas entre  $200^\circ\text{C}$  y  $400^\circ\text{C}$  con una dosis de  $1.0 \times 10^{20} \text{ ncm}^{-2}$  se observan anillos de hasta  $500\text{-}600 \text{ \AA}$  de diámetro. No se observa un crecimiento ulterior sino más bien una tendencia a formar líneas de dislocaciones (6).
  - 5) En Zr y en Zry-2 irradiado a  $327^\circ\text{C}$  con una dosis de  $6.4 \times 10^{20} \text{ ncm}^{-2}$  se observan defectos con un diámetro de  $\approx 100 \text{ \AA}$  (7).
  - 6) En Zry-2 irradiado con  $\text{Ni}^{+2}$  y  $\text{Ni}^{+6}$  a  $400^\circ\text{C}$  y con dosis inferiores a  $10 \text{ dpa}$  los defectos tienen un diámetro de  $\approx 100 \text{ \AA}$ . Para dosis de  $2.5 \times 10^{-4} \text{ dpa/seg}$  a  $500^\circ\text{C}$  se observa muy poco daño residual. Lo mismo ocurre a  $500^\circ\text{C}$  y con dosis de  $1.7 \times 10^{-2} \text{ dpa/seg}$ , pero a  $600^\circ\text{C}$  con esta dosis el daño se recupera in-situ (8).
  - 7) En Zr irradiado con electrones no se observan anillos para dosis inferiores a  $0.1 \text{ dpa}$ . A temperaturas de irradiación superiores a  $350^\circ\text{C}$  se observan anillos con diámetros, mayores que  $100 \text{ \AA}$ . No se observan anillos a  $600^\circ\text{C}$ . Para dosis mayores que  $0.6 \text{ dpa}$  a  $400^\circ\text{C}$  no se observan anillos individuales, sino una red de dislocaciones (14).
  - 8) Recocidos post-irradiación a  $500^\circ\text{C}$  durante  $1 \text{ h}$  para los casos 1) y 2) producen la aniquilación de algunos defectos y el crecimiento de otros hasta un diámetro de  $\approx 300 \text{ \AA}$ . (4).

- 9) Recocidos post-irradiación a 550°C de 1 h para los casos 1) y 2) producen la aniquilación de algunos defectos y el crecimiento de otros que interaccionan formando una red de dislocaciones (4).
- 10) En Zr irradiado con una dosis de  $1.4 \times 10^{20} \text{ ncm}^{-2}$  a temperatura ambiente y recocido post-irradiación 1 h a 450-500°C, los anillos que se observan son perfectos (7).
- 11) En Zr irradiado en las mismas condiciones que en 10) y recocido post-irradiación 1 h a 490°C, 2/3 de los anillos son intrínsecos (7).
- 12) En Zr irradiado a 600°C con  $\text{Kr}^+$  con una dosis de  $10^{13}$  iones  $\text{cm}^{-2}$  todos los anillos son extrínsecos (12).
- 13) En Zr y en Zry-2 el trabajado en frío previo a la irradiación favorece la aniquilación de los defectos inducidos por irradiación, siendo la eficiencia mayor cuanto menor es la temperatura de irradiación (13).
- 14) La densidad de defectos inducidos por irradiación no disminuye significativamente en la vecindad de bordes y sub-bordes de granos. (4).
- 15) No se observa la formación de huecos (4,8).
- 16) Se observa precipitación de hidruros (4,8,13,14), efecto que aumenta con la dosis (4).
- 17) Se observan anillos con planos de hábito  $\{10\bar{1}0\}$ ,  $\{11\bar{2}0\}$  y  $\{11\bar{2}5\}$  y vectores de Burgers  $\frac{1}{3} [11\bar{2}0]$  para los primeros y  $\frac{1}{3} [11\bar{2}3]$  para el último (6,14).
- 18) No se observan anillos en el plano basal. Todos tienen vector de Burgers  $\frac{a}{3} [11\bar{2}0]$  pero no todos son de borde puro (7,11,12).

## 11.2. Crecimiento por irradiación en Zr y sus aleaciones

Los primeros estudios sobre crecimiento por irradiación en circonio fueron realizados por Buckley (15) quien observó (16) una expansión según las direcciones cristalinas a y una contracción según el eje c en un monocristal, mientras que el volumen se había mantenido constante. Este autor señala que la ausencia de dilatación volumétrica sugiere que los responsables de la distorsión macroscópica son agregados de defectos puntuales más bien que defectos individuales. En esa discusión (16) menciona que estudios de microscopía electrónica revelaron una estructura de daño consistente con una hipótesis de que las distorsiones según los ejes a y c se deben, respectivamente, a agregados de intersticiales en planos prismáticos y a discos de vacancias que condensan en el plano basal. Como ejemplo, presenta el caso de una lámina delgada proveniente de un cristal masivo que había sufrido una distorsión macroscópica de  $5 \times 10^{-5}$  durante la irradiación. En dicha lámina eran visibles  $1.2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  agregados de intersticiales de  $\approx 150 \text{ \AA}$  de diámetro y  $10^{16} \text{ cm}^{-3}$  agregados de vacancias de  $20\text{-}50 \text{ \AA}$  de diámetro que contribuirían vía la deformación local, ubicados conforme a su teoría, a una distorsión promedio de  $6 \pm 2 \cdot 10^{-5}$ .

Hesketh y col. (17) estudiaron el crecimiento en Zry-2 policristalino y texturado recocido previo a la irradiación 20 h a  $550^\circ\text{C}$ , utilizando un método diferencial. Las muestras fueron irradiadas en distintos reactores en el rango de temperatura  $78^\circ\text{K}$ - $300^\circ\text{C}$  y con dosis de hasta  $\approx 10^{21} \text{ ncm}^{-2}$ . Los resultados que obtuvieron (ver Tabla II) fueron los siguientes: 1) La dependencia con la temperatura de irradiación en el rango mencionado es pequeña. Se observa una disminución en la velocidad de crecimiento cuando la temperatura aumenta de  $78^\circ\text{K}$  a  $40^\circ\text{C}$ ; 2) Cuando

se disminuye la temperatura desde 280°C a 230°C o a 160°C, se observa un incremento inmediato en la velocidad de crecimiento seguido de una disminución hasta un valor bajo o cero que se mantiene durante un período de tres días; 3) El cambio de volumen es despreciable comparado con el cambio de forma.

Harbottle (2) también estudió la dependencia del crecimiento por irradiación con la temperatura y la dosis en el rango de 78°C-300°C, en Zry-2 recocido. Sus conclusiones fueron: 1) la deformación de crecimiento es proporcional a una potencia de la dosis, v.g.  $\epsilon \propto (\phi t)^n$  donde  $n=0.4$  a las temperaturas 78°C, 40°C, y 80°C, y  $n=0.7$  a 280°C; 2) la dependencia del crecimiento con la temperatura de irradiación en ese rango es pequeña; 3) el menor crecimiento a bajas dosis a 280°C es probablemente debido a una menor densidad de anillos y a la barrera para nuclear, pero el alto exponente ( $n=0.7$ ) se debe al rápido crecimiento de los anillos más grandes.

Los cambios dimensionales en policristales de Zry-2 y en Zr-2.5% Nb con distintos tratamientos previos a la irradiación (recocido, trabajado en frío, templado y envejecido) fueron investigados por Ibrahim y Winegar (18). Los especímenes fueron irradiados a 70°C con un flujo rápido de  $2.9 \times 10^{13} \text{ ncm}^{-2} \text{ seg}^{-1}$  (flujo integrado de  $4.8 \times 10^{20} \text{ ncm}^{-2}$ ) y a 260°C con un flujo de  $1.75 \text{ ncm}^{-2} \text{ seg}^{-1}$  (flujo integrado de  $5.0 \times 10^{20} \text{ ncm}^{-2}$ ). Sus resultados indican: 1) el crecimiento por irradiación en Zry-2 pre-recocido, en Zr-Nb pre-recocido y en Zr-Nb templado y envejecido previo a la irradiación es cercano al esperado de los cálculos basados en su textura (19) y del crecimiento calculado para monocristales de Zr; 2) tanto en Zry-2 como en Zr-Nb, la dependencia con la temperatura de irradiación entre 47°C y 260°C es pequeña; 3) los cambios dimensionales de ambas aleaciones trabajadas en frío antes

de irradiar no pueden ser ajustadas por los cálculos basados en la textura, ya que posiblemente ocurren cambios adicionales por relajación de tensiones y aparece una componente de crecimiento debida al trabajado en frío. A diferencia de Harbottle (2) la correlación enunciada en 1) fué hallada suponiendo una relación lineal entre el crecimiento y el flujo integrado. Esta relación fué también supuesta por Kelly y Buckley (19) quienes, al igual que en (18), no pudieron correlacionar el crecimiento medido en Zry-2 trabajado en frío con el esperado teóricamente. Estos autores observaron un crecimiento -tanto por irradiación neutrónica como con fragmentos de fisión- considerablemente menor en Zry-2 fuertemente texturado que en monocristales de Zry. Este efecto puede explicarse en términos de relajación de tensiones o de una componente de crecimiento debida al trabajado en frío opuesta a la de irradiación.

También Fidleris (20) realizó un estudio experimental sobre el efecto del trabajado en frío y de recocidos para relajar tensiones, en el crecimiento por irradiación en policristales de Zr, de Zry-2 y de Zr-2.5% Nb texturados. Los especímenes fueron irradiados en el rango 120-360°C con flujos rápidos entre  $7 \times 10^{12} \text{ ncm}^{-2} \text{ seg}^{-1}$  y  $2.5 \times 10^{13} \text{ ncm}^{-2} \text{ seg}^{-1}$ . En las primeras etapas de irradiación a 130-150°C se observó en policristales de Zry-2 de textura similar -la mayoría de los planos basales eran cercanamente normales al eje de medición- efectos opuestos según el tratamiento previo. Así, en el espécimen trabajado en frío se produjo una elongación mientras que en el material recocido 1 h a 800°C se midió una contracción (un efecto similar se observó también en Zr puro, esto es, al cabo de una irradiación de  $1.9 \times 10^{20} \text{ ncm}^{-2}$  a 360°C, el espécimen recocido se había contraído en un 0.01% mientras que el trabajado se había elongado en un 0.05%). Por otra parte, en ambos especímenes de Zry-2

se observó después de un flujo integrado de  $1 \times 10^{18} \text{ ncm}^{-2}$  una elongación que aumentaba muy lentamente con la dosis. El efecto del grado de relajación de tensiones se estudió en materiales recocidos durante distintos períodos de tiempo a  $400^\circ\text{C}$ . Por ejemplo, en especímenes de Zr-2.5% Nb irradiados a  $320^\circ\text{C}$  hasta  $2.3 \times 10^{20} \text{ ncm}^{-2}$  se observó que el crecimiento por irradiación disminuiría en un factor 5 al recocer a  $400^\circ\text{C}$  durante 72 h para relajar las tensiones. Tratamientos fuera del reactor a  $300^\circ\text{C}$  no produjeron cambios significativos en las dimensiones de Zry, Zry-2 y Zr-Nb trabajados en frío. Sin embargo, a  $400^\circ\text{C}$ , los cambios dimensionales fueron apreciables. El autor señala que irradiaciones a  $300^\circ\text{C}$  causan un cambio de longitud similar en magnitud y en dirección al que se obtiene con recocidos a  $400^\circ\text{C}$  fuera del reactor. Por lo tanto sugiere que los cambios en longitud del material irradiado sin recocidos posteriores al trabajado en frío es debido a la relajación de tensiones residuales durante la irradiación. Señala -consecuentemente con sus observaciones- que durante la irradiación de un material anisotrópico trabajado en frío existen por lo menos tres contribuciones al cambio de forma, v.g., textura, grado de relajación de tensiones y características del trabajado en frío. Las dos primeras pueden ser de uno u otro signo y parecen saturarse para flujos integrados de  $1 \times 10^{20} \text{ ncm}^{-2}$  o menos. En cuanto a la última es positiva en la dirección del trabajado y su velocidad no disminuye ni siquiera a dosis de  $2.7 \times 10^{21} \text{ ncm}^{-2}$  (21,22).

Buckley y Manthorpe (23) investigaron el crecimiento en aleaciones de Zr-Ti en todo el rango de composición (estos metales son completamente miscibles). Se usaron especímenes fuertemente texturados dopados con U enriquecido para dar en todos los casos un contenido de 0.2% de  $\text{U}^{235}$  y  $3 \times 10^{12}$  fisiones  $\text{cm}^{-3} \text{ seg}^{-1}$ , es-

timándose la temperatura de irradiación en  $120 \pm 20^\circ\text{C}$ . En Zr puro se observó una disminución de la deformación por fisión desde  $8 \times 10^{-28}$  a una dosis de  $1.5 \times 10^{17}$  fisiones  $\text{cm}^{-3}$  hasta  $4.7 \times 10^{-28}$  a  $9 \times 10^{18}$  fisiones  $\text{cm}^{-3}$ , y las deformaciones totales para dosis mayores que  $10^{18}$  fisiones  $\text{cm}^{-3}$  se representaron por una expresión de la forma  $\epsilon = 1.1 \times 10^{-18} (D)^{0.63}$ . En Ti y en las aleaciones de Zr-Ti se observaron tendencias similares. Hilditch (24) irradió muestras policristalinas de aleaciones de Zr en el rango de  $75^\circ$  a  $100^\circ\text{C}$ , confirmando por densitometría la ausencia de cambio de volumen. Sin embargo, este autor irradió un monocristal esférico de Zr con una dosis de  $7 \times 10^{20}$   $\text{ncm}^{-2}$  y observó una expansión según el eje a junto con una leve expansión según el eje c. Un incremento de longitud en la dirección del eje c también fué observado por Fidleris (25) en un monocristal de Zr puro.

Carpenter y Northwood (26) estudiaron la contribución de anillos de dislocaciones al crecimiento por irradiación del Zircaloy-2, a  $573^\circ\text{K}$ . Para determinar un límite superior a los valores de los cambios dimensionales supusieron que todos los anillos -cuya densidad y tamaño fueron determinados por microscopía electrónica- eran extrínsecos y tenían el mismo vector  $\underline{b}$  de Burgers. Por otra parte supusieron que el espécimen tenía una textura del 100%. Así, el máximo crecimiento  $\epsilon_G$  en la dirección del vector de Burgers está dado por

$$\epsilon_G = C_D$$

donde  $C_D$  es la fracción atómica total de defectos en la forma de anillos. Sus cálculos suponiendo un radio de  $35 \text{ \AA}$  dieron un crecimiento sensiblemente inferior al observado en Zircaloy-4 recocido y trabajado en frío, lo cual los llevó a concluir que la

contribución al crecimiento debida a anillos es secundaria frente a otras posibles contribuciones.

Pueden formularse dos críticas importantes a estas conclusiones. Por una parte, Carpenter y Northwood (26) al igual que Williams y Gilbert (4) consideran un anillo plano constituido por una monocapa. Esto es incorrecto ya que el anillo es perfecto y debe considerarse en un plano corrugado, lo cual es consistente con un volumen/anillo  $\pi r^2 b$ , donde  $r$  es el radio del anillo. Esto daría el mismo valor de  $\epsilon_G$ , un 25% del valor total observado, que el obtenido por esos autores si se toma  $\frac{C_D}{2}$ . Por otra parte como  $C_D$  depende de  $r^2$ , una variación en  $r$  obviamente afecta considerablemente el valor de  $\epsilon_G$ . Por ejemplo, si se toman los datos de la referencia (4) donde  $r \approx 50 \text{ \AA}$ , la contribución debida a anillos se eleva a  $\approx 50\%$ . No es irrazonable pensar que los datos de (26) pueden estar afectados de un error significativo ya que los radios reportados en la literatura muestran una dispersión considerable.

De la discusión precedente no puede inferirse que la contribución al crecimiento debido a anillos de dislocaciones no sea significativa, por el contrario, dicha contribución parecería estar soportada por las observaciones de Adamson (22) quien estudió la variación de  $\epsilon_G$  con el grado de deformación pre-irradiación y la recuperación del crecimiento por recocidos post-irradiación a  $783^\circ\text{K}$  en Zircaloy-4. En efecto, Adamson observó que la recuperación es tanto mayor cuanto menor es el grado de deformación. Así, el material recocido recupera su crecimiento en forma prácticamente total, mientras que especímenes deformados experimentan un crecimiento creciente con la deformación y un porcentaje de recuperación similar al de los recocidos. Este punto se discute en mayor detalle en el Capítulo V.

Fidleris (27) resumió algunas observaciones experimentales, Fig. 1. De esta figura se puede inferir que mientras que el crecimiento en materiales deformados antes de la irradiación sigue una ley uniforme hasta dosis elevadas ( $> 10^{21} \text{ ncm}^{-2}$ ), los materiales recocidos muestran para dosis menores una saturación aparente.

La Tabla II (28) resume los resultados experimentales de los diversos investigadores citados. La Tabla III (27) muestra datos extrapolados de la Tabla II, a la misma dosis de irradiación para Zr y Zry-2 recocido previo a la irradiación (presumiblemente sin tensiones residuales) usando una ley como la propuesta por Harbottle (2) para los valores extrapolados. Las observaciones más importantes pueden sintetizarse como sigue: 1) En policristales texturados y presumiblemente bien recocidos (sin tensiones residuales) el crecimiento por irradiación es poco dependiente de la temperatura en el rango 78°K-300°C; 2) existe en materiales recocidos una tendencia hacia la saturación del fenómeno para dosis elevadas ( $\geq 1 \times 10^{20} \text{ ncm}^{-2}$ ) (27); 3) En monocristales, el crecimiento es varias veces menor -5 a 10 veces, según los resultados de Buckley (15)-que en policristales, si bien las observaciones relativas a los primeros parecen contradictorias; 4) En policristales, los resultados existentes muestran que no hay cambio de volumen durante el crecimiento por irradiación (17,24); 5) El crecimiento en policristales (Zry-4) deformados antes de irradiar es mayor que en el material recocido, siendo tanto mayor cuanto mayor es la deformación (22); 6) En material pre-recocido (Zry-4) la recuperación del crecimiento por tratamientos térmicos es completa, mientras que lo mismo no ocurre en especímenes pre-deformados (22).

### III. ANISOTROPIAS EN Zr- $\alpha$ Y SUS ALEACIONES

#### III.1. General

El efecto de las anisotropías de las distintas propiedades físicas -consecuencia de la anisotropía cristalina característica de los materiales hexagonales- en los cambios dimensionales inducidos por irradiación marca la diferencia fundamental entre el crecimiento por irradiación y el hinchado. Los modelos que tratan de describir el primer fenómeno deben tomar en consideración, por lo tanto, una o varias de dichas anisotropías de acuerdo con las características del espécimen particular, v.g. si es mono o policristalino, su textura, su composición, su contenido de dislocaciones, su estado de tensiones internas (27), forma de grano y con las condiciones de irradiación (temperatura, flujo, dosis, radiación, energía incidente).

Se señalarán a continuación varias anisotropías y su conexión con mecanismos de crecimiento posibles. Los coeficientes lineales de expansión térmica,  $\alpha_c$  y  $\alpha_a$  (29), y de las constantes elásticas (30) han sido medidos en todo el rango de temperatura de existencia de la fase  $\alpha$ , en Zr puro. En el Apéndice II se muestra que la anisotropía del coeficiente lineal de expansión térmica es demasiado pequeña como para dar cuenta de la formación de anillos de dislocaciones con diferentes orientaciones de los vectores de Burgers, dependiendo de su naturaleza. Por otra parte, como se describió en el Capítulo II, se han observado anillos inducidos por irradiación que presentan -en la mayoría de los casos- un vector de Burgers del tipo  $\frac{a}{3} [11\bar{2}0]$ . Luego, si y mientras se expanden, este proceso irá acompañado por un cambio dimensional en cualquier dirección paralela al plano basal. Como se vió anteriormente (Cap. II.2) algunos autores (26) concluyeron que estos defectos tienen un peso despreciable en el crecimiento total ob-

servado, en especímenes policristalinos. Sin embargo, como ya se discutió, esta afirmación es cuestionable.

En cristales hexagonales, los vectores de Burgers más frecuentemente observados se hallan en el plano basal, de allí el bajo número de sistemas de deslizamiento (el  $[11\bar{2}0]$   $\{10\bar{1}0\}$  predomina a temperatura ambiente en Zr- $\alpha$  (31)). Luego un trepado neto de la red de dislocaciones produciría un efecto análogo al de anillos extrínsecos (prismáticos) en expansión recientemente descrito.

Las colisiones enfocadas (focusones) (32,33) pueden ser importantes a muy bajas temperaturas debido a la fuerte disminución de la movilidad de los defectos puntuales. En este trabajo no se prestará una atención particular al rango de temperatura en que esta anisotropía podría vincularse al fenómeno de crecimiento.

### III.2. Modelos de crecimiento por irradiación

En la década del '50, diversos investigadores trataron de explicar el crecimiento por irradiación en U- $\alpha$  en términos de la anisotropía cristalina y del daño por fragmentos de fisión (ver bibliografía en la ref. 15). Buckley (15) realizó una revisión suscita de datos experimentales y de modelos existentes, señalando las limitaciones de estos últimos y estudió experimentalmente el fenómeno en U- $\alpha$  irradiado con neutrones térmicos y en materiales no fisionables, entre ellos el Zr- $\alpha$ , irradiados con fragmentos de fisión. Apoyándose en sus resultados experimentales, propuso un modelo de crecimiento basado en un mecanismo de generación de anillos de dislocaciones por agregación de los defectos puntuales creados por las colisiones de desplazamiento.

Para explicar el fenómeno deben existir dos tipos de anillos, v.g., los que se forman como consecuencia del colapso de

un disco de vacancias en planos con una componente normal al eje de contracción, y los que se forman por el colapso de un disco de intersticiales en planos con una componente normal al eje de extensión (ver Fig. 2). Buckley señala dos mecanismos posibles para la formación de los discos cuyo ulterior colapso produce los anillos de uno u otro tipo. Por una parte, el de fluctuaciones, térmicas al azar en presencia de tensiones; un cálculo estimativo para el caso del U- $\alpha$  lo conduce a descartar este mecanismo ya que la energía de activación para nuclear un anillo es demasiado alta. El otro mecanismo posible es el de agregado de defectos puntuales creados ya sea térmicamente o por colisiones de desplazamiento. Este mecanismo está basado en las características geométricas del daño. Diversos análisis teóricos (34,35) relativos a la atenuación de partículas energéticas predicen que sus recorridos a través de una red metálica terminan en spikes de desplazamiento, con átomos eyectados hacia posiciones intersticiales en un casquete que rodea a una zona central conteniendo -esta última- una elevada concentración de vacancias (Fig. 3). Esta distribución espacial de defectos es justamente la requerida para condensar en forma atérmica discos separados de vacancias e intersticiales.

La condensación de ambos tipos de defectos debería ocurrir en el mismo plano cristalográfico para el cual  $E_1$  -la energía elástica del anillo resultante más la energía de la falla de apilamiento- fuera un mínimo. Pero este proceso no da lugar a ningún cambio de forma ya que la expansión debida a los anillos extrínsecos es contrarrestada por la contracción debida a los intrínsecos. Ahora bien, si el daño es acompañado localmente por variaciones apreciables de temperatura (spike térmico) se pueden desarrollar tensiones considerables debido a la anisotropía del coeficiente lineal de expansión térmica. Consecuentemente, habrá

orientaciones de equilibrio diferentes para anillos de uno u otro tipo ya que en este caso debe ser mínima la suma

$$E_2 = E_1 \pm \pi r^2 \delta b$$

donde el segundo término es debido a la presencia de una tensión direccional  $\delta b$ , los signos + y - se aplican respectivamente a vacancias e intersticiales, y  $r$  es el radio del anillo (considerado, por simplicidad, circular). En general, este mecanismo implica que la elongación debe producirse en la dirección de mínima expansión térmica mientras que la contracción es en la de máxima expansión.

El modelo de Buckley explica en forma satisfactoria -semi-cuantitativa- el crecimiento en U- $\alpha$ , cuyos coeficientes de expansión lineal son altamente anisotrópicos ( $\alpha_c = 30 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$  y  $\alpha_a \approx 0$ , donde  $c$  es la dirección  $[010]$  y  $a$  la  $[100]$ ). Los discos de vacancias colapsan preferencialmente en los planos  $\{110\}$ , mientras que los de intersticiales lo hacen en los  $\{010\}$ , como se ilustra en las Figs. 4 y 5.

El crecimiento en U- $\alpha$  es una diferencia del Zr- $\alpha$  - fuertemente dependiente de la temperatura ( $G(77^\circ\text{K}) \approx 10 G(350^\circ\text{K})$ ).

Buckley señala que a la más alta temperatura de irradiación el proceso de recombinación en los intervalos de tiempo entre spikes sucesivos que se superponen, es muy eficaz y sugiere que la dependencia de  $G$  con la temperatura debiera ser discontinua, presentando tres estadios:

- 1) El debido a la migración de intersticiales creados por irradiación hacia agregados de vacancias (esta recuperación ocurriría por debajo de  $77^\circ\text{K}$ ).

- 2) El debido a la difusión de vacancias hacia agregados de intersticiales, vigente a temperatura ambiente.
- 3) El debido a la aniquilación mutua de agregados de vacancias e intersticiales por auto-difusión (entre 400°C y 500°C).

Las magnitudes de los efectos 1) y 2) dependen naturalmente de las proporciones relativas de defectos puntuales condensados a defectos libres. Esta relación debe ser 11/10 para explicar la disminución de  $G$  en un factor 10 cuando la temperatura de irradiación aumenta de 77°K a 350°K. Otras diferencias importantes entre el crecimiento en Zr- $\alpha$  y en U- $\alpha$  es que, en este último, el parámetro  $G$  en mono y en policristales es idéntico y que no es afectado por deformación plástica previa a la irradiación. Por otra parte, la relevancia del spike térmico es confirmada por las experiencias de Thompson (35) quien observó que el U- $\alpha$  no exhibe un crecimiento significativo cuando se lo irradia a 80°C con protones de 3 MeV. En este caso, si bien la generación de defectos puntuales es sumamente alta, los spikes térmicos son mucho menos intensos que con los relativamente pesados fragmentos de fisión debido a la baja masa protónica y a la carga.

El modelo de crecimiento de Buckley presenta un cierto número de inconsistencias con las observaciones experimentales en el Zr- $\alpha$  y sus aleaciones. Las más importantes son:

- 1) En el rango de temperatura de irradiación 77°K-300°C el crecimiento presenta una variación muy pequeña, y de sentido opuesto al razonado en dicho modelo por ejemplo cuando se compara  $G$  a 78°K y a 40°C hasta flujos integrados de  $10^{20} \text{ ncm}^{-2}$  (2,17).
- 2) Para monocristales,  $G$  es aparentemente menor que para policristales. Vale la pena recordar que para los primeros los

datos experimentales de distintos autores (15,24 y 25) son diferentes. Mientras que en policristales todos los datos experimentales existentes son congruentes con un cambio de volumen prácticamente nulo (16,17,24), ésto podría no ser válido para monocristales (24,25). Este hecho indicaría un mecanismo de crecimiento en monocristales diferente del operativo en policristales, o sea la relevancia de la existencia de bordes de grano.

- 3) El crecimiento en policristales es afectado por el trabajado en frío y por el grado de relajación de tensiones previos a la irradiación (18,19,20,21,22). Esta observación señalaría que la red de dislocaciones (anisotrópica) juega un rol importante en el fenómeno.
- 4) Las observaciones relativas al plano de hábito y al vector de Burgers de los anillos inducidos por irradiación no son todas coincidentes. Si bien el plano de hábito no es importante, el vector de Burgers de los anillos intrínsecos debería tener una componente  $[0001]$  y el de los extrínsecos debería ser alguna dirección normal a la  $[0001]$ . Este no es el caso de los anillos analizados en las ref. (7) y (12).
- 5) Los tamaños y distribuciones de anillos son aproximadamente iguales cuando se irradia con neutrones o con iones pesados ( $Ni^{+2}$  o  $Ni^{+6}$ ) (8). Por otra parte el spike térmico con neutrones es poco intenso y la anisotropía del coeficiente de expansión térmica baja ( $\frac{\alpha_c}{\alpha_a} < 2$ ).

Las inconsistencias con el modelo de Buckley de los resultados referidos en 2) y en 4) condujeron a Kelly (28) a sugerir una modificación de dicho modelo. En particular, Kelly afirma que no existe ninguna evidencia experimental acerca del daño por radiación en circonio que apoye la hipótesis de formación de ani-

llos de vacancias en el plano basal y que el único vector de Burgers identificado sin ambigüedades es el  $\frac{a}{3} [11\bar{2}0]$ . La modificación sugerida-congruente con un cambio de volumen cero es que en cada grano de un espécimen policristalino las tensiones térmicas diferenciales producidas por irradiación se relajan debido a un flujo preferencial de intersticiales a segmentos del borde de grano normales al eje a y un flujo correspondiente de vacancias a aquellas partes de borde de grano que son normales al eje c. Esta sugerencia, en la medida en que no adopta modelo alguno de borde de grano, puede considerarse incompleta. Por otra parte, si se aceptan suposiciones corrientes relativas a las concentraciones en equilibrio con borde de grano bajo tensiones, el efecto de una condición de contorno de este tipo es despreciable en comparación con el efecto de la irradiación, para sobresaturaciones tan elevadas (36).

El efecto de la anisotropía de la distribución espacial de los vectores de Burgers de dislocaciones en Zr, fué analizado por Dollins (37). Como se mencionó más arriba, dichos vectores se hallan en el plano basal. Luego, el trepado de dislocaciones así como el crecimiento de anillos extrínsecos contenidos en planos prismáticos contribuirán a una expansión en una dirección paralela al plano basal. Las velocidades de trepado de dislocaciones y de crecimiento de anillos están determinadas por el número de intersticiales y de vacancias que llegan a ellos por unidad de tiempo. Para conocer este último, es necesario conocer el número de defectos que se generan y el número de defectos que son absorbidos por todos los sumideros, ambos por unidad de tiempo.

Dollins utiliza la teoría de velocidades de reacción para calcular las concentraciones de vacancias ( $c_v$ ) e intersticiales

(c<sub>i</sub>) haciendo las siguientes suposiciones físicas: i) Cuando ocurre una colisión entre un neutrón rápido y un átomo de la matriz, se produce una región localizada despoblada de átomos (depleted zone). Además se producen intersticiales y vacancias alrededor de dicha región, así como también nuclean heterogéneamente anillos de intersticiales durante las etapas iniciales de la irradiación. ii) Las dislocaciones de la red, los anillos de dislocaciones, las zonas despobladas, los sub-bordes y bordes de grano están uniformemente distribuidos a través del material y actúan como sumideros para los defectos puntuales creados por la irradiación. iii) Vacancias e intersticiales pueden además aniquilarse por recombinación. Las zonas despobladas, el trepado de dislocaciones, el crecimiento de anillos y la absorción de defectos en bordes y en sub-bordes de grano contribuyen pues al crecimiento.

Las suposiciones relativas a los términos que aparecen en las ecuaciones para  $\frac{dc_v}{dt}$  y  $\frac{dc_i}{dt}$  son:

- 1) El coeficiente de recombinación es  $\frac{5040 (D_i + D_v)}{a^2}$  ( $D_i$  y  $D_v$  son los coeficientes de difusión de intersticiales y de vacancias, respectivamente). En un artículo anterior (38) el autor había propuesto un factor 504 tomándolo del que resulta al considerar la formación de divacancias en un metal bcc, por paseo al azar. Este criterio es obviamente incorrecto. En el Apéndice III se desarrolla el coeficiente que corresponde -bajo la misma aproximación de paseo al azar- en materiales hcp para la recombinación de un intersticial y una vacancia a temperaturas en que  $D_v \ll D_i$ . La modificación ulterior en un factor 10 es más arbitraria aún. Como se analizará en detalle en el Capítulo IV, este valor exageradamente elevado del coeficiente de recombinación excluye la posibilidad de

disminución del crecimiento con el aumento de la densidad de dislocaciones de la red,  $\rho_L$ , para altos valores (factibles) de  $\rho_L$ . Así, la elección de un coeficiente de recombinación más realista conduciría en este modelo a una predicción inconsistente con los datos experimentales, v.g. el crecimiento predicho disminuiría con la deformación.

- 2) Las N zonas despobladas (por unidad de volumen) tienen un tamaño constante y están constituidas por huecos (1/4) o por anillos de vacancias (3/4) con un vector de Burgers [0001]. El autor justifica la existencia de esos anillos porque "se observan anillos basales intrínsecos en otros materiales" y porque si sólo se consideran huecos, el cambio de volumen (hinchado) sería considerable. El primer justificativo es inaceptable en el marco de la evidencia experimental existente en las aleaciones de base Zr. El segundo es arbitrario.

Mientras que el radio de las zonas despobladas -ya sean huecos o anillos- se supone constante mientras que su número varía con el tiempo, la suposición opuesta se adopta para los anillos extrínsecos. Se arriba así a un sistema de cuatro ecuaciones con cuatro incógnitas, v.g.  $c_i$ ,  $c_v$ , N y  $r_L$ . Para resolverlo (numéricamente) se hace la suposición adicional de que la difusión de defectos puntuales es suficientemente rápida como para que los defectos estén siempre en equilibrio con la estructura de defectos. Esto es, las características esenciales del fenómeno de crecimiento se obtienen con la condición  $\frac{dc_i}{dt} = \frac{dc_v}{dt} = 0$ . Si bien esta suposición es tanto más válida cuanto mayor es la temperatura de irradiación, a bajas temperaturas resulta incorrecta. Ahora bien, si se exceptúan los términos de emisión y la generación de anillos de vacancias en la cascada, la condición estacionaria implica igual flujo de vacancias e intersticiales a la totalidad de los sumideros. Dado que se obtiene que todos los su-

mideros a las más bajas temperaturas consideradas ( $\approx 300^\circ\text{C}$ ) absorben más intersticiales que vacancias, los anillos de vacancias (de un radio  $\approx 2a$ ) en las zonas despobladas resultan increíblemente estables a esas temperaturas.

El autor calcula la deformación en una dirección paralela al plano basal,  $\epsilon_p$ , omitiendo la contribución debida a los huecos esféricos. Ello conduce a una subestimación de  $\epsilon_p$  y a una sobre-estimación de  $\epsilon_n$  en una dirección normal al plano basal. Al analizar específicamente el crecimiento en material deformado en frío previo a la irradiación, se supone que el borde de subgrano opera como una fuente/sumidero de defectos puntuales de manera idéntica a la que lo hace un borde de alto ángulo en material recocido. Esta suposición debería ser mejor fundamentada, especialmente teniendo en cuenta que los modelos actuales de subgrano predicen un comportamiento bien diferente al de los bordes de grano (39).

El modelo de Dollins predice una dependencia muy pequeña con la temperatura a bajas temperaturas ( $\leq 340^\circ\text{C}$ ) o a flujos neutrónicos elevados. El crecimiento es debido fundamentalmente a dislocaciones en material trabajado en frío y a anillos extrínsecos en especímenes recocidos. Por otra parte, este modelo no predice para material recocido un comportamiento para altas dosis tal como el que se observa experimentalmente, esto es, una saturación aparente (ver Fig. 1).

#### IV. DESARROLLO DE MODELOS PARA EXPLICAR EL CRECIMIENTO EN ALEACIONES DE BASE Zr BAJO IRRADIACION NEUTRONICA

Se desarrollará en primer término el modelo más simple que se puede formular para explicar cuantitativamente el crecimiento

por irradiación en Zr. Esto es, se considerará sólo el efecto de la anisotropía de la red de dislocaciones. Luego, se extenderá este modelo a fin de incluir la presencia de anillos de dislocaciones extrínsecos prismáticos.

#### IV.1. Anisotropía de la red de dislocaciones

La estructura hexagonal compacta posee sólo tres direcciones compactas ubicadas en el plano basal. Estas direcciones coinciden con las de los vectores de Burgers (del tipo  $\frac{a}{3} [1\bar{1}20]$ ) más frecuentes en esta estructura. La anisotropía en la distribución espacial de las dislocaciones determina el bajo número de sistemas de deslizamiento y la necesidad de deformar por macado de los policristales. Si una dislocación de borde con este vector de Burgers absorbe un intersticial/vacancia se produce un incremento/disminución de las dimensiones del grano en una dirección normal al eje cristalográfico c. Por lo tanto, en un medio con una concentración de defectos puntuales en exceso frente a la de equilibrio termodinámico, si por alguna causa las dislocaciones absorben más defectos de un tipo que del otro, se producirán variaciones dimensionales. Luego, para que se produzca este trepado preferencial una clase de defectos (intersticiales) debe ser atraído preferencialmente hacia las dislocaciones. El concepto de atracción preferencial es el mismo que el que se utiliza para explicar el hinchado por irradiación en materiales estructurales (ver, por ejemplo, la ref. (39)).

Se analizará a continuación la atracción preferencial de los intersticiales a dislocaciones de la red en presencia de un sumidero neutro (borde de grano), utilizando la teoría de velocidades de reacción (39,40). La existencia de una energía de interacción entre un defecto y un sumidero se parametriza a través

de los coeficientes de tendencia (bias),  $z_{i,v}$  en las ecuaciones correspondientes. Se asumirá la existencia de dos sumideros uniformemente distribuidos en el medio, a saber, dislocaciones rectilíneas con vector de Burgers  $\frac{a}{3} [11\bar{2}0]$  y los bordes de grano. Ignorando la concentración de intersticiales correspondiente al equilibrio termodinámico -que es despreciable- las ecuaciones que describen las concentraciones de vacancias e intersticiales, son

$$\frac{dc_v}{dt} = k - k_v^2 D_v (c_v - c_0) - \alpha c_i c_v \quad (1)$$

$$\frac{dc_i}{dt} = k - k_i^2 D_i c_i - \alpha c_i c_v \quad (2)$$

donde  $k$  es el número de pares de defectos que se producen por unidad de tiempo (unidades [dpa/seg]),  $D_v$  y  $D_i$  son los coeficientes de difusión de vacancias e intersticiales, respectivamente,  $\alpha$  ( $\approx 21 D_i/a^2$ , ver Apéndice III) es la constante de recombinación mutua, y  $k_v^2$ ,  $k_i^2$  representan las probabilidades de captura de los dos tipos de defectos por sumideros fijos.  $c_0$  es la concentración de equilibrio de las vacancias. Según las referencias (39), (41), (ver apéndice IV) y (42) las potencias de los sumideros son, en orden cero

$$k_i^2 = z_i \rho + 6 \sqrt{z_i \rho} / d_g \quad (3)$$

$$k_v^2 = z_v \rho + 6 \sqrt{z_v \rho} / d_g \quad (4)$$

donde  $\rho$  es la densidad de líneas de dislocaciones ( $[\text{cm}^{-2}]$ ), y  $d_g$  es un diámetro promedio de grano.

La forma de grano y la densidad de dislocaciones dependen de los tratamientos previos a la irradiación. Así, para un espécimen recocido se supone un grano isotrópico con  $d_{gp} = d_{gn} = d_g^0$  (ver Fig. 6), mientras que para uno trabajado en frío,

$$d_{gp} = d_g^0 (1 + \lambda) \quad (5)$$

y

$$d_{gn} = d_g^0 (1 + \lambda)^{-\frac{1}{2}} \quad (6)$$

donde  $\lambda$  es la deformación sufrida por el grano suponiendo un cambio de volumen nulo. En la Fig. 6 la forma del grano ha sido idealizado para el caso de un espécimen en el que se ha desarrollado una textura tal que el eje cristalográfico  $c$  es perpendicular a la dirección de trabajado. Para los cálculos realizados en la sección siguiente, se han utilizado diversos porcentajes de textura de polo basal (17). Luego, el diámetro eficaz de grano  $d_g$  de las ecuaciones (3) y (4) es (ver Fig. 6 y Apéndice IV)

$$d_g^{-1} = \frac{2}{3} d_{gn}^{-1} + \frac{1}{3} d_{gp}^{-1}$$

La velocidad de deformación en una dada dirección depende de la absorción neta de intersticiales en los sumideros. La velocidad de deformación en la dirección  $a$  es pues

$$\dot{\epsilon}_a = \frac{\rho}{2} (z_i D_i c_i - z_v D_v (c_v - c_0)) + \frac{2\sqrt{\rho}}{d_{gn}} (\sqrt{z_i} D_i c_i - \sqrt{z_v} D_v (c_v - c_0)) \quad (7)$$

En la dirección  $b$ ,

$$\dot{c}_b = \frac{\xi}{2} (z_i D_i c_i - z_v D_v (c_v - c_o)) + \frac{2\sqrt{\xi}}{d_{gp}} (\sqrt{z_i} D_i c_i - \sqrt{z_v} D_v (c_v - c_o)) \quad (8)$$

y en la dirección c,

$$\dot{c}_c = \frac{2\sqrt{\xi}}{d_{gn}} (\sqrt{z_i} D_i c_i - \sqrt{z_v} D_v (c_v - c_o)) \quad (9)$$

Si la temperatura de irradiación es suficientemente alta como para que se alcance rápidamente el estado estacionario, entonces  $\frac{dc_{i,v}}{dt} = 0$  y obviamente la suma de las ecuaciones (7), (8) y (9) es cero. Las deformaciones se relacionan entonces con un crecimiento puro y no hay cambio de volumen (hinchado).

Las ecuaciones (1) y (2) fueron resueltas numéricamente para diversos valores de  $\xi$ ,  $d_{gp}$ ,  $d_{gn}$  y diferentes elecciones de  $z_{i,v}$ , a distintas temperaturas. El cálculo numérico fué hecho por computadora. Los tiempos a los cuales se alcanza el estado estacionario se muestran en la Tabla IV, para varios casos.

#### IV.1.1. Resultados numéricos y comparación con datos experimentales

En la Tabla I puede verse que la suposición de estado estacionario es válida a las tres temperaturas más altas que se han usado. Los resultados numéricos que se presentan a continuación corresponden a ese rango de temperaturas. Las soluciones de las ecuaciones (1) y (2) son (44)

$$c_i = \frac{D_v k_v^2}{2\alpha} \left\{ - (1 + \xi) + \left[ (1 + \xi)^2 + \eta \right]^{\frac{1}{2}} \right\} \quad (10)$$

$$y \quad c_v = \frac{D_i k_i^2}{2\alpha} \left\{ - (1 - \xi) + \left[ (1 + \xi)^2 + \eta \right]^{\frac{1}{2}} \right\} \quad (11)$$

donde

$$\eta = 4 \alpha k / (D_i D_v k_i^2 k_v^2) \quad (12)$$

y

$$\xi = \alpha c_o / k_i^2 D_i \quad (13)$$

Dentro del rango de temperatura considerado  $D_i \gg D_v$ . Luego, la recombinación directa de intersticiales y vacancias es un proceso que está controlado por la difusividad intersticial. Como se muestra en el Apéndice III,  $\alpha / D_i = a^2 / 2l$  suponiendo una aproximación de camino al azar. Como consecuencia de ello, las deformaciones de crecimiento resultan independientes del valor particular de  $D_i$ , como puede verse en las ecuaciones (7), (8) y (9) substituyendo  $c_i$  y  $c_v$  por las expresiones (10) y (11).

Los coeficientes de tendencia pueden elegirse como logarítmicos (40,41), en cuyo caso

$$z_v = -2 \pi / \ln \left[ (\pi \rho)^{\frac{1}{2}} b \right] \quad (14)$$

y

$$z_i = -2 \pi / \ln \left[ (\pi \rho)^{\frac{1}{2}} (b + \Delta R) \right] \quad (15)$$

con

$$\Delta R = 0.07 b^4 \mu \epsilon / kT$$

donde  $\mu$  es el módulo de corte apropiado y  $\epsilon = 0.2$  el parámetro de deformación. Alternativamente,  $z_v$  puede tomarse igual a 1 y  $z_i$  algún porcentaje más alto que  $z_v$  (39). Ambos tipos de coeficientes han sido utilizados en los cálculos efectuados; las implicaciones de cada elección se discuten en la última sección.

Se analizará a continuación la variación de  $\dot{\epsilon}_b$  en función de los diversos parámetros del modelo. Varios ejemplos de la dependencia de  $\dot{\epsilon}$  con  $\phi$  y con  $\rho$  se muestran en las Figs. 7 y 8. En estas figuras,  $\dot{\epsilon}_b$  ha sido graficado a partir de los valores calculados según la ecuación (8) substituyendo las soluciones estacionarias completas (10) y (11) para  $c_i$  y  $c_v$ .

Considerando  $\phi = 10^{13} \text{ ncm}^{-2} \text{ seg}^{-1}$  como un límite inferior al flujo neutrónico usado en la mayoría de los reactores de potencia, el cociente  $\xi/\eta \leq 5 \times 10^{-3}$  hasta  $300^\circ\text{C}$  y una densidad de dislocaciones  $\rho = 10^{12} \text{ cm/cm}^3$ . Por otra parte, para  $T \leq 300^\circ\text{C}$  y  $\rho \geq 10^8 \text{ cm/cm}^3$ ,  $\xi < 6 \times 10^{-3}$ . Luego, las ecuaciones (10) y (11) pueden reducirse a

$$c_i = \frac{D_v k_v^2}{2\alpha} \left\{ \sqrt{1 + \eta} - 1 \right\} \quad (16)$$

y

$$c_v = \frac{D_i k_i^2}{2\alpha} \left\{ \sqrt{1 + \eta} - 1 \right\} \quad (17)$$

Con el propósito de entender mejor la incidencia de los diversos sumideros en el crecimiento, se analizarán a continuación dos casos límites, a saber, baja y alta potencia de sumideros. Así, para  $T \leq 300^\circ\text{C}$ ,  $k_i^2 \leq 10^9 \text{ cm}^{-2}$  y  $\phi \geq 10^{13} \text{ ncm}^{-2} \text{ seg}^{-1}$ ,  $\eta^{\frac{1}{2}} \gg 1$  y las concentraciones de defectos pueden aproximarse por

$$c_i \approx \frac{a D_v^{\frac{1}{2}}}{\sqrt{2T} D_i} \frac{k_v}{k_i} K^{\frac{1}{2}} \quad (18)$$

y

$$c_v - c_0 = \frac{a}{\sqrt{2T}} \frac{1}{D_v^{\frac{1}{2}}} \frac{k_i}{k_v} K^{\frac{1}{2}} \quad (19)$$

En este límite, la ecuación (8) da

$$\dot{\epsilon}_b \approx a \left(\frac{D_v}{2l}\right)^{\frac{1}{2}} \frac{Z}{k_i k_v} \rho^{3/2} K^{\frac{1}{2}} \quad (20)$$

donde

$$Z = \sqrt{z_i z_v} (\sqrt{z_i} - \sqrt{z_v}) \left(\frac{2}{d_{gn}} - \frac{1}{d_{gp}}\right)$$

Substituyendo  $K = \phi / (8 \times 10^{20})$  (Apéndice I) en la ecuación (20) permite obtener

$$\dot{\epsilon}_b \propto \phi^{\frac{1}{2}}$$

El otro límite  $\eta \ll 1$  da

$$c_i \approx \frac{K}{D_i k_i^2} \quad (21)$$

y

$$c_v - c_o \approx \frac{K}{D_v k_v^2} \quad (22)$$

para la velocidad de deformación

$$\dot{\epsilon}_b \approx \frac{Z \rho^{3/2}}{k_i^2 k_v^2} \cdot K \approx \frac{Z}{z_i z_v} \rho^{-\frac{1}{2}} K \propto \phi \quad (23)$$

A  $T \approx 300^\circ\text{C}$ , este límite se obtiene para  $\rho^2 \gg 10^7 \text{ seg} \times \rho$ . De la ec. (20) puede verse también que en el límite  $\eta^{\frac{1}{2}} \gg 1$  la velocidad de deformación aumenta con el contenido de dislocaciones, mientras que en el otro límite,  $\eta \ll 1$  ocurre lo opuesto. Esta diferente variación de  $\dot{\epsilon}$  en función de  $\phi$  se ejemplifica

en las Figs. 8a) y b), para varios valores de  $\lambda$  -porcentaje de deformación de grano.

En la Fig. 9 se han reproducido los resultados de Adamson tal como se mencionan en la ref. (27) y aquellos de Kreyns (43). Ajustando los datos correspondientes a cada valor de trabajado en frío por líneas rectas, se pueden deducir los valores de  $\dot{\epsilon}$  para cada caso si se conoce el flujo neutrónico  $\phi$ . Diversos valores experimentales de  $\dot{\epsilon}$  se dan en la Tabla V, para  $\phi = 1 \times 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>.seg<sup>-1</sup>. En la misma tabla puede verse que las velocidades de deformación calculadas para valores de  $f$  y  $d_g^0$  razonables -suponiendo coeficientes de tendencia logarítmicas y dos coeficientes de textura- están en muy buen acuerdo con los valores experimentales. En la Tabla VI se dan valores de  $\dot{\epsilon}$  asumiendo coeficientes de tendencia constante (independientes de  $\xi$ ), a los efectos de su comparación con los datos experimentales. Nuevamente, se obtiene un buen acuerdo con los resultados experimentales, adoptando en este caso el valor  $z_i = 1.20$ .

#### IV.2. Anisotropía de los anillos de dislocación inducidos por irradiación

Como se ha descrito en el Capítulo II, los anillos de dislocación han sido observados por numerosos autores, si bien no existe un acuerdo completo en lo que a su naturaleza y plano de hábito se refiere. Es por lo tanto pertinente investigar la naturaleza y el peso relativo de su influencia en el crecimiento por irradiación dado que ellos operan como fuente/sumidero de defectos puntuales. En el Apéndice II se ha estimado la factibilidad de nucleación de anillos mediante la operación de dos mecanismos, uno térmico y otro atérmico. Se concluyó que el primero no puede operar con las sobresaturaciones de defectos existen-

tes con un flujo relativamente elevado ( $\dot{\phi} \approx 10^{14} \text{ ncm}^{-2} \text{ seg}^{-1}$ ), mientras que el segundo es posible tanto para anillos extrínsecos como intrínsecos teniendo en cuenta la geometría peculiar de la cascada de desplazamiento. Los cálculos realizados en el Apéndice II muestran que existe la condición necesaria para el ulterior crecimiento de anillos extrínsecos tanto con vector de Burgers basal como no basal, condición que se basa en la sobresaturación de intersticiales en el medio sin tener en cuenta la existencia de vacancias. En cuanto a los anillos intrínsecos, el exceso necesario es levemente superior al valor que surge de los cálculos. Si se acepta que de todos modos la condición necesaria es cercanamente satisfecha, debe -al igual que para los extrínsecos- calcularse el crecimiento en base a algún modelo cinético. Debe destacarse -nuevamente en base al Apéndice II- que la separación de anillos en distintos planos cristalográficos conforme a su naturaleza extrínseca o intrínseca debido a anisotropías de origen térmico según un modelo tipo Buckley, no es posible.

Si bien no todos los autores coinciden en cuanto al plano de hábito vector de Burgers y naturaleza de los anillos inducidos por irradiación, todos informan que la mayoría (o todos) tienen un vector de Burgers del tipo  $\frac{a}{3} [11\bar{2}0]$  y un plano de hábito cercano a uno prismático. Las divergencias son aún más pronunciadas en cuanto a la naturaleza. En lo que sigue se hará la suposición simplificatoria de que todos los anillos son prismáticos y de borde puro. También se supondrá que son extrínsecos y se analizarán dos hipótesis, a saber, que son o bien generados durante las etapas primeras de irradiación o bien que se generan según una cierta ley de nucleación. En el primer caso, se considera como condición inicial un número de anillos por unidad de volumen dado, que además no varía con el tiempo, si bien su radio medio,  $r_L$ , se incrementa como consecuencia de la atracción

preferencial de intersticiales. En el segundo caso tanto  $N_L$  como  $r_L$  varían con el tiempo, el primero según una ley dada.

En primer término se permitieron condiciones no-estacionarias tales que las siguientes ecuaciones dependientes del tiempo fueron resueltas con la ayuda de un programa de computación (ver Apéndice V)

$$\frac{dc_i}{dt} = K - \alpha c_i c_v - D_i k_{i,i}^2 c_i \quad (24)$$

$$\begin{aligned} \frac{dc_v}{dt} = & K - \alpha c_i c_v - D_v k_{v,v}^2 (c_v - c_o) - \\ & - D_v z_v \rho_L (1 - f_{el}) \end{aligned} \quad (25)$$

$$\frac{dr_L}{dt} = \frac{1}{b} z_i D_i c_i - z_v D_v (c_v - c_o) \quad (26)$$

donde ahora

$$k_{i,v}^2 = z_{i,v} (\rho + \rho_L) + \frac{6 \sqrt{z_{i,v} (\rho + \rho_L)}}{d_g} \quad (27)$$

y (44)

$$f_{el} = \exp \left( - \frac{b^4 \nu}{4\pi(1-\gamma)} \ln \frac{r_L + b}{b} / (b+r_L)kT \right)$$

$r_L$  es el radio medio de loop y

$$\rho_L = 2\pi r_L N_L$$

es la densidad lineal de anillos,  $N_L$  siendo la concentración de anillos (número de anillos/unidad de volumen). La ley de nucleación adoptada cuando se investigó la segunda hipótesis fué

$$N_L = 3 \times 10^{16} \text{ Th } \log (51 Kt + 1) \quad (28)$$

Esta ley ajusta los datos experimentales de Williams y Gilbert (4). En este caso, las ecuaciones (24) y (26) se modificaron de la siguiente forma

$$\frac{dc_i}{dt} = K - \alpha c_i c_v - D_i k_i^2 c_i - \epsilon K \quad (24')$$

y

$$\begin{aligned} \frac{dr_L}{dt} = & \frac{1}{b} \left[ z_i D_i c_i - z_v D_v (c_v - c_o f_{el}) \right] + \\ & + \frac{\epsilon k}{\rho_L} \left( 1 - \frac{r_L^2}{r_{Li}^2} \right) \end{aligned} \quad (26')$$

donde  $r_{Li}$  es el radio de nucleación del anillo y  $\epsilon k$  es el número de intersticiales por átomo que condensan en anillos, por unidad de tiempo,

$$k = \frac{dN}{dt} \pi r_{Li}^2 b$$

La ec. (28) no es la única -ni la mejor- expresión que ajusta los datos experimentales; se especifica tan sólo como un ejemplo. El resultado relevante es que el crecimiento que se obtiene adoptando una ley de nucleación que preve una saturación de  $N_L$  es -para dosis cercanas al valor en que se alcanza el máximo de  $N_L$ - el mismo que si se supone  $N_L$  constante. Esto se ilustra en la Fig. 10. Otro resultado interesante es que si se toman coeficientes de tendencia fijos para las dislocaciones de la red, pero para los anillos  $z_i$  varfa en forma continua entre  $z_v=1$  y el valor de  $z_i$  para las dislocaciones rectilíneas, las deformacio-

nes de crecimiento no difieren sustancialmente de las derivadas cuando  $z_i$  se toma constante para anillos también. En el primer caso, la variación de  $z_i$  depende del tamaño del anillo y alcanza su valor máximo por ejemplo cuando  $r_L \approx 10 b$ .

La hipótesis de que los defectos puntuales están siempre en equilibrio con la estructura de defectos, ha sido investigada a 300°C. Esto es, se ha supuesto  $\frac{dc_{i,v}}{dt} = 0$  permitiéndose al mismo tiempo variar el radio de los anillos de dislocación con la dosis de irradiación. La ec. (26) se resolvió mediante un programa de computación escribiendo para  $c_{i,v}$  las soluciones (10) y (11) con  $\eta$  dado por (12) y

$$\xi = \frac{\alpha c_0}{D_i k_i^2} \left[ 1 + \frac{z_v \rho_L}{k_v^2} (f_{el} - 1) \right] \quad (13')$$

Los valores de  $k_{i,v}^2$  son los dados por la ec. (27). Una comparación entre el crecimiento así obtenido y las soluciones no estacionarias (derivadas de las ec. 24-26), Tabla VII, muestra que esta hipótesis es correcta.

Una simplificación muy importante puede lograrse inspeccionando las potencias de los sumideros  $k_{i,v}^2$  tal como están definidos en la ec. (27). En efecto, los valores que corresponden a una alta potencia se alcanzan con radios relativamente pequeños. Por ejemplo, si  $N_L = 3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ , entonces  $\rho_L \approx 10^{11} \text{ cm/cm}^3$  para  $r_L \approx 50 \text{ \AA}$ , y  $\eta < 0.01$  cuando  $\phi \approx 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{seg}$ . Según el análisis hecho en la sección precedente, la recombinación directa de defectos puntuales puede despreciarse en este caso. Para verificar esta conclusión se realizaron cálculos numéricos -para condiciones estacionarias- variando el coeficiente de recombinación  $\alpha$  entre 12 y 504, con los que se obtuvieron resultados acordes con la suposición de alta potencia de sumidero.

Consecuentemente, si se desprecia el término de recombinación la ec. (26) puede integrarse analíticamente como sigue. Sustituyendo  $c_i$  y  $c_v$  por las soluciones (21) y (22) en (26) se obtiene:

$$\frac{dr_L}{dt} = \frac{1}{b} \left\{ \frac{z_i K}{k_i^2} - \frac{z_v K}{k_v^2} + z_v D_v c_{ofel} \right\} = \frac{K}{b(\rho + \rho_L)}$$

$$\left\{ \left(1 + \frac{6}{d_g \sqrt{z_i} (\rho + \rho_L)}\right)^{-1} - \left(1 + \frac{6}{d_g \sqrt{z_v} (\rho + \rho_L)}\right)^{-1} + \frac{D_v z_v (\rho + \rho_L) c_{ofel}}{K} \right\} \approx \frac{6 K}{b(\rho + \rho_L)^{3/2} d_g}$$

$$\left( \frac{1}{\sqrt{z_v}} - \frac{1}{\sqrt{z_i}} \right) \quad (29)$$

donde se ha despreciado la contribución debida a emisión de vacancias y las fracciones  $(1+x)^{-1}$  se han desarrollado hasta el primer orden en  $x$ . La integral de la ec. (29) se obtiene ahora fácilmente substituyendo  $\rho_L$  por  $2 \pi r_L N_L$ ,

$$r_L = \frac{1}{2 \pi N_L} \left\{ [5 \pi N A t + \rho^{5/2}]^{2/5} - \rho \right\} \quad (30)$$

donde

$$A = \frac{6 K}{b d_g} \left( \frac{1}{\sqrt{z_v}} - \frac{1}{\sqrt{z_i}} \right)$$

La contribución al crecimiento debida a anillos es enton-

ces

$$\epsilon_L = \frac{\pi}{2} b N_L r_L^2 = \frac{b}{8\pi N_L} \left\{ [5\pi N_L A t + \rho^{5.2}]^{2/5} - \rho^2 \right\} \quad (31)$$

La deformación de crecimiento en la dirección  $b$  (Fig. 6) puede obtenerse en términos de  $\epsilon_L$  como (ver Apéndice VI),

$$\begin{aligned} \epsilon_b &= \left(-\frac{2}{3} \frac{d_g}{d_{gp}} + 1\right) \left(\frac{2\rho}{\rho_L} + 1\right) \epsilon_L \\ &= \frac{\pi}{2} b N_L r_L^2 \left(-\frac{2}{3} \frac{d_g}{d_{gp}} + 1\right) \left(\frac{2\rho}{\rho_L} + 1\right) \end{aligned} \quad (32)$$

Para especímenes recocidos,  $\rho \approx 10^8 - 10^9$  cm/cm<sup>3</sup> y por lo tanto los términos que dependen de  $\rho$  en las ec. (30), (31) y (32) pueden despreciarse, dentro del rango de validez de la presente aproximación. Así,

$$r_L \approx \frac{1}{2\pi N_L} (5\pi N_L A)^{0.4} t^{0.4} \quad (33)$$

y

$$\epsilon_b \approx \frac{b}{24\pi N_L} (5\pi N_L A)^{0.8} t^{0.8} \quad (34)$$

Las expresiones analíticas derivadas para  $r_L$  y  $\epsilon_b$  se obtuvieron suponiendo coeficientes de tendencia fijos. Sin embargo, esas son aproximaciones bastante buenas aún en el caso en que  $z_i$  y  $z_v$  varíen logarítmicamente con  $\rho_L$  (y por lo tanto con  $r_L$ ). En el último caso, valores apropiados de  $z_{i,v}$  pueden tomarse como algún valor promedio en el intervalo de irradiación considerado. Por ejemplo, se obtiene un acuerdo muy bueno con los valores numéricos para una dosis dada si se utilizan

los valores de  $z_{i,v}$  derivados usando el valor de  $\rho_L$  correspondiente a una dosis 10 veces menor.

En la Tabla VIII se muestran las deformaciones calculadas utilizando la aproximación analítica para algunos valores de los parámetros del modelo, así como también las deformaciones correspondientes obtenidas usando la aproximación numérica. El acuerdo es excelente, como puede apreciarse.

Según fué discutido por varios autores (4) la densidad de anillos que se observa por microscopía electrónica de transmisión podría ser una medida no verdadera de la población real de anillos que se generan en un material masivo debido a la irradiación. El efecto de la variación de  $N_L$  en los valores de  $r_L$  y del crecimiento fué investigado mostrándose algunos resultados ilustrativos en la Fig. 11. Se ve que  $\epsilon$  disminuye cuando  $N_L$  aumenta, de acuerdo con el límite de alta potencia de sumidero (ec. 34). El radio medio del anillo decrece más fuertemente aún cuando  $N_L$  aumenta, mostrando una tendencia a la saturación para altas dosis.

En la Fig. 12 se han representado resultados derivados de este modelo usando parámetros apropiados para ajustar algunos de los datos experimentales de Adamson. En la Fig. 13 se ha reproducido otro conjunto de datos del mismo autor junto con cálculos teóricos realizados usando el modelo extendido que incluye anillos. En este caso, este último modelo da una dependencia de la deformación con la dosis que concuerda mejor con la ley experimental que el modelo de dislocaciones, si bien los valores de  $E$  calculados parecen algo bajos en comparación con los medidos.

#### IV.3. Discusión y Conclusiones

Se ha desarrollado un modelo simple considerando que el cre-

cimiento por irradiación es una consecuencia de la anisotropía de la red de dislocaciones y de la textura, y tomando en cuenta la deformación del grano en el caso de materiales trabajados en frío.

Se han derivado expresiones simplificadas de las velocidades de crecimiento en los extremos de alta y baja potencia de sumidero; esas expresiones dieron dependencias opuestas con el contenido de dislocaciones. Estos dos límites se refieren al valor de  $\eta$  (ec. 12) por lo que alta y baja potencia no deben ser entendidas en términos absolutos sino que más bien relativas al flujo neutrónico. El aumento de la velocidad de crecimiento con la densidad de dislocaciones para baja potencia de sumidero puede entenderse como se explica a continuación. Cuando la densidad de dislocaciones se incrementa, la recombinación directa disminuye, permitiendo de ese modo que mayor número de defectos puntuales fluyan preferencialmente a los sumideros, aumentándose así la velocidad de crecimiento. En el otro límite, la recombinación directa es despreciable, como puede verse en las ec. (21) y (22). Cuando se incrementa la densidad de dislocaciones, el camino libre medio de tanto intersticiales como vacancias disminuye de modo tal que las dislocaciones actúan como sitios efectivos de recombinación. Luego  $\bar{c}$  decrece con  $\rho$ , tal como lo expresa la ec. (23).

En el límite de baja potencia de sumideros, la velocidad de deformación depende de la temperatura a través del coeficiente de difusión de vacancias, mientras que en el otro límite es independiente de la temperatura. Este comportamiento acepta una interpretación en términos similares a los precedentes. Esto es, para alta potencia de sumideros el camino libre medio de los defectos no es controlado por su difusividad sino que por la distancia entre los sumideros más potentes.

La dependencia con el flujo neutrónico es lineal en el extremo alto, cuando la recombinación directa se hace despreciable. Cuando esta última condición no se satisface, esto es cuando el flujo neutrónico se incrementa dando así un aumento en  $\eta$ , la velocidad de crecimiento tiende a la ley  $\phi^{\frac{1}{2}}$ . Dentro del rango de flujos normalmente utilizados en los reactores de potencia actuales y para las densidades de dislocaciones más altas halladas en circonio trabajado en frío, el apartamiento de la ley lineal es muy leve, como puede verse en la Fig. 13. Por otra parte, para material recocido y en el mismo rango de valores de flujo, debe obedecerse la ley  $\phi^{\frac{1}{2}}$ .

La Fig. 8 muestra que  $\dot{\epsilon}_b$  aumenta con la deformación de grano (a volumen de grano constante), mientras que  $\dot{\epsilon}_a$  exhibe el comportamiento opuesto. Esta diferente dependencia puede deducirse también de las ecuaciones (7) y (8) ya que las concentraciones de defectos varían muy poco con  $\lambda$ .

Los máximos que aparecen en la Fig. 8 no deben ser considerados en el sentido de describir, comportamiento real alguno. En realidad, un mayor contenido de dislocaciones está asociado con una mayor deformación de grano. Luego, como lo muestran las Tablas V y VI, una elección apropiada de los parámetros  $\rho$  y  $\lambda$  da como resultado un incremento permanente de la velocidad de crecimiento en la dirección de trabajado. Si la deformación de grano no se tomara en cuenta, la única manera de aumentar  $\dot{\epsilon}_b$  con  $\rho$  para altos valores de  $\rho$  es aumentando fuertemente el coeficiente de recombinación (37).

Como se mencionó más arriba, dos tipos de coeficientes de tendencia fueron empleados aquí. Ambos dan un comportamiento similar (como se ejemplifica en la Fig. 8) para  $\dot{\epsilon}$  vs  $\rho$ ,  $d_g^0$  y  $\lambda$ . La Tabla V muestra que una elección razonable de  $\rho$ ,  $d_g^0$  y el coeficiente de textura permite un acuerdo muy bueno entre las veloci-

dades medidas y calculadas cuando se asumen coeficientes de tendencia logarítmicas. En la Tabla VI puede verse que los mismos valores de los parámetros ( $\rho$ ,  $d_g^0$  y  $\lambda$ ) permiten nuevamente un buen acuerdo suponiendo en este caso coeficientes fijos,  $z_i=1.20$  y  $z_v=1$ . Vale la pena señalar que este valor (fijo) del coeficiente  $z_i$  que permite un buen ajuste de los datos experimentales relativos al crecimiento por irradiación de las aleaciones de circonio trabajadas en frío es mucho más alto que el reportado por otros autores, en diversas aproximaciones, en conexión con el hinchado por irradiación en metales fcc (39).

La importancia de incorporar al modelo la cantidad de deformación del grano debe ser enfatizada. Por ejemplo, la velocidad de crecimiento para  $\lambda=0.78$  es el doble de la correspondiente a  $\lambda=0$ . En las aplicaciones del modelo hechas en el presente trabajo la deformación de grano para especímenes que no sufren un recocido pre-irradiación se tomó igual a la cantidad de trabajado en frío, dando resultados que deben tomarse como un límite inferior para ajustar los datos experimentales. Estos cálculos fueron realizados de este modo debido a la falta de metalografías detalladas sobre los especímenes de prueba en la literatura abierta. Si se hubiesen tomado valores de  $\lambda$  más altos, el ajuste de los datos experimentales aquí mencionados se hubiera logrado con una relación (fija)  $z_i/z_v$  significativamente menor que el valor 1.20.

En la Fig. 9 puede verse que, para material trabajado en frío la extrapolación lineal a tiempo de irradiación cero da  $\mathcal{E} \approx 0$  para los datos de Adamson. Sin embargo, el mismo límite no se alcanza en el caso del material recocido. Dado que el estado estacionario se alcanza a 530°K muy poco tiempo después de comenzada la irradiación, puede concluirse que el mecanismo simple de crecimiento propuesto en la Sección IV.1 puede explicar

sólo la velocidad de crecimiento observada a altas dosis.

Los datos de Kreyms no extrapolan a cero como los de Adamson para Zircaloy-4 trabajado en frío, aún cuando la velocidad de crecimiento puede ajustarse satisfactoriamente con valores calculados. Para dosis menores hay aparentemente un efecto transiente en este caso que da una velocidad de crecimiento inicial mayor que la que puede predecirse por el presente modelo.

El modelo de dislocaciones fué extendido a los efectos de incorporar la influencia de los anillos de dislocación inducidos por irradiación, suponiendo que son todos extrínsecos. El resultado mostrado en la Fig. 11 relativo a la dependencia de  $\dot{\epsilon}$  con  $N_L$  es consistente con el límite de alta potencia de sumidero discutido antes, ya que la densidad de dislocaciones aumenta con  $N_L$ . Como se muestra con la aproximación analítica, la contribución de la expansión de anillos al crecimiento es ordenes de magnitud mayor que la debida al trepado de dislocaciones, para material recocido. Ambas contribuciones se hacen del mismo orden para especímenes trabajados en frío, aunque un aumento ulterior de dosis aumenta la contribución debida a anillos relativa a la proveniente del trepado de dislocaciones.

Los datos experimentales para especímenes trabajados en frío pueden ajustarse aproximadamente, aunque una leve curvatura (debida a la ley  $t^{0.8}$ ) aparece a altas dosis -como lo ilustra la Fig. 9. Esa discrepancia no debe por supuesto invocarse para despreciar la contribución debida a anillos ya que algunos datos parecen ajustarse mejor con la dependencia lineal (los de la Fig. 9) mientras que otros obedecen una ley  $t^{0.89}$ , Fig. 13.

El modelo de dislocaciones no permite predecir ninguna recuperación por recocido a posteriori de la irradiación. Una tal

recuperación puede sin embargo concebirse cuando se involucran los anillos. De hecho, se observa una recuperación (parcial) por recocido en especímenes trabajados en frío, mientras que esa recuperación es total en material pre-recocido (27). Si la deformación de crecimiento debida a anillos fuera totalmente recuperada, la contribución recuperable  $\epsilon_L$  dependería de la dosis, como puede verse de la ec. (31). En la Fig. 11 se ve que el radio de anillo -que según la ec. (30) sigue una ley  $t^{0.4}$ - tiende a una casi saturación para una dosis que depende del valor de  $N_L$ . Las observaciones corrientes en material pre-recocido señalan un fenómeno de saturación del tamaño de anillo, si bien a dosis menores que las derivadas aquí con  $N_L = 3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ .

Carpenter y Northwood (26) reportearon diámetros de anillo más bien pequeños a las dosis de saturación. Más aún, Northwood (44) ha criticado recientemente la importante contribución debida a anillos en el modelo de Dollins en base a un valor estimado, de  $\epsilon_L$  demasiado bajo como para ser significativo. Esta crítica no es demasiado importante sin embargo, si se considera que los tamaños de saturación dados en la literatura (4,6,7,26) muestran una amplia dispersión y que la deformación  $\epsilon_L$  tiene una dependencia cuadrática con el radio del anillo.

Las deformaciones observadas en material recocido parecen tener una dependencia con la dosis muy diferente de la derivada con el modelo de anillos. Se concluye por lo tanto que este modelo no puede explicar la dependencia del crecimiento con el tiempo de irradiación, para materiales pre-recocidos.

Tomando en cuenta que la cantidad de recuperación por recocido post-irradiación es una fracción pequeña del crecimiento total observado en material trabajado en frío, se concluye que el modelo de dislocaciones presentado en la sección IV.1 permite

predecir el crecimiento por irradiación neutrónica en las aleaciones de base circonio. Esto significa que los anillos deben saturarse tanto en número como el tamaño a bajas dosis relativamente. Esta afirmación es consistente con observaciones por microscopía electrónica de transmisión (4,44) y por lo tanto, el modelo de dislocaciones es apropiado para predecir la velocidad de crecimiento asintótica (a altas dosis) para material recocido también.

#### AGRADECIMIENTOS

Agradecemos al Ing. S. Harriague el desarrollo de los primeros programas de computación empleados en este trabajo, así como también su permanente colaboración, interés y estímulo.

TABLA I

MATERIAL	IRRADIACION	TEMPERATURA DE IRRADIACION	TRATAMIENTO	DOSIS	REF.
Zry-2	neutrones ( $E > 1$ MeV)	$\approx 300^{\circ}\text{C}$	Recocido pre-irradiación a $750^{\circ}\text{C}$ 1 h. Trabajado en frío 15-20% y recocido a $400^{\circ}\text{C}$ durante 72 hs. antes de irradiar. Post-irradiación, sin recocer o recocido 1 h a $500^{\circ}\text{C}$ .	$4 \times 10^{19} - 8 \times 10^{21}$ ncm <sup>-2</sup>	Williams y Gilbert (4)
Zr Zry-2 Zr-Nb Zr-Mo	neutrones ( $E > 1$ MeV)	450-550°C	Trabajado en frío 30% pre-irradiación. Post-irradiación, sin recocer o recocido 1 h a $\approx 450^{\circ}\text{C}$ .	$2 \times 4 \times 10^{21}$ ncm <sup>-2</sup>	Carpenter y Waters (5)
Zr Zry-2	neutrones ( $E > 1$ MeV)	50-100°C 200°C 300°C 400°C	Recocidos pre-irradiación o templados desde la fase $\beta$ pre-irradiación y recocido post-irradiación.	$5.5 \times 10^{19}$ ncm <sup>-2</sup>	Riley y Grundy (6)
Zr	neutrones ( $E > 1$ MeV)	300°C	Trabajado en frío solamente o recocido luego previos a la irradiación.	$1.0 \times 10^{20}$ ncm <sup>-2</sup>	Kelly y Blake (7)
Zr	neutrones ( $E > 1$ MeV)	Temperatura del reactor	Laminado y recocido 1 h a $800^{\circ}\text{C}$ previo a la irradiación. 1 h recocido post-irradiación a $\approx 490^{\circ}\text{C}$ .	$1.4 \times 10^{20}$ ncm <sup>-2</sup>	
Zr	neutrones ( $E > 1$ MeV)	300°C	Laminado y recocido 1 h a $800^{\circ}\text{C}$ previo a la irradiación.	$3 \times 10^{19}$ ncm <sup>-2</sup>	

TABLA I (cont.)

MATERIAL	IRRADIACION	TEMPERATURA DE IRRADIACION	TRATAMIENTO	DOSIS	REF.
Zry-2	neutrones (E > 1 MeV)	290-327°C	Recristalizado, trabajado en frío y recocido pre-irradiación	$7 \times 10^{20}$ a $2.5 \times 10^{21}$ ncm <sup>-2</sup>	Adamson, Bell y Lee (8)
Zr			Recristalizado		
Zry-2	neutrones (E > 1 MeV)	290°C	Recocido pre-irradiación	$7.8 \times 10^{21}$ ncm <sup>-2</sup>	Northwood y Gilbert (10)
Zr	neutrones (E > 1 MeV)	302°C		$1.5 \times 10^{20}$ ncm <sup>-2</sup>	
Zr	neutrones (E > 1 MeV)	240-450°C	Trabajado en frío y recocido a 800°C, 1 h previo a la irradiación	$5 \times 10^{19}$ - $1.8 \times 10^{20}$ ncm <sup>-2</sup>	Kelly, Blake y Jostson (11)
Zr	Kr <sup>+</sup> 150 KeV	Ambiente	Trabajado en frío y recocido 16 hs a 750°C previo a la irradiación. Recocido post-irradiación a 600°C	$10^{13}$ iones cm <sup>-2</sup>	Gulden y Bernstein (12)
Zry-2	Kr <sup>+2</sup> 80 KeV	Ambiente	Recocido post-irradiación	$10^{14}$ iones cm <sup>-2</sup>	Riley y Grundy (6)
Zry-2	Ni <sup>+6</sup> 46.5 MeV	300°C 400°C 500°C	Recristalizado, trabajado en frío y recocido pre-irradiación	0.65 ó 5.2 dpa*	Adamson, Bell y Lee (8)
	Ni <sup>+2</sup> 5 MeV	300°C 400°C 500°C 600°C	Recristalizado pre-irradiación	7-87 dpa**	

TABLA I (cont.)

MATERIAL	IRRADIACION	TEMPERATURA DE IRRADIACION	TRATAMIENTO	DOSIS	REF.
Zry-2	Ni <sup>+2</sup> 5 MeV	300-600°C	Pre-recocido 1 h a 550°0	7-87 dpa**	Lee y Koch (13)
Zr Zry-2	e 1 MeV	300-600°C	Trabajado en frío y recocido 1 h a 900°C previo a la irradiación	0-4.8 dpatt	Gelles y Harbottle (14)
+	1 dpa = $8.0 \times 10^{20}$	$\text{ncm}^{-2}$ ( $E > 1 \text{ MeV}$ )			
*	1 dpa = $3.1 \times 10^{15}$	iones $\text{cm}^{-2}$ para Ni <sup>+6</sup>	de 46.5 MeV		
**	1 dpa = $8.0 \times 10^{14}$	iones $\text{cm}^{-2}$ para Ni <sup>+2</sup>	de 5 MeV		
++	1 dpa = $2.0 \times 10^{22}$	e $\text{cm}^{-2}$	para e de 1 MeV		

TABLA II  
 DATOS DE CRECIMIENTO POR IRRADIACION EN Zr, Zry-2 Y Zr-Nb

MATERIAL	DOSIS DE NEUTRONES RAPIDOS ( $E > 1$ MeV) [ $n\text{ cm}^{-2}$ ]	TEMPERATURA DE IRRADIACION	CAMBIO DE LONGITUD eje a	CAMBIO DE LONGITUD eje c	CAMBIO FRACCIONAL DE VOLUMEN	REF.
Zr-monocristal*	$10^{19}$ (extrapolada?)	90°0	+ 3	- 6	Cero	Buckley (15)
Zry-2-polycristal	$9.7 \times 10^{18}$	78°K	+ 15	(-30)		Kesketh, Harbottle, Waterman y Lobb (17)
	$8.2 \times 10^{18}$		+ 24	(-48)		
	$2.9 \times 10^{19}$	40°0	+ 40	(-80)	$< 3 \times 10^{-4}$	
	$1.0 \times 10^{20}$		+ 56	(-112)		
Zry-2-polycristal	$5.2 \times 10^{20}$	80°0	+ 54	(-108)		Harbottle (18)
	$4.9 \times 10^{18}$		+ 12	(-24)		
	$1.9 \times 10^{19}$	78°K	+ 23	(-46)		
	$5.0 \times 10^{19}$		+ 35	(-70)		
	$9.8 \times 10^{19}$		+ 30	(-60)	Supuesto cero	
	$1.3 \times 10^{20}$	80°0	+ 31	(-62)		
Zry-2 (trab.en frfo) polycristal	$5.4 \times 10^{20}$	70°0	+ 47	(-94)		Ibrahim y Winegar (18)
	$7.7 \times 10^{20}$	260°0	+ 63	(-126)		
Zry-2 (trab.en frfo) polycristal	$4.8 \times 10^{20}$	70°0	+ 50	-		Supuesto cero
	$5.0 \times 10^{20}$	260°0	+ 15	-		
Zry-2 (trab.en frfo) polycristal	$4.8 \times 10^{20}$	70°0	+ 70	(-140)		Supuesto cero
	$5.0 \times 10^{20}$	260°0	+ 81	(-162)		
Zr-2.5%Nb (trab.en frfo) polycristal	$4.8 \times 10^{20}$	70°0	- 34	-		Supuesto cero
	$5.0 \times 10^{20}$	260°0	+ 28	-		
Zr-2.5%Nb (temp.y en vejec.) polycristal	$4.8 \times 10^{20}$	70°0	- 10?	-		Supuesto cero
	$5.0 \times 10^{20}$	260°0	+ 4	-		

\* De referencia (28)

TABLA II (cont.)

MATERIAL	DOSIS DE NEUTRONES RAPIDOS (E = 1 MeV) n, cm <sup>-2</sup>	TEMPERATURA DE IRRADIACION	CAMBIO DE LONGITUD DE eje a	CAMBIO FRACIOINAL DE LONGITUD x105 eje c	CAMBIO FRACCIONAL DE VOLUMEN	REF.
Zry-2(trab.en frfo)policris- tal	1x10 <sup>22</sup>	250°C	-	+ 12		Fidleris(20)
Zry-2(recocido) policristal	6x10 <sup>18</sup>	127°C-140°C	(+17.5)	- 35	Supuesto cero	
Zr-2.5Nb trab. en frfo,recocido pre-irradiación						
0 h				+ 72		
5 h a 400°C	2.3x10 <sup>20</sup>	320°C		+ 77		
24 h				+ 59		
72 h				+ 17		
Zr(trab.en frfo) policristalino	1.9x10 <sup>20</sup>	360°0		+ 50		
Zr (recocldo) policristalino			(+ 5)	- 10	Supuesto cero	

TABLA III

DATOS DE CRECIMIENTO POR IRRADIACION EN Zr Y EN Zry-2 SIN TENSIONES RESIDUALES

MATERIAL	DOSIS DE NEUTRONES RAPIDOS ( $E \geq 2.1$ MeV) [n, cm <sup>-2</sup> ]	TEMPERATURA DE IRRADIACION	CAMBIO DE LONGITUD DE eje a	CAMBIO FRACCIONAL DE LONGITUD x10 <sup>5</sup> eje c	COEFICIENTE DE CRECIMIENTO INSTANTANEO, G	REF.
Zr-monocristal (extrapolado?)		90°C	+ 3	- 6		Buckley (16)
Zry-2 policristal (extrapolado)	1 x 10 <sup>19</sup>	78°K	+ 16	(- 32)	5.2	Hesketh y col. (17) y Harbottle (2)
		40°C	+ 23	(- 46)	7.1	
		80°C	+ 11	(- 22)	5.2	
		280°C	+ 6	(- 12)	2.2	
Zry-2 policristal		127-140°C	(+17,5)	- 35	0	Fidleris (20)
Zr (monocristal) (Extrapolado?)		90°C	(+ 7,5)	- 15		Buckley (15) 57
Zry-2 policristal (Extrapolado)	1 x 10 <sup>20</sup>	78°K	+ 43	(- 86)	1.6	Harbottle (2)
		40°C	+ 60	(-120)	1.4	
		80°C	+ 25	(- 50)	0.7	
		280°C	+ 15	(- 30)	0.8	
Zry-2 policristal		127-140°C	(+ 64)	- 32	muy pequeño	Fidleris (20)

TABLA IV\*

TEMPERATURA °K	TAMAÑO DE GRANO cm	DENSIDAD DE DISLOCACIONES cm <sup>-2</sup>	DOSIS PARA LAS CUALES SE ALCANZA EL ESTADO ESTACIONARIO n x cm <sup>-2</sup>
400	1 x 10 <sup>-3</sup>	10 <sup>8</sup>	> 3.26 x 10 <sup>19</sup>
		10 <sup>10</sup>	> 3.26 x 10 <sup>19</sup>
	1 x 10 <sup>11</sup>	~ 1.6 x 10 <sup>19</sup>	
	2 x 10 <sup>-3</sup>	1 x 10 <sup>11</sup>	~ 1.6 x 10 <sup>19</sup>
453	2 x 10 <sup>-3</sup>	1 x 10 <sup>10</sup>	~ 3.9 x 10 <sup>18</sup>
		1 x 10 <sup>11</sup>	~ 3.6 x 10 <sup>17</sup>
523	2 x 10 <sup>-3</sup>	1 x 10 <sup>10</sup>	~ 3.4 x 10 <sup>16</sup>
		1 x 10 <sup>11</sup>	~ 1.2 x 10 <sup>16</sup>
553	2 x 10 <sup>-3</sup>	1 x 10 <sup>8</sup>	~ 3.6 x 10 <sup>17</sup>
		1 x 10 <sup>10</sup>	~ 1.2 x 10 <sup>16</sup>
		1 x 10 <sup>11</sup>	~ 1 x 10 <sup>15</sup>
573	2 x 10 <sup>-3</sup>	10 <sup>8</sup>	~ 5.6 x 10 <sup>16</sup>
		1 x 10 <sup>11</sup>	< 1 x 10 <sup>15</sup>

\* Los cálculos se hicieron con un bias logarítmico. El flujo utilizado es de  $1 \times 10^{14}$  n.cm<sup>-2</sup>.seg<sup>-1</sup>.

TABLA V

VELOCIDADES DE CRECIMIENTO CALCULADAS UTILIZANDO COEFICIENTE DE TENDENCIA LOGARITMICOS

TEMPERATURA (°K)	TAMAÑO DE GRANO ( $\mu$ )	DENSIDAD DE DISLOCACIONES (cm/cm <sup>3</sup> )	$\lambda$	$\dot{\epsilon}^+$ (seg <sup>-1</sup> ) (TEORICO)	$\dot{\epsilon}^{++}$ (seg <sup>-1</sup> ) (TEORICO)	$\dot{\epsilon}$ (seg <sup>-1</sup> ) EXPERIMENTAL	REFERENCIAS
573	5	$2 \times 10^{10}$	0.78	$2.0 \times 10^{-10}$	$1.8 \times 10^{-10}$	$1.6 \times 10^{-10}$	Fig.18 en (27)
573	7	$2 \times 10^{10}$	0.78	$1.5 \times 10^{-10}$	$1.3 \times 10^{-10}$		
573	9	$2 \times 10^{10}$	0.78	$1.2 \times 10^{-10}$	$1.1 \times 10^{-10}$	$1.0 \times 10^{-10}$	(43)
573	9	$5 \times 10^8$	0	$8.5 \times 10^{-12}$	$7.0 \times 10^{-12}$	$8.0 \times 10^{-12}$	
553	5	$1.2 \times 10^{10}$	0.20	$1.0 \times 10^{-10}$	$8.7 \times 10^{-11}$	$8.0 \times 10^{-11}$	Tabla II en (27)
553	7	$2 \times 10^{10}$	0.20	$8.3 \times 10^{-11}$	$7.1 \times 10^{-11}$		
553	5	$5 \times 10^8$	0	$9.0 \times 10^{-12}$	$7.4 \times 10^{-12}$	$6.5 \times 10^{-12}$	Tabla II en (27)
553	7	$5 \times 10^8$	0	$7.0 \times 10^{-12}$	$5.8 \times 10^{-12}$		
530	5	$4 \times 10^{10}$	0.78	$1.6 \times 10^{-10}$	$1.4 \times 10^{-10}$	$1.2 \times 10^{-10}$	Fig.19 en (27)
530	7	$4 \times 10^{10}$	0.78	$1.2 \times 10^{-10}$	$1.0 \times 10^{-10}$		
530	5	$2 \times 10^{10}$	0.20	$8.5 \times 10^{-11}$	$7.2 \times 10^{-11}$	$5.6 \times 10^{-11}$	Fig.19 en (27)
530	7	$2 \times 10^{10}$	0.20	$6.2 \times 10^{-11}$	$5.3 \times 10^{-11}$		
530	5	$5 \times 10^8$	0	$5.4 \times 10^{-12}$	$4.4 \times 10^{-12}$	$1.0 \times 10^{-11}$	Fig.19 en (27)
530	7	$5 \times 10^8$	0	$4.3 \times 10^{-12}$	$3.0 \times 10^{-12}$		

$\dot{\epsilon} = (1-f)\dot{\epsilon}_b + f\dot{\epsilon}_o$  donde f es la fracción de granos cuyo plano basal se halla perpendicular a la dirección en que se mide el crecimiento.

+ f = .05

++ f = .10

TABLA VI

VELOCIDADES DE CRECIMIENTO CALCULADAS UTILIZANDO  $z_i=1.20, z_v=1$

TEMPERATURA (°K)	TAMAÑO DE CRANO ( $\mu$ )	DENSIDAD DE DISLOCACIONES (cm/cm <sup>3</sup> )	$\dot{\epsilon}^+$ (seg <sup>-1</sup> ) (TEORICO)	$\dot{\epsilon}^{++}$ (seg <sup>-1</sup> ) (TEORICO)	$\dot{\epsilon}^{\bullet}$ (seg <sup>-1</sup> ) (EXPERIMENTAL)	REF.
573	5	$2 \times 10^{10}$	0.78 $1.8 \times 10^{-10}$	$1.6 \times 10^{-10}$	$1.6 \times 10^{-10}$	Fig.18 en (27)
573	7	$2 \times 10^{10}$	0.78 $1.3 \times 10^{-10}$	$1.2 \times 10^{-10}$		
573	7	$4 \times 10^{10}$	0.78 $1.5 \times 10^{-10}$	$1.0 \times 10^{-10}$	$1.0 \times 10^{-10}$	(43)

TABLA VII

COMPARACION ENTRE EL CRECIMIENTO CALCULADO  
EN ESTADO ESTACIONARIO Y NO ESTACIONARIO

DOSIS ( $n/cm^2$ ) DE IRRADIACION	$\epsilon_b$ (SOLUCION NO ESTACIONARIA)	$\epsilon_b$ (SUPONIENDO $\frac{\partial c_{i,v}}{\partial t} = 0$ )
$1.1 \times 10^{19}$	$6.96 \times 10^{-6}$	$7.0 \times 10^{-6}$
$2.9 \times 10^{19}$	$1.72 \times 10^{-5}$	$1.8 \times 10^{-5}$
$8.5 \times 10^{19}$	$4.48 \times 10^{-5}$	$4.65 \times 10^{-5}$
$1.0 \times 10^{20}$	$5.23 \times 10^{-5}$	$5.42 \times 10^{-5}$
$5.98 \times 10^{20}$	$2.38 \times 10^{-4}$	$2.39 \times 10^{-4}$
$1.1 \times 10^{21}$	$3.96 \times 10^{-4}$	$3.93 \times 10^{-4}$
$1.4 \times 10^{22}$	$3.33 \times 10^{-3}$	$3.28 \times 10^{-3}$

$$\rho = 10^8 \text{ cm/cm}^3; d_g = 10^{-3}; T = 573^\circ\text{K}$$

coeficiente de tendencia logarítmico;  $N_L = 3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$

TABLA VIII

COMPARACION ENTRE LA SOLUCION NUMERICA Y LA ANALITICA EN EL MODELO DE CRECIMIENTO DE CIRCUITOS DE DISLOCACIONES

t [seg]	$r_l$ (Å) ec. 34	$r_l$ (Å) computac. numérica	$\epsilon_b$ ec.34	$\epsilon_b$ computac. numérica	% error
COEFICIENTE DE TENDENCIA LOGARITMICO					
$1.0 \times 10^6$	30	32	$5.20 \times 10^{-5}$	$5.40 \times 10^{-5}$	4.0
$1.096 \times 10^7$	89	89	$4.02 \times 10^{-4}$	$3.93 \times 10^{-4}$	2.3
$1.17 \times 10^8$	238	237	$2.87 \times 10^{-3}$	$2.83 \times 10^{-4}$	1.4
$2.34 \times 10^8$	310	317	$4.89 \times 10^{-3}$	$5.10 \times 10^{-3}$	4.0

COEFICIENTE DE TENDENCIA FIJO  $z_i = 1.15$   $z_v = 1$

$1.0 \times 10^6$	30	27	$4.47 \times 10^{-5}$	$3.96 \times 10^{-5}$	13.0
$1.09 \times 10^7$	77	75	$3.03 \times 10^{-4}$	$2.83 \times 10^{-4}$	7.0
$1.17 \times 10^8$	199	196	$2.0 \times 10^{-3}$	$1.94 \times 10^{-3}$	3.6
$2.34 \times 10^8$	263	260	$3.51 \times 10^{-3}$	$3.42 \times 10^{-3}$	2.6

$T = 573^\circ\text{K}$ ;  $d_g = 10^{-3}$  cm;  $\rho = 10^8$  xcm/cm<sup>3</sup>;  $N_L = 3 \times 10^{16}$  cm<sup>-3</sup>

## APENDICE I

### CALCULO DEL DESPLAZAMIENTO POR ATOMO (dpa) (13)

Se supone que tanto el Zr como el Zry-2 están constituidos por una distribución al azar de átomos de  $^{91}_{40}\text{Zr}$  con una densidad de 4.22 átomos/cm<sup>3</sup>, y que la energía para desplazar un átomo de su posición normal es 33 eV. Como la capacidad de un neutrón para producir desplazamientos depende de su energía, el cálculo apropiado del dpa producido en un reactor debería tomar en cuenta el espectro neutrónico. Como se carece en general de esta información, se supone un solo valor de energía de 1.5 MeV.

El valor de dpa producido por una cierta dosis neutrónica es igual al producto de la dosis por la sección transversal para el desplazamiento primario y por el número promedio de desplazamientos que produce cada primario. La sección transversal para el desplazamiento primario se aproxima por la sección transversal de colisión elástica, que es  $\approx 4.5$  b para neutrones de 1.5 MeV en Zr. El número promedio de desplazamientos generados por cada primario se calcula por la expresión

$$d = 0.8 F (P) (P - E_d) / 2E_d$$

donde  $F(P)$  es la fracción de energía del primario que se pierde en producir los desplazamientos,  $P$  es la energía promedio del primario,  $E_d$  es la energía de desplazamiento, y 0.8 es un factor de conexión (35).

Para una dosis de neutrones de  $10^{21} \text{ ncm}^{-2}$  se obtienen 1.3 dpa en Zr y en Zry-2. Si los materiales del núcleo de un reactor alcanzan una dosis máxima de neutrones rápidos de  $\approx 8 \times 10^{21}$

$\text{ncm}^{-2}$ , esto implica que el dpa total alcanza el valor de  $\approx 10$ . A causa del alto rango neutrónico (distancia entre átomos que sufren colisiones sucesivas por un neutrón) el dpa calculado puede tomarse como uniforme a través del espécimen irradiado. Este no es el caso para el bombardeo con iones pesados.

## APENDICE II

## a) DAÑO POR RADIACION EN Zr (45).

La energía promedio transferida por un neutrón de fisión a un átomo de Zr, cuando se la calcula usando el espectro de fisión entre 0 y 10 MeV y se corrige por los cambios en la dispersión anisotrópica y en la sección eficaz con la energía, es 16 keV. La mayoría de los flujos neutrónicos aludidos en la literatura tienen una energía  $E < 1$  MeV. Es interesante señalar que 25% de la energía total transferida por los neutrones de fisión proviene de neutrones con energías menores que 1 MeV. La sección transversal promedio para la dispersión elástica de neutrones de fisión es 4.1 barn. El rango de un átomo de Zr con una energía de 16 keV es  $85 \text{ \AA}$  (46) y produce inicialmente alrededor de 320 vacancias e intersticiales (35). Esto da una fracción  $N_v = 0.09$  sitios vacantes en la región dañada si ésta se supone que es un elipsoide de revolución de largo igual al rango y ancho igual a la mitad del largo ( $N = 4 \times 22 \times 10^{22}$  es el número de átomos/cm<sup>3</sup> en Zr- ). Algunas de estas vacancias se recombinan en forma directa con los intersticiales. La suposición común es que queda -al cabo del proceso de recombinación- una fracción  $N_p = 0.01$  sitios vacantes e intersticiales que es tan sólo un 11% de los defectos originales, valor que puede tomarse como un límite inferior. La concentración de defectos puntuales fuera de la zona de daño localizado es aún menor.

Durante la irradiación, la concentración de vacancias e intersticiales móviles aumenta hasta que el tiempo de irradiación alcanza un valor igual al de varias vidas medias del defecto en cuestión. Para tiempos de irradiación mayores, la velocidad

de creación de defectos se hace igual a la de aniquilación, esto es, se alcanza el estado estacionario. La velocidad de formación de defectos es

$$N \sigma_e M \phi = 55.37 \phi$$

donde  $\sigma_e$  es la sección eficaz ( $\sigma_e = 4.1$  barn),  $M=320$  es el número de átomos desplazados por colisión neutrónica y  $\phi$  es el flujo neutrónico. La velocidad de remoción de defectos es

$$N_p \Gamma_p (C_{sp}/N)$$

donde  $N_p$  es la concentración del defecto considerado,  $\Gamma_p$  es su frecuencia de salto y  $C_{sp}$  es la concentración de los sumideros correspondientes. La frecuencia de salto del defecto está dada por

$$\Gamma_p = 12 \frac{D_p}{a^2}$$

donde  $D_p$  es el coeficiente de difusión del defecto particular y  $a$  es el parámetro de red. Para las difusividades se tiene

$$D_p = D_{op} \exp\left(-\frac{\Delta H_{mp}}{kT}\right)$$

donde hemos considerado  $\Delta H_{mv} = 1.21$  eV y  $\Delta H_{mi} = 0.3$  eV (37, 45) como energías de migración de vacancias e intersticiales y respectivamente,  $D_{ov} = 0.38$ ,  $D_{oi} = 1$ . Tomando, por ejemplo,  $\phi = 1 \times 10^{13}$  ncm<sup>-2</sup> seg<sup>-1</sup> y  $C_{sv,i} = 10^{16}$  cm<sup>-3</sup> se obtiene, a 300°C, las siguientes concentraciones de estado estacionario

$$N_i = \frac{55.37 \phi}{\Gamma_i (C_{si}/N)} = 0.9 \times 10^8 \text{ cm}^{-3} \quad \text{y} \quad N_v = \frac{55.37 \phi}{\Gamma_v (C_{sv}/N)} = 2.35 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$$

donde  $\Gamma_i = 0.66 \times 10^{13}/\text{seg}$  y  $\Gamma_v = 2.5 \times 10^4/\text{seg}$ . Si sólo un 11% de los defectos escapan de las zonas dañadas, las concentraciones se reducen a

$$N_i = 1.0 \times 10^7 \text{ cm}^{-3} \quad \text{y} \quad N_v = 2.6 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$$

Estos valores no necesitan ser corregidos por los defectos que condensan en discos, ya que el número de éstos es sólo del orden de  $10^{-5}$  de los producidos, cuando se hace una estimación en base a los anillos observados al cabo de la irradiación neutrónica de Zry a 300°C.

#### b) NUCLEACION DE ANILLOS DE DISLOCACIONES

Como se ha descrito anteriormente, existen dos mecanismos posibles de formación de discos de defectos cuyo ulterior colapso da lugar a la generación de anillos de dislocaciones. Uno es el de fluctuaciones térmicas al azar y el otro es el de agregado de defectos puntuales creados durante la irradiación por colisiones de desplazamiento. Se considerarán ambos mecanismos por separado.

La energía libre de un anillo de dislocación en presencia de una tensión direccional  $\delta b$  es

$$F_a = E_s + E_f + E_n - T S_a \pm \pi r^2 \delta b \quad (1)$$

donde  $E_s$  es la energía elástica del anillo,  $E_f$  es la energía de la falla de apilamiento,  $E_n$  es la energía del núcleo de la dislocación y  $S_a$  su auto-entropía. Suponiendo un anillo circular,  $E_s$  está dada para un medio elástico isotrópico por (48)

$$E_s = \frac{\mu}{2(1-\nu)} r \left\{ \left[ \left( \frac{1-\nu}{2} \right) (b^2 - b_z^2) + b_z^2 \right] \left[ \ln \left( \frac{8r}{R_0} \right) - 2 \right] + \frac{1}{8(1-\nu)} \left[ - (1-2\nu) (b^2 - b_z^2) + 2(3-2\nu) b_z^2 \right] \right\} \quad (2)$$

donde  $\mu$  es el módulo de corte apropiado,  $\nu$  es el módulo de Poisson,  $r$  es el radio del anillo,  $b$  es el módulo del vector de Burgers,  $b_z$  es la componente del vector de Burgers normal al plano de hábito y  $R_0$  es el radio del núcleo de la dislocación. La energía de la falla de apilamiento es

$$E_f = \pi r^2 \gamma_f \quad (3)$$

donde  $\gamma_f$  es la energía específica de la falla.

La autoentropía de una dislocación tiene dos contribuciones, la configuracional -que es despreciable- y la vibracional (49). Esta última es también muy pequeña para el caso de dislocaciones rectilíneas, pero puede ser significativa para anillos pequeños (50):

$$S_a = \frac{2\pi r}{b'} \alpha k \frac{b}{b} \quad (4)$$

donde  $\alpha \approx 3$  y  $b'$  es la distancia interatómica media a lo largo del anillo.

La energía del núcleo es

$$E_n = 2\pi r \left[ \pi R_0^2 L \right] \quad (5)$$

donde  $L$  es la energía de deformación media por unidad de volumen del núcleo de la dislocación. El valor mínimo de  $R_0$  puede deter-

minarse (51) notando que la energía libre del núcleo no puede ser mayor que la energía libre de un cilindro líquido de igual radio. Para un cilindro líquido tan pequeño el término de energía superficial puede excluirse, y así

$$L \approx \frac{\Delta H \Delta T}{T_m} \quad (6)$$

donde  $\Delta H$  es la entalpía de fusión,  $\Delta T = T_m - T$  y  $T_m$  es la temperatura de fusión. Para el Zr- $\alpha$  el punto de fusión efectivo es  $T_m = 1858^\circ\text{K}$  (52). El tamaño del núcleo se calcula (49) haciendo un balance entre la energía libre del núcleo y la energía elástica de la dislocación, esto es

$$\frac{\partial}{\partial R_o} \left\{ E_s + 2\pi r \pi R_o^2 \frac{\Delta H \Delta T}{T_m} \right\} = 0,$$

de donde se obtiene, con la ayuda de (2) y (6)

$$R_o = \frac{1}{2\pi} \left\{ \frac{\mu}{2(1-\nu)} \left[ \frac{1-\nu}{2} (b^2 - b_z^2) + b_z^2 \right] \frac{T_m}{\Delta H \Delta T} \right\}^{\frac{1}{2}}$$

Usando (para Zr- $\alpha$ )  $\Delta H = 60 \text{ cal/g}$  ( $= 1405 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ ) y  $\nu = 0.38$ , se tiene a  $300^\circ\text{C}$

$$R_o = 1.14 \times 10^{-6} \left\{ \frac{\mu}{1-\nu} \left[ \frac{1-\nu}{2} (b^2 - b_z^2) + b_z^2 \right] \right\}^{\frac{1}{2}}$$

Para el caso de un anillo en un plano prismático con vector de Burgers  $\frac{a}{3} [11\bar{2}0]$ ,  $\frac{\mu}{1-\nu} = \frac{c_{11}^2 - c_{12}^2}{2c_{11}} = 413 \times 10^{12} \text{ dyn/cm}^2$  (30,31),  $b = b_z = a$  se obtiene

$$\frac{R_o}{b} = 0.73.$$

En lo que sigue, se supondrá  $R_o/b = 1$ . Substituyendo (2), (3),

(4) y (5) en (1) se obtiene

$$\begin{aligned}
 F_a = & \frac{\nu}{2(1-\nu)} r \left\{ \left[ \frac{1-\nu}{2} (b^2 - b_z^2) + b_z^2 \right] \left[ \ln \frac{r}{b} + 0.58 \right] + \right. \\
 & + \frac{1}{8(1-\nu)} \left[ -(1-2\nu)(b^2 - b_z^2) + 2(3-2\nu)b_z^2 \right] \left. \right\} + \pi r^2 \gamma_f \\
 & - 6\pi \frac{r}{b} \frac{b}{b} kT \pm \pi r^2 \delta b \quad (7)
 \end{aligned}$$

El potencial químico de un defecto es

$$\mu_p = kT \ln \frac{N_p}{N_{ep}} \quad (8)$$

donde  $N_p$  y  $N_{ep}$  son respectivamente la concentración real y la de equilibrio de los defectos a la temperatura  $T$ , por  $\text{cm}^3$ . Luego, el incremento de energía libre debido a la formación de un anillo de dislocación es

$$\Delta F_p = F_a - \frac{\pi r^2}{b^2} \mu_p \quad (9)$$

El radio crítico del anillo puede calcularse por la ecuación  $\frac{\partial \Delta F_p}{\partial r} = 0$ , que da el máximo aumento de energía libre,  $\Delta F^*$ .

Esto es,

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial \Delta F_p}{\partial r} = & \frac{\nu}{2(1-\nu)} \left\{ \left[ \frac{1-\nu}{2} (b^2 - b_z^2) + b_z^2 \right] \left[ \ln \frac{r}{b} + 1.58 \right] \right. \\
 & + \frac{1}{8(1-\nu)} \left[ -(1-2\nu)(b^2 - b_z^2) + 2(3-2\nu)b_z^2 \right] \left. \right\} + 2\pi r \gamma_f
 \end{aligned}$$

$$-\frac{6\pi b_z}{bb'} kT \pm 2\pi r \delta b - \frac{2\pi r}{b'^2} \mu_p = 0 \quad (10)$$

La energía libre crítica resulta pues, reemplazando  $\mu_p$  de (10) en (9)

$$\begin{aligned} \Delta F_p^* = & \frac{\nu'}{4(1-\nu)} r^* \left\{ \left[ \frac{1-\nu}{2} (b^2 - b_z^2) + b_z^2 \right] \left[ \ln \frac{r^*}{b} - 0.42 \right] \right. \\ & \left. + \frac{1}{8(1-\nu)} \left[ -(1-2\nu)(b^2 - b_z^2) + 2(3-2\nu)b_z^2 \right] \right\} - 3\pi \frac{r^*}{b'b} b_z kT \end{aligned} \quad (11)$$

Esta ecuación da la condición necesaria para la nucleación. Para hallar la condición complementaria (esto es, la que fije un valor único para  $F^*$  y para  $r^*$ ) es preciso utilizar una teoría de frecuencias de nucleación. Si se supone que el anillo crítico se forma a partir de una distribución de embriones de anillos (50), la teoría clásica de la nucleación da (53)

$$I_p = K_{rp} \exp \left[ - \frac{\Delta F_p^* + E_{mp}}{kT} \right] \quad (12)$$

donde  $I_p$  es la frecuencia de nucleación,  $E_{mp}$  es la energía de migración del defecto en la matriz y la constante  $K_{rp} \approx \frac{N_p kT}{h}$  donde  $h$  es la constante de Plank. A 300°C (ver apartado anterior en el texto) y un flujo neutrónico  $\phi = 10^{14} \text{ ncm}^{-2} \text{ seg}^{-1}$ , las fracciones atómicas de defectos son:

$$c_i = 3 \times 10^{-15} \quad \text{y} \quad c_v = 9 \times 10^{-7}$$

Luego,

$$K_{ri} \approx 1.5 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3} \text{ seg}^{-1}, \quad K_{rv} \approx 4.5 \times 10^{29} \text{ cm}^{-3} \text{ seg}^{-1}$$

y

$$\frac{E_{mi}}{kT} \approx \frac{\Delta H_{mi}}{kT} = 6.1, \quad \frac{E_{mv}}{kT} \approx \frac{\Delta H_{mv}}{kT} = 24.5$$

donde  $E_{mi} = 0.3 \text{ eV}$  y  $E_{mv} = 1.21 \text{ eV}$  (54)

Teniendo en cuenta que las concentraciones de equilibrio a  $300^\circ\text{C}$  son

$$c_{ei} = 6.75 \times 10^{-36} \quad \text{y} \quad c_{ev} = 2.81 \times 10^{-11}$$

el potencial químico en el medio resulta

$$\mu_i = 2.35 \text{ eV} (=3.8 \times 10^{-12} \text{ erg}) \quad \text{y} \quad \mu_v = 0.51 \text{ eV} (=8.25 \times 10^{-13} \text{ erg})$$

sea el caso de un anillo en un plano prismático con vector de Burgers  $b = \frac{a}{3} [11\bar{2}0]$ . Este es el caso más favorable para la factibilidad de la nucleación, ya que el anillo es perfecto, y por lo tanto  $E_f=0$ . Suponiendo un radio crítico razonable para un anillo de dislocación, v.g.  $\frac{r^*}{b'} \approx 5$ , se obtiene para los potenciales químicos con la ayuda de la ec. (10)  $-b' \approx a$ ;  $a=3.23 \text{ \AA}$ ;  $\mu/(1-\nu) = 413 \times 10^{12} \text{ dyn/cm}^2 (= 2.58 \times 10^{23} \text{ eV/cm}^3)$  (33,34)

$$\mu_p = 8.59 \times 10^{-13} \text{ erg}$$

donde se ha supuesto  $\delta=0$ . Este valor resulta inferior a  $\mu_i$  pero levemente superior a  $\mu_v$ . Una tensión direccional provocada por expansión térmica favorecería aún más la formación de anillos de intersticiales e inhibiría más fuertemente la de anillos de vacancias, en el plano en consideración. Sin embargo, si se supone una frecuencia de nucleación razonable ( $I_v \approx 1 \text{ cm}^{-3} \text{ seg}^{-1}$ ) se obtiene,

con la ayuda de la ec. (12)

$$\Delta F_i^* = kT (\ln 1.5 \times 10^{21} - 6.1) = 3.37 \times 10^{-12} \text{ erg}$$

con lo cual, usando (11),  $\frac{r^*}{b'}$  debe satisfacer la ec. trascendente

$$3.48 \left(\frac{r^*}{b'}\right) \ln \left(\frac{r^*}{b'}\right) + 0.94 \left(\frac{r^*}{b'}\right) = 3.37 \quad (13)$$

Esta ecuación se satisface para  $\frac{r^*}{b'} \approx 1.5$ , valor excesivamente pequeño (del orden del radio del núcleo de la dislocación). Aún cuando la sobresaturación de defectos fuera suficientemente alta como para que  $\frac{r^*}{b'} \approx 1.5$  satisficiera la condición necesaria, ec. (10), pierden sentido todos los términos que contribuyen a la energía libre  $F_a$ . Luego, debe concluirse que no pueden nuclear anillos por fluctuaciones térmicas en forma homogénea en el Zr.

Se analizará ahora el mecanismo de colapso de un disco de defectos. En este caso, el anillo será estable cuando su energía libre sea inferior a la del disco (59): Esto es, la condición crítica se alcanza cuando

$$F_a = E_d \quad (14)$$

La energía libre del disco es

$$E_d = 2 \pi r^2 \gamma \quad (15)$$

donde  $\gamma$  es la energía superficial específica.

Para un anillo con  $\underline{b} = \frac{a}{3} [11\bar{2}0]$ ,  $\frac{r^*}{b'} \approx 5$  y  $\delta=0$  se tiene, a 300°C, usando (7)

$$F_a = 1.00 \times 10^{-10} \text{ erg}$$

Luego, de (14) y (15), resulta

$$\gamma = \frac{1.00 \times 10^{-10} \text{ erg}}{2 \pi r^2} = 610 \text{ erg/cm}^2$$

Es razonable suponer que la energía libre superficial del Zr es mucho más elevada que el valor derivado, por lo que puede concluirse que ciertamente colapsarán discos de intersticiales y de vacancias en la zona de la cascada, donde la geometría del daño hace posible la condensación de defectos. Para determinar el ulterior crecimiento de los anillos de uno u otro tipo, es preciso formular un modelo cinético de crecimiento.

Considérese ahora el caso de un anillo en el plano basal, con vector de Burgers  $\underline{b} = \frac{1}{6} [20\bar{2}3]$  (31). Luego,  $b^2 = \frac{a^2}{3} + \frac{c^2}{4}$ ,

$b_z = \frac{c}{2}$  y  $b' = a$ . En este caso se tiene (30,31)

$$\begin{aligned} \frac{\mu}{1-\nu} (b^2 - b_z^2) &= (\bar{c}_{11} + c_{13}) \left[ \frac{c_{44} (\bar{c}_{11} - c_{13})}{c_{33} (\bar{c}_{11} + c_{13} + c_{44})} \right]^{\frac{1}{2}} (b^2 - b_z^2) \\ &= 0.477 \times 10^{12} (b^2 - b_z^2) \text{ dynas} \end{aligned}$$

y

$$\begin{aligned} \frac{\mu}{1-\nu} b_z^2 &= (\bar{c}_{11} + c_{13}) \left[ \frac{c_{44} (c_{11} - c_{13})}{c_{11} (\bar{c}_{11} + c_{13} + 2c_{44})} \right]^{\frac{1}{2}} b_z^2 \\ &= 0.522 \times 10^{12} b_z^2 \text{ dynas} \end{aligned}$$

La energía libre del anillo es, pues, suponiendo  $\delta = 0$

$$F_a = \left(\frac{r}{a}\right) \frac{3.23 \times 10^{-8}}{2} \left\{ \left[\frac{1-\nu}{2}\right] \times .477 \times 10^{-12} \frac{a^2}{3} + .522 \times 10^{-12} \frac{c^2}{4} \right\}$$

$$\left[ \ln \left( \frac{r}{a} \right) + \ln \frac{\sqrt{\frac{a^2}{3} + \frac{c^2}{4}}}{\sqrt{\frac{a^2}{3} + \frac{c^2}{4}}} + 0.58 \right] + \frac{10^{12}}{8(1-\nu)} \left[ 1(1-2\nu) \times .477 \right.$$

$$\left. \frac{a^3}{3} + 2(3-2\nu) \times .522 \frac{c^3}{4} \right] + \pi a^2 \left( \frac{r}{a} \right)^2 \gamma_f - 6 \pi \left( \frac{r}{a} \right)$$

$$\frac{c}{2 \sqrt{\frac{a^2}{3} + \frac{b^2}{4}}} \quad kT$$

Suponiendo como límite inferior  $\gamma_f \approx 150 \text{ erg cm}^{-2}$ , se obtiene a  $300^\circ\text{C}$

$$F_a = \left\{ 6.64 \frac{r}{a} \ln \left( \frac{r}{a} \right) + 9.94 \frac{r}{a} + 0.49 \left( \frac{r}{a} \right)^2 \right\} 10^{-12} \text{ erg}$$

La condición crítica para el colapso de un disco resulta, usando las expresiones (14) y (15)

$$6.64 \left( \frac{r}{a} \right) \ln \left( \frac{r}{a} \right) + 9.94 \left( \frac{r}{a} \right) = (60.22 \times 10^{-4} \gamma - 0.49) \left( \frac{r}{a} \right)^2$$

Si se toma ahora  $\frac{r}{a} \approx 5$ , se obtiene

$$\gamma = 766 \text{ erg/cm}^2$$

(con  $\gamma_f \approx 400 \text{ erg cm}^{-2}$ , resulta  $\gamma = 900 \text{ erg cm}^{-2}$ ) que es un valor pequeño para la energía libre superficial del Zr. El cálculo desarrollado señala pues que un anillo de dislocación de un radio  $\frac{r}{a} \geq 5$  es energéticamente favorable con respecto a un disco de defectos de igual radio. Resulta interesante en este punto estimar cuál sería el menor valor de una tensión de origen térmico necesario para inhibir el colapso de un anillo extrínseco en el plano basal. Suponiendo como límite inferior  $\gamma = 1200 \text{ erg/cm}^2$ ,  $r/a \approx 5$  y como límite superior  $\gamma_f = 400 \text{ erg/cm}^2$ , es necesario que

$$F_l > E_d$$

Luego, usando (7) y (15)

$$1.36 \times 10^{-10} \text{ erg} - 0.26 \times 10^{-20} \text{ cm}^3 \delta > 1.97 \times 10^{-10} \text{ erg}$$

Por lo tanto

$$-\delta > 2.34 \times 10^{10} \text{ dynas/cm}^2 \quad (16)$$

De la ref. (36) se tiene

$$-\delta = 9.06 \times 10^{-6} \text{ }^\circ\text{K } \mu \Delta T$$

Tomando  $\mu \approx 0.30 \times 10^{12} \text{ dynas/cm}^2$ , (16) da

$$\Delta T > 8.600^\circ\text{K}$$

Esta estimación muestra que un mecanismo tal como el propuesto por Buckley no puede operar en el caso de circonio irradiado por neutrones.

### APENDICE III

#### EL COEFICIENTE DE RECOMBINACION MUTUA DE PARES DE FRENKEL EN METALES HEXAGONALES COMPACTOS

Para derivar el coeficiente de recombinación directa de un par vacancia-intersticial, se harán las siguientes suposiciones:

- 1) La recombinación mutua ocurre espontáneamente toda vez que una vacancia y un intersticial llegan a ocupar posiciones vecinas inmediatas.
- 2) El mecanismo que controla la frecuencia de recombinación es el de difusión de los intersticiales. Como la difusividad de estos últimos es mucho mayor que la de vacancias a las temperaturas consideradas, las vacancias pueden considerarse esencialmente inmóviles.
- 3) La difusividad de los intersticiales es isotrópica.

Usando una aproximación de paseo al azar, puede demostrarse (47) que la frecuencia de salto para intersticiales -suponiendo que sólo ocupan sitios octaedrales- está dada por

$$\Gamma_x = \frac{D_i}{2a^2}$$

en el plano basal, y por

$$\Gamma_y = \frac{3}{2} \frac{D_i}{a^2}$$

en una dirección normal a ese plano.

Una vacancia tiene seis sitios intersticiales (octaedrales) vecinos inmediatos, ubicados a una distancia  $\frac{c}{4}$  del plano basal al

que ella pertenece (3 arriba y 3 abajo). Cada uno de estos intersticiales tiene 8 intersticios vecinos inmediatos -6 en su plano basal- de los cuales 3 son vecinos inmediatos de la vacancia. Luego, el coeficiente de recombinación mutua es

$$\alpha = 6 \left[ 4 r_x + f_z \right] = \frac{6D_i}{a^2} \left( 2 + \frac{3}{2} \right) = \frac{21 D_i}{a^2}$$

## APENDICE IV

### CALCULO DE LA POTENCIA DE SUMIDEROS EN ESTADO ESTACIONARIO

#### 1) DISLOCACIONES

Sea una densidad  $\rho$  [ $\text{cm}/\text{cm}^3$ ] de dislocaciones. En estado estacionario, el flujo de defectos puntuales a dislocaciones debe ser constante. Esto es, aplicando la primera ley de Fick se tiene

$$\frac{dm_{dD}}{dt} = - 2 \pi r \rho D_d \frac{dc_d}{dr} \quad (1)$$

donde  $c_d$  es la concentración de defectos y  $-m_d$  es el número total de defectos por  $\text{cm}^3$  que llega a una dislocación. Dado que  $\frac{dm_{dD}}{dt}$  es constante, la ec.(1) puede integrarse fácilmente obteniéndose

$$\frac{dm_{dD}}{dt} = - 2 \pi \rho D_d \frac{\bar{c}_d - c_{ed}}{\ln(r_s/r_c)} \quad (2)$$

donde  $r_s = (\pi \rho)^{-\frac{1}{2}}$  es un medio de la distancia entre dislocaciones,  $r_c$  es el radio del núcleo de la dislocación y  $c_{ed}$  es la concentración de defectos en equilibrio con el sumidero. Ham (54) incluyó el efecto de una atracción preferencial de intersticiales por las dislocaciones a través de un incremento en el radio de captura

$$\Delta r_c = 0.07 b a^3 \mu \epsilon / kT \quad (3)$$

donde  $b$  es el vector de Burgers,  $\mu$  el módulo de corte y  $\epsilon = 0.2$  el parámetro de deformación. Luego, la potencia del sumidero para vacancias e intersticiales resulta, respectivamente;

$$k_{vD}^2 = \frac{2 \pi \rho}{\ln(r_c/b)} \quad (4)$$

y

$$k_{iD}^2 = \frac{2 \pi f}{\ln [r_s / (b + r_c)]} \quad (5)$$

## 2) ANILLOS DE DISLOCACIONES

Los anillos extrínsecos se pueden suponer similares a las dislocaciones rectilíneas una vez que su radio excede el valor  $\geq 10b$ , ya que el efecto del campo de tensiones de la dislocación afecta aquellos defectos puntuales que están dentro de una distancia de  $\geq 10b$  de la dislocación. En este trabajo se ha supuesto que  $5b$  es un radio de nucleación apropiado. Sin embargo, las fuerzas osmóticas debidas a la sobresaturación provocada por la irradiación son suficientemente elevadas como para provocar una rápida expansión inicial del anillo hasta valores bien superiores al límite  $10b$  señalado. El efecto de la formación de anillos es, por lo tanto, simplemente elevar la longitud total de líneas de dislocación.

## 3) BORDES DE GRANO

El borde de grano es un sumidero neutro en ausencia de tensiones. Los bordes de alto ángulo se consideran como sumideros no saturables, mientras que los de bajo ángulo se consideran ineficientes como sumideros. El número total de defectos que fluyen a bordes de grano por unidad de volumen  $-m_{dB}$  está dado, según la primera ley de Fick por

$$\frac{dm_{dB}}{dt} = - 2 S D_d \frac{\partial c_d}{\partial x} \quad (6)$$

donde  $S$  es el área superficial de borde de grano total por unidad de volumen,  $D_d$  es la difusividad del defecto y  $c_d$  es la concentra-

ción del defecto. Con la ayuda de la Fig. 6 es fácil ver que

$$S = \frac{2}{d_{gn}} + \frac{1}{d_{gp}} \equiv \frac{3}{d_g}$$

En estado estacionario, el primer miembro de (6) es constante. Integrando entre  $b$  y  $x_s$ , se obtiene

$$\frac{dm_{dB}}{dt} = - \frac{6}{d_g} D_d \frac{\bar{c}_d - c'_{ed}}{\chi_s - b} \quad (7)$$

donde  $x_s$  es la distancia efectiva a la cual se alcanza  $\bar{c}_d$  y  $c'_{ed}$  es la concentración de defectos en equilibrio con el borde de grano ( $c'_{ev} = c_{ev}$ ,  $c'_{ei} \approx 0$ ). En presencia de dislocaciones,  $\chi_s \approx \frac{1}{k_D}$  (distancia media de recorrido de un defecto entre el medio y la dislocación). Luego, la potencia del sumidero borde de grano puede escribirse como

$$k_{uB}^2 = \frac{6 k_{vD}}{d_g}$$

y

$$k_{iB}^2 = \frac{6 k_{iD}}{d_g}$$

para vacancias e intersticiales, respectivamente.

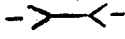

## REFERENCIAS

- (1) S.H. PAINE y J.H. KITTEL, Intern.Conf. Peaceful Uses of Atomic Energy, Vol. 11, P/745, pag. 445 (1955).
- (2) J.E. HARBOTTLE, /"Irradiation Effects on Structural Alloys for Nuclear Reactor Applications", ASTM,STP 484, pág. 287 (1970).
- (3) P.K. MADDEN, Central Electricity Generating Board (U.K.) Report, RD/B/M3125 (1974).
- (4) C.D. WILLIAMS y R.W. GILBERT, "Radiation Damage in Reactor Materials", vol. 1 (IAEA, Viena), pág. 235 (1969).
- (5) G.J.C. CARPENTER y J.F. WATTERS, "Zirconium in Nuclear Applications", ASTM, STP 551, pág. 400 (1973).
- (6) A. RILEY y P.J. GRUNDY, Phys.Stat.Sol. (a) 14, 239 (1972).
- (7) P.M. KELLY y R.G. BLAKE, Phil.Mag. 28, 415 (1973).
- (8) R.B. ADAMSON, W.L. BELL y D. LEE, "Zirconium in Nuclear Applications", ASTM, STP 551, pág. 215 (1973).
- (9) W.L. BELL, J. of Nucl.Mat. 55, 14 (1975).
- (10) D.O. NORTHWOOD y R.W. GILBERT, J. of Nucl.Mat. 51, 271 (1974).
- (11) P.M. KELLY, R.G. BLAKE y A. JOSTSONS, J. of Nucl. Mat. 59, 307 (1976).
- (12) T.D. GULDEN y J.M. BERNSTEIN, Phil, Mag. 14, 1087 (1966).
- (13) D. LEE y E.F. KOCH, J. Nucl. Mat. 50, 162 (1974).
- (14) D.S. GELLES y J.E. HARBOTTLE, CEGB Rep.RD/B/N2973 (1974).
- (15) S.N. BUCKLEY, AERE Report R3674 (1961).
- (16) S.N. BUCKLEY, Properties of Reactor Materials and Effects on Radiation Damage, Ed. W.J. Littler, Butterworths, London, 413 (1962).
- (17) R.V. HESKETH, J.E. HARBOTTLE, N.A. WATERMAN y R.C. LOBB, "Radiation Damage in Reactor Materials", Vol.1, IAEA, Viena, 365 (1969).
- (18) E.F. IBRAHIM y J.E. WINEGAR, J.Nucl.Mat.45,335 (1973).

- (19) B.T. KELLY y S.N. BUCKLEY, UKAEA Report no publicado referenciado en (18).
- (20) V. FIDLERIS, J.Nucl.Mat. 46, 356 (1973).
- (21) R.C. DANIEL, Nucl. Technol. 14, 171 (1972).
- (22) R.B. ADAMSON, Disc. sobre "Irradiation Embrittlement and Creep in Fuel Cladding and Core Components", Proc.BNES Conf., Londres, p.305 (1972).
- (23) S.N. BUCKLEY y S.A. MANTHORPE, Physical Metallurgy of Reactor Fuel Elements, Ed. J.E. Harris, E.C. Sykes, The Metals Soc., pág. 127 (1973).
- (24) R.J. HILDITCH, AAEC, Mencionado en ref. (27).
- (25) V. FIDLERIS, AAEC, mencionado en ref. (27).
- (26) G.J.C. CARPENTER y D.O. NORTHWOOD en J.Nucl.Mat., 56, 260 (1975).
- (27) V. FIDLERIS, Atomic Energy Review, 13, 51 (1975).
- (28) P.M. KELLY, Physical Metallurgy of Reactor Fuel Elements, Ed. J.E. Harris, E.C. Sykes, The Metals Soc., pág. 123 (1973).
- (29) J. GOLDAK, L.T. LLOYD y C.S. BARNETT, Phys.Rev. 144, 2, 478 (1966).
- (30) E. FISHER y C. RENKEN, Phys.Rev. 135, A428 (1964).
- (31) J.P. HIRTH y J. LOTHE, "Theory of Dislocations", McGraw-Hill Book Co. (1968).
- (32) M.W. THOMPSON y R.S. NELSON, Proc. Roy. Soc., A259, 458 (1960).
- (33) U. GONZER, J.Nucl.Mat. 2, 43 (1960).
- (34) J.A. BRINKMAN, Am. J. Phys. 24, 246 (1956).
- (35) M.W. THOMPSON, Defects and Radiation Damage in Metals, Cambridge University Press (1969).
- (36) M.H. YOO, "Zirconium in Nuclear Applications", ASTM STP 551, 293 (1973).
- (37) C.C. DOLLINS, J.Nucl.Mat. 59, 61 (1975).
- (38) C.C. DOLLINS, Rad. Eff. 11, 123 (1971)
- (39) A.D. BRAILSFORD y R. BULLOUGH, J.Nucl.Mat. 44, 121 (1972).
- (40) H. WIDERSICH, Rad. Eff. 12, 111 (1972).

- (41) S.D.HARKNESS y C.Y.LI, *Met.Trans.*2,1457 (1971).
- (42) A.D.BRAILFORD, R.BULLOUGH y M.R.HAYNES, *J.Nucl.Mat.* 60,246 (1976).
- (43) P.H.KREYNS, referidos por E. Duncombe, J.E. Mayer y W.A. Coffman en Westinghouse (U.S.) Report WAPD-TM-583,35 (1966).
- (44) D.O. NORTHWOOD, *J.Nucl.Mat.* 64,316 (1977).
- (45) G.R. PIERCY, *J.Nucl.Mat.* 26, 18 (1966).
- (46) J.LINDHARD, M.SCHARFF y H.E. SCHIOTT, *Mat. Fys.Medd., Dan. Vid.Selsk* 33, N° 14 (1963).
- (47) Y. ADDA y J. PHILLIBERT, "La diffusion dans les solides" *Inst.Nat.des Sciences et Techn.Nucl., Presse Univ. de France* (1966).
- (48) D.G. BACON y A.G. CROCKER, "Lattice defects in quenched metals" Ed. R.M.J. Cotterill, M. Doyoma, J.J. Jackson y M. Meshi, *Academic Press*, pag. 667 (1965).
- (49) A.M. COTTRELL, "Dislocations and plastic flow in crystals", *Oxford University Press* (1965).
- (50) G.F. BOLLING y D.FAINSTEIN-PEDRAZA, *Phil.Mag.*25,45 (1972).
- (51) G. SCHOECK y W.A. TILLER, *Phil.Mag.* 5,43 (1960).
- (52) A.J. ARDELL, *Acta Met.* 11, 591 (1963).
- (53) D.TURNBULL y J.C. FISHER, *J.Chem.Phys.*17,71 (1949).
- (54) F.S. HAM, *J. of App.Phys.*30,915 (1959).

## FIGURAS

- FIG.1 Crecimiento por irradiación del Zircaloy-2 y Zircaloy-4 a temperaturas de aproximadamente 570°K, excepto las mediciones de Harbottle (2), obtenida a 353°K (Ref. 27).
- FIG. 2 Deformación y anillos de dislocación creados por un disco extra de átomos AB,CD y un disco de defectos de átomos ef y gh (Ref.15).
- FIG.3 Estadios en la atenuación de los fragmentos de fisión
- X Evento de fisión
  - FF Retroceso del fragmento de fisión
  - e Haz de ionización
  - D Cascada de desplazamiento produciendo gran densidad de vacancias en el centro e intersticiales en la periferia de un volumen esferoidal.
  - R Colisiones de Rutherford produciendo pequeñas cascadas de desplazamiento (Ref. 15).
- FIG.4 Configuración esquemática de planos atómicos extras y faltantes producidos por una cascada de fisión en uranio  $\alpha$ .
-  = anillo intrínseco de dislocación (vacancias) en un plano (110).
-  = anillo extrínseco de dislocación (intersticiales) en un plano (010).
- = Atomo intersticial.
  - = Vacancia
- (Ref. 15)

- FIG.5 Se ilustra la creación continua y expansión de anillos de dislocación rodeando discos de átomos extras y vacancias en uranio  $\alpha$ . Luego de una irradiación prolongada los tamaños de circuitos pueden cubrir desde unos decimos de Å al diámetro del cristal.
- FIG.6 Representación esquemática de una grano de circonio deformado.
- FIG.7 Velocidad de crecimiento en función de la dosis de irradiación. Modelo de dislocación de la red y borde de grano.  $d_g = 1 \times 10^{-3} \text{cm}$   $\lambda = 0$ .
- FIG.8 Velocidad de crecimiento en función de la densidad de dislocaciones de la red.  
 a) Considerando coeficiente de tendencia logarítmicas.  
 b) Considerando coeficientes de tendencia independientes de la densidad de dislocaciones.
- FIG.9 Datos de crecimiento por irradiación. Origen: Adamson, Fig. 19 en ref. (27). Kreyns, ref. (43).
- FIG.10 Crecimiento por irradiación en función de la dosis. Cálculo utilizando el modelo de anillos de dislocación. La línea a) ha sido obtenida suponiendo la densidad de anillos constante,  $N_L = 3 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$ , y b) suponiendo  $N_L$  variable según la ec. (28).
- FIG.11 Crecimiento por irradiación y radio del anillo de dislocación extrínseco en función de la dosis, se muestra el resultado de variar la densidad de anillos  $N_L$  línea a,  $N_L = 3 \times 10^{15} \text{cm}^{-3}$ ; línea b,  $N_L = 3 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$ ; línea c,  $N_L = 3 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$ .

FIG.12 Crecimiento por irradiación vs dosis. Cálculo utilizando el modelo de anillo de dislocación.  
 $\phi = 1 \times 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>.seg, T=530°K, N=3×10<sup>16</sup> cm<sup>-3</sup>, d<sub>g</sub>=5×10<sup>-4</sup> cm, f=0 (línea a) y f=.05 (línea b).

FIG.13 Comparación entre los datos de crecimiento por irradiación de Adamson (línea a) (Fig.1) y resultados teóricos (línea b) suponiendo  $\phi = 1 \times 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>.seg,  $\lambda = .78$ ,  $\rho = 10^{11}$  cm/cm<sup>3</sup>, d<sub>g</sub>=5×10<sup>-4</sup> cm y N<sub>L</sub>=3×10<sup>16</sup> cm<sup>-3</sup>. Se destaca la similitud de la dependencia con la dosis.



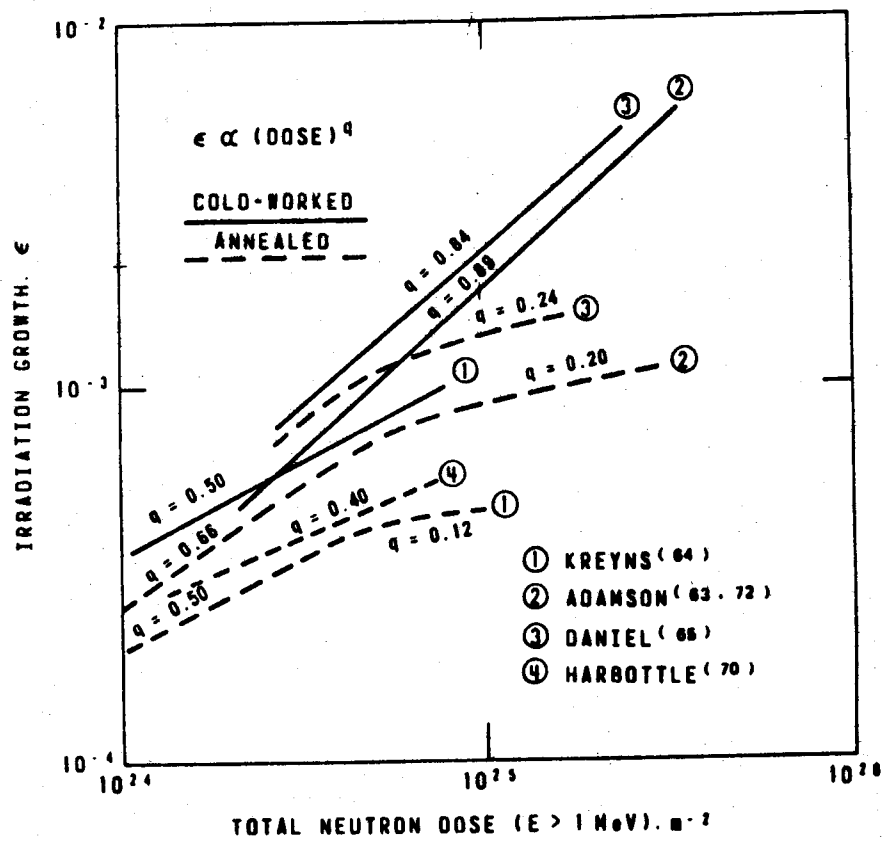


fig.1

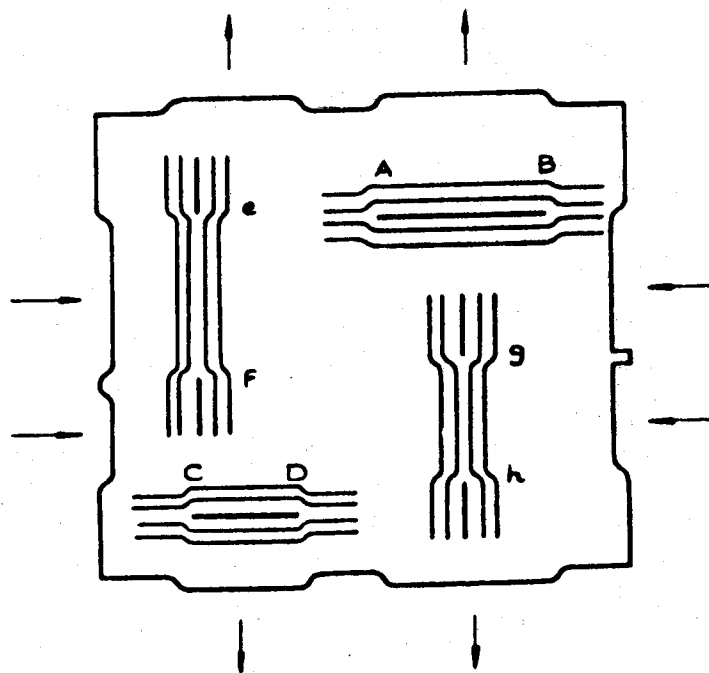
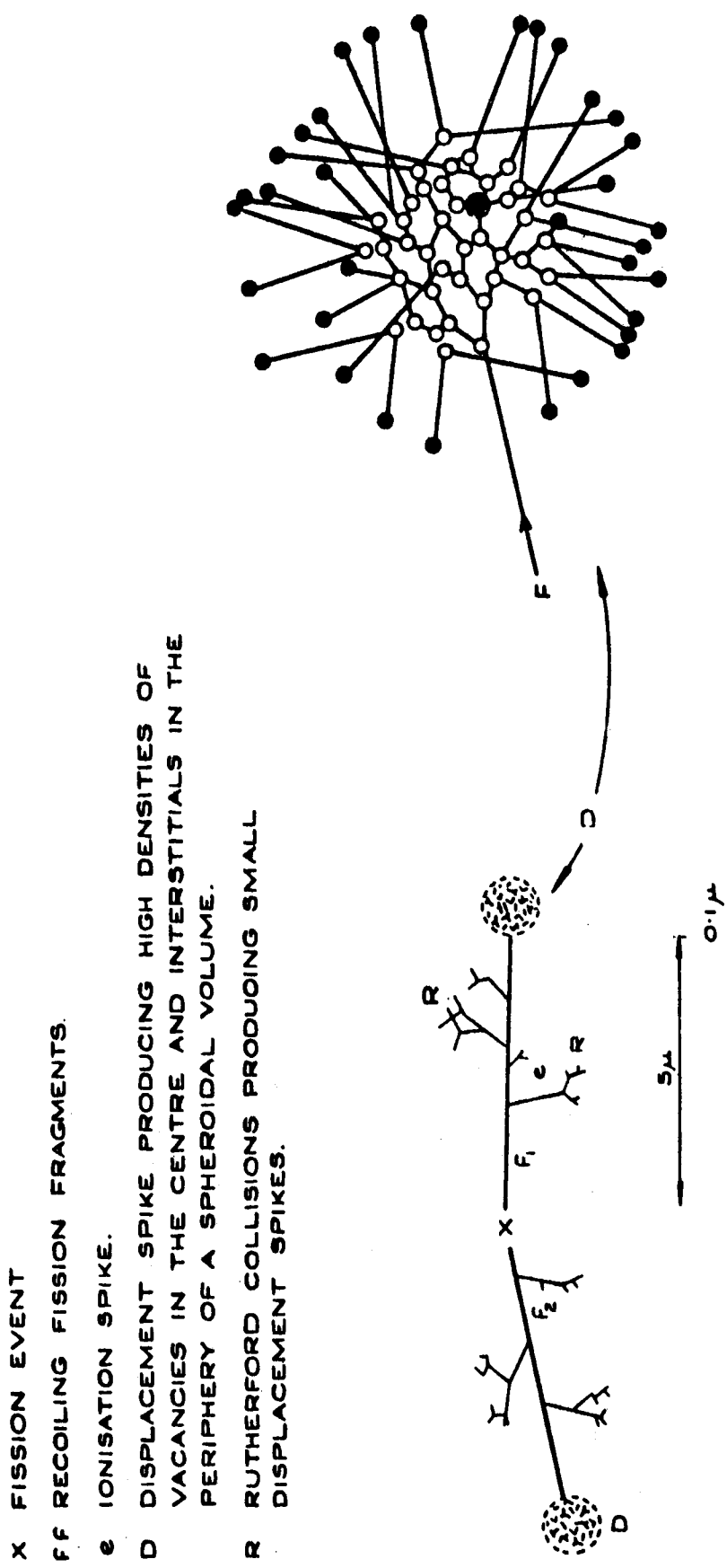


fig.2

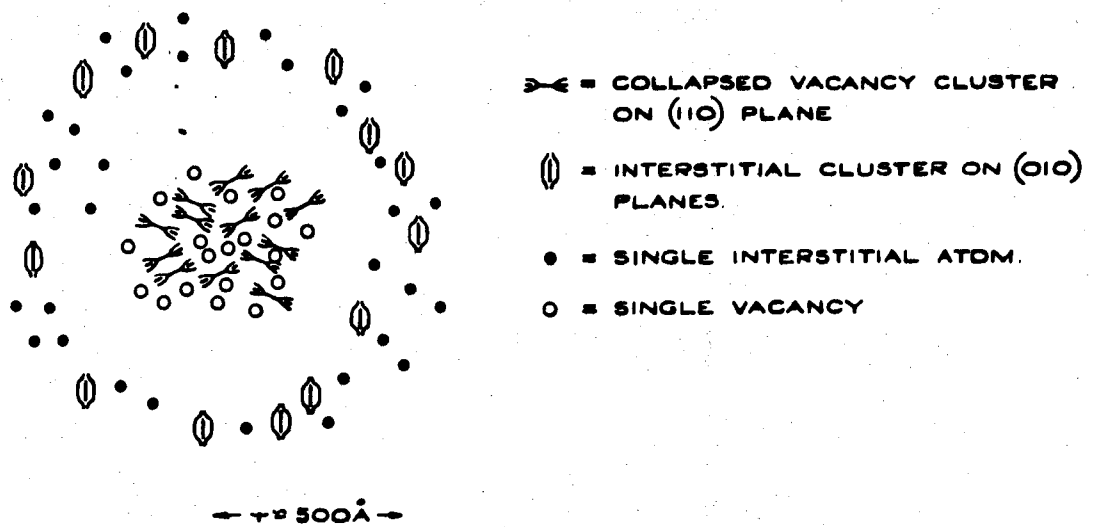
A.E.R.E. R. 3674. FIG. 5. DEFORMATION AND DISLOCATION LOOPS CREATED BY EXTRA LAYERS OF ATOMS AB, CD, AND MISSING LAYERS ef AND gh.



- X FISSION EVENT
- F<sub>1</sub> F<sub>2</sub> RECOILING FISSION FRAGMENTS.
- e IONISATION SPIKE.
- D DISPLACEMENT SPIKE PRODUCING HIGH DENSITIES OF VACANCIES IN THE CENTRE AND INTERSTITIALS IN THE PERIPHERY OF A SPHEROIDAL VOLUME.
- R RUTHERFORD COLLISIONS PRODUCING SMALL DISPLACEMENT SPIKES.

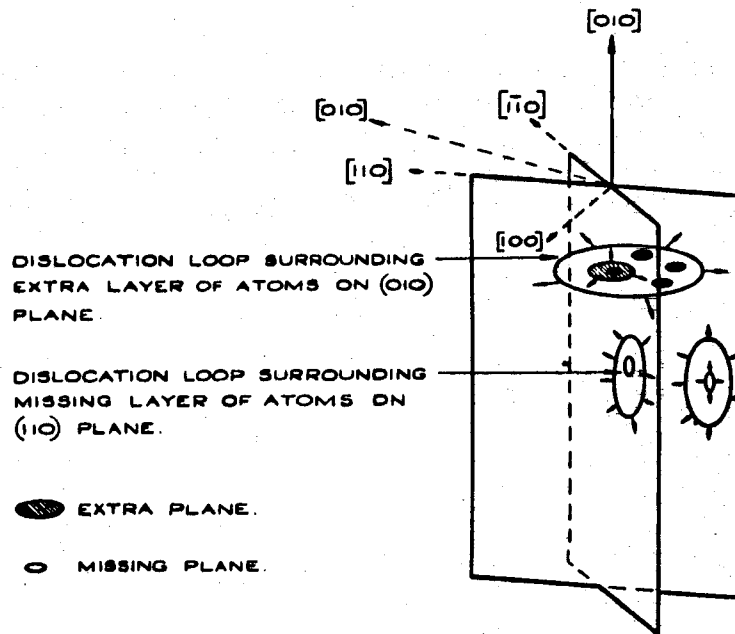
A. E. R. E. R. 3674. FIG. 6. STAGES IN THE ATTENUATION OF RECOILING FISSION FRAGMENTS.

fig. 3



A.E.R.E. R. 3674. FIG. 11. THE EXPECTED CONFIGURATION OF EXTRA AND MISSING ATOM PLANES PRODUCED BY A SINGLE FISSION SPIKE IN ALPHA URANIUM. (COMPARE WITH FIG. 6.)

fig.4



A.E.R.E. R.3674. FIG. 12. ILLUSTRATING THE CONTINUOUS CREATION AND EXPANSION OF DISLOCATION LOOPS CIRCUMSCRIBING EXTRA AND MISSING LAYERS OF ATOMS. AFTER PROLONGED IRRADIATION LOOP SIZES MAY RANGE FROM A FEW TENS OF Å TO THE CRYSTAL DIAMETER.

fig.5

fig. 6

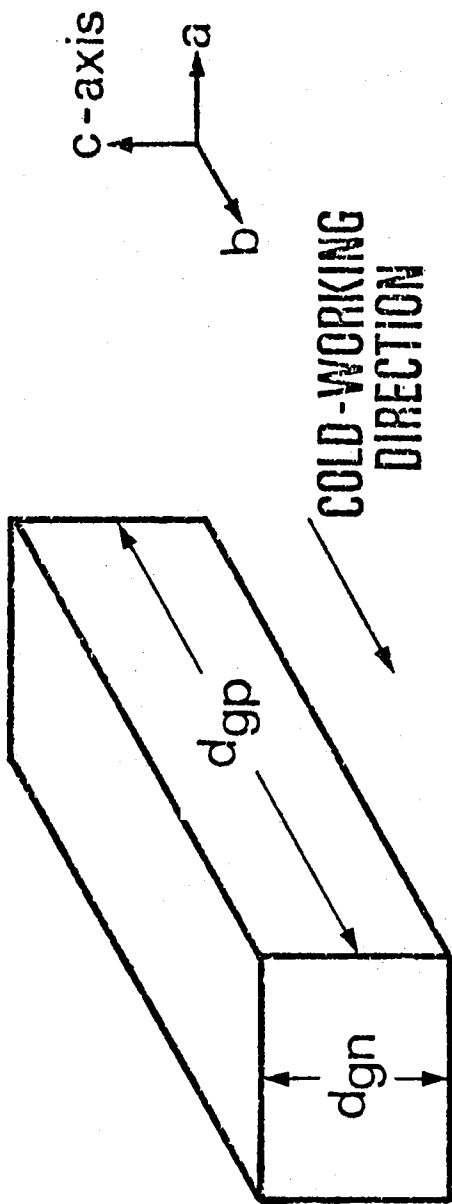


fig.7

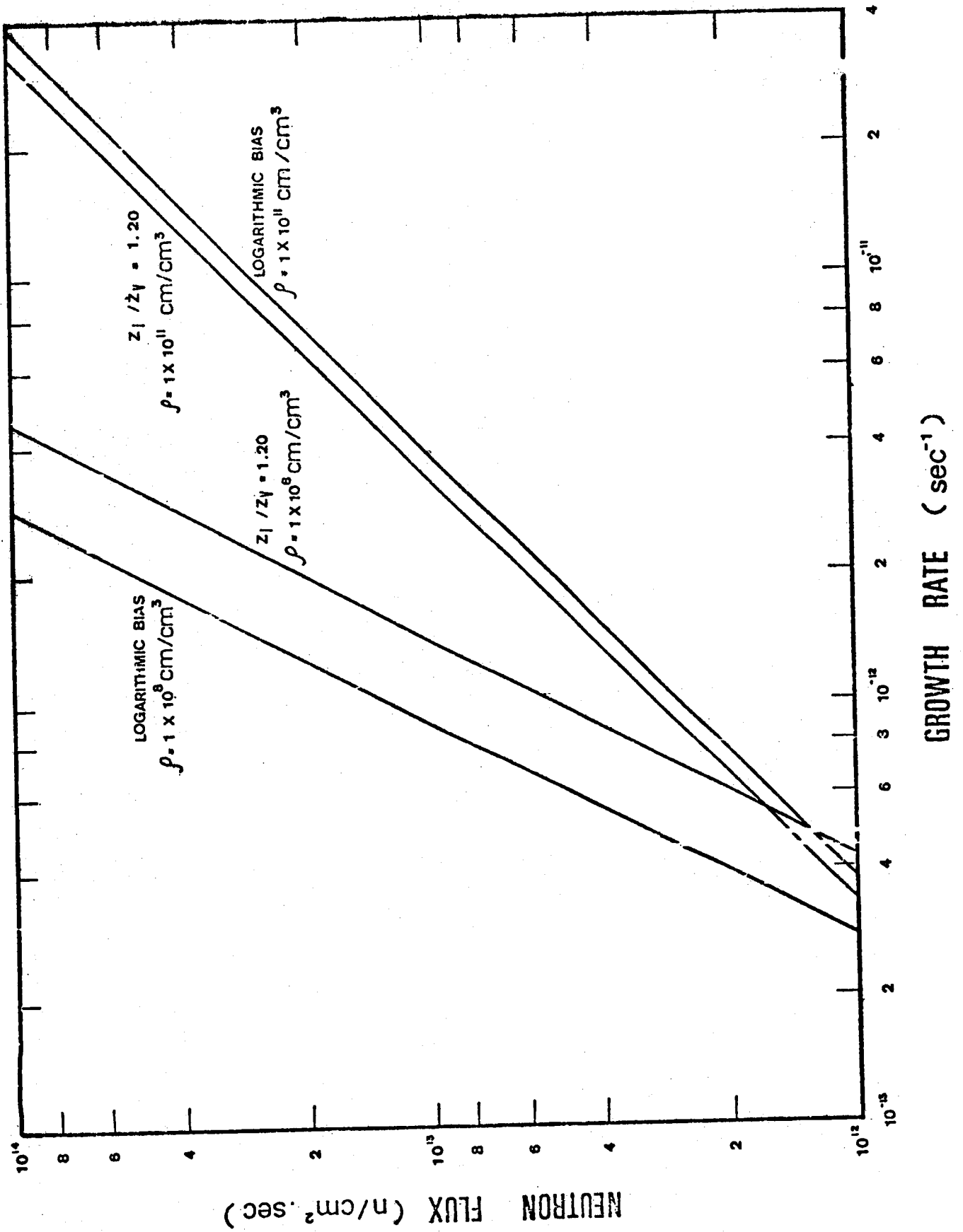


fig. 8a

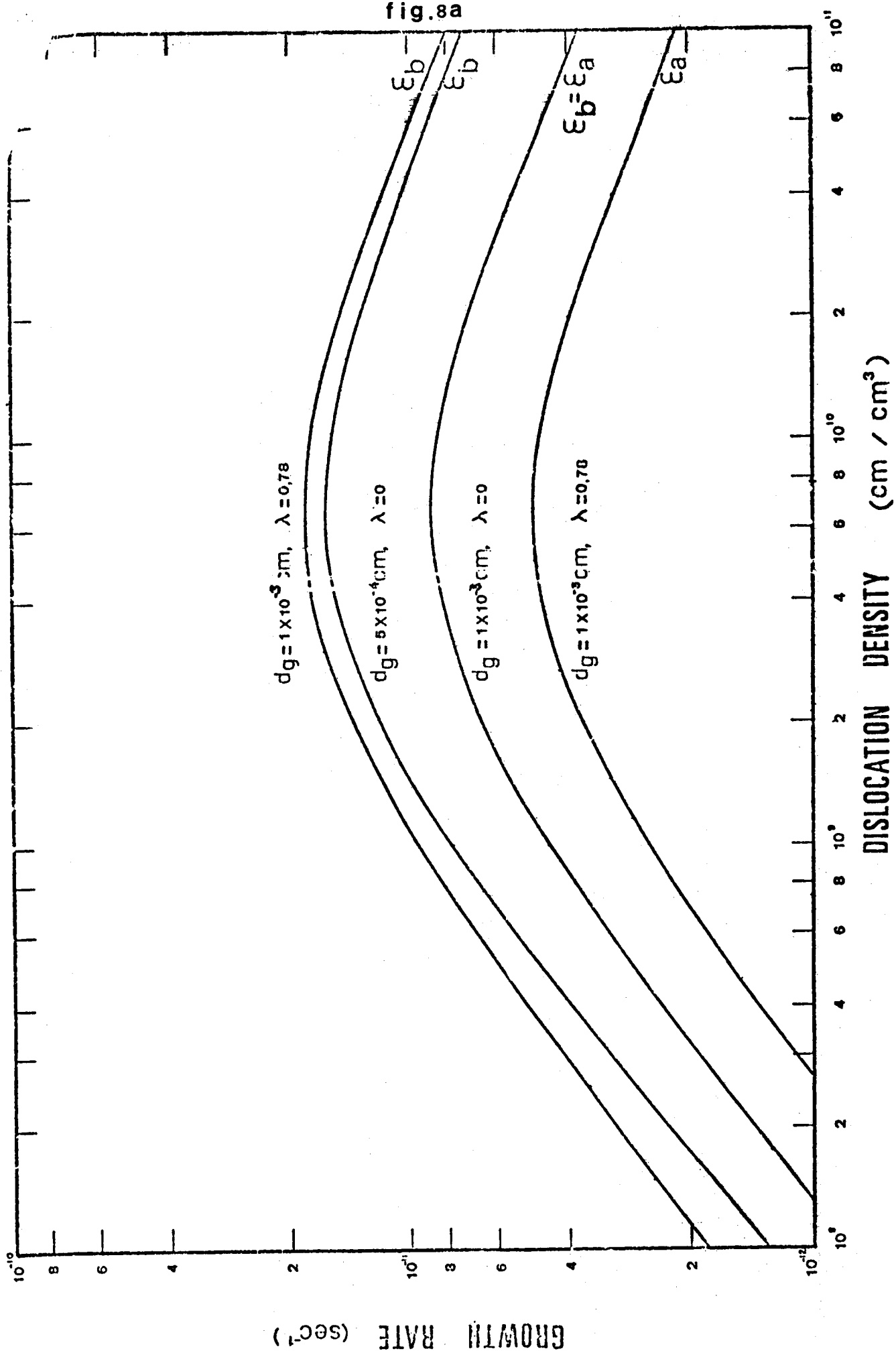
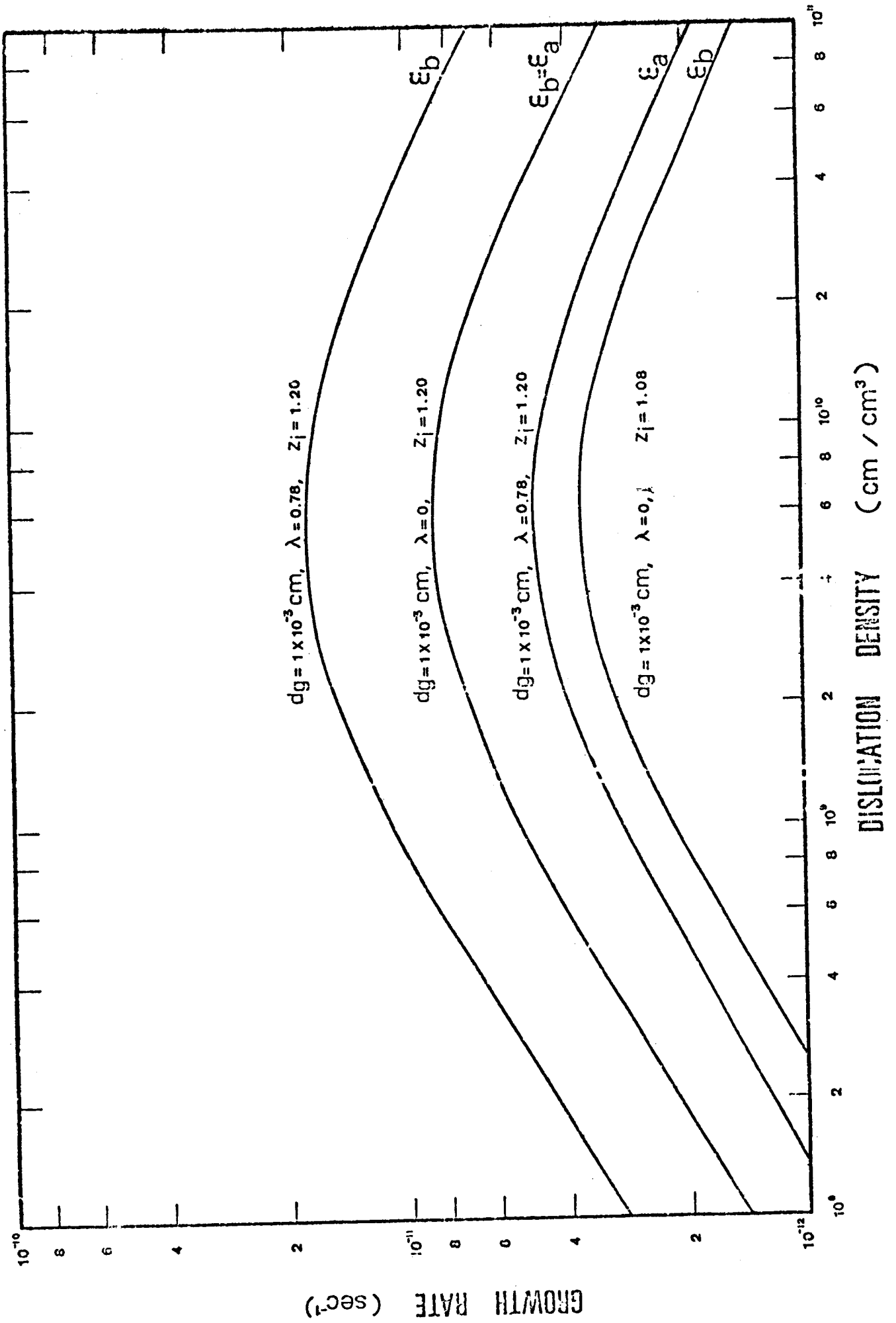


fig. 8b



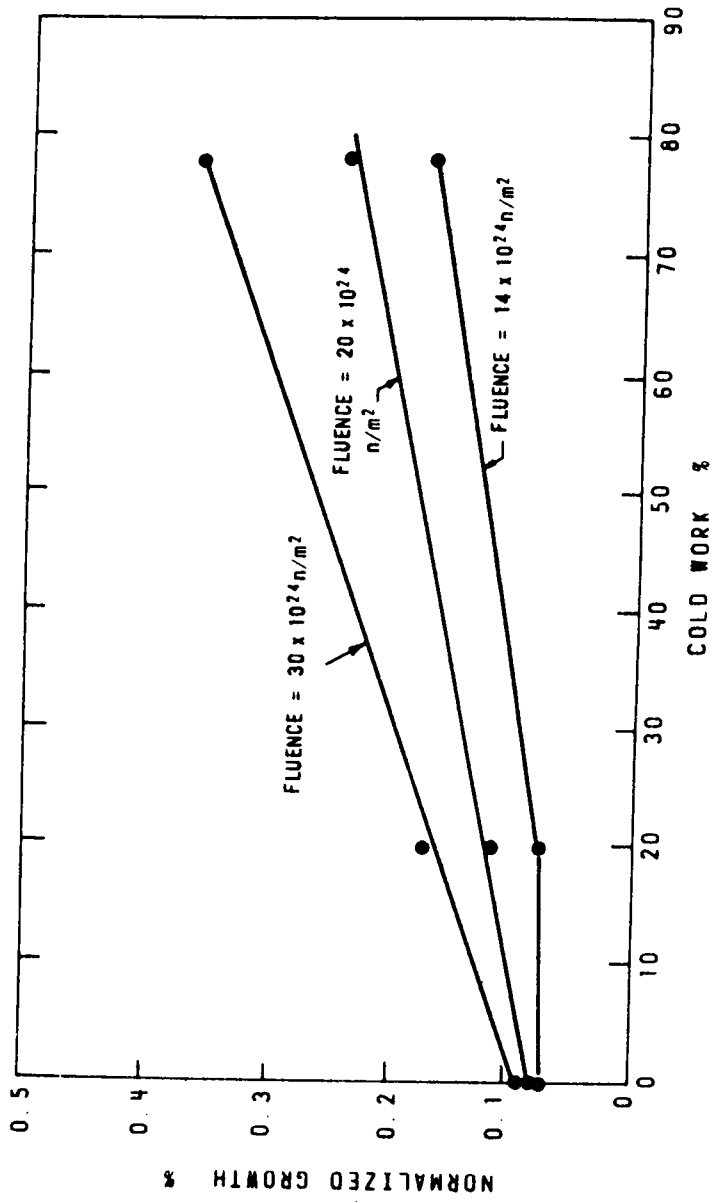


fig.9

fig.10

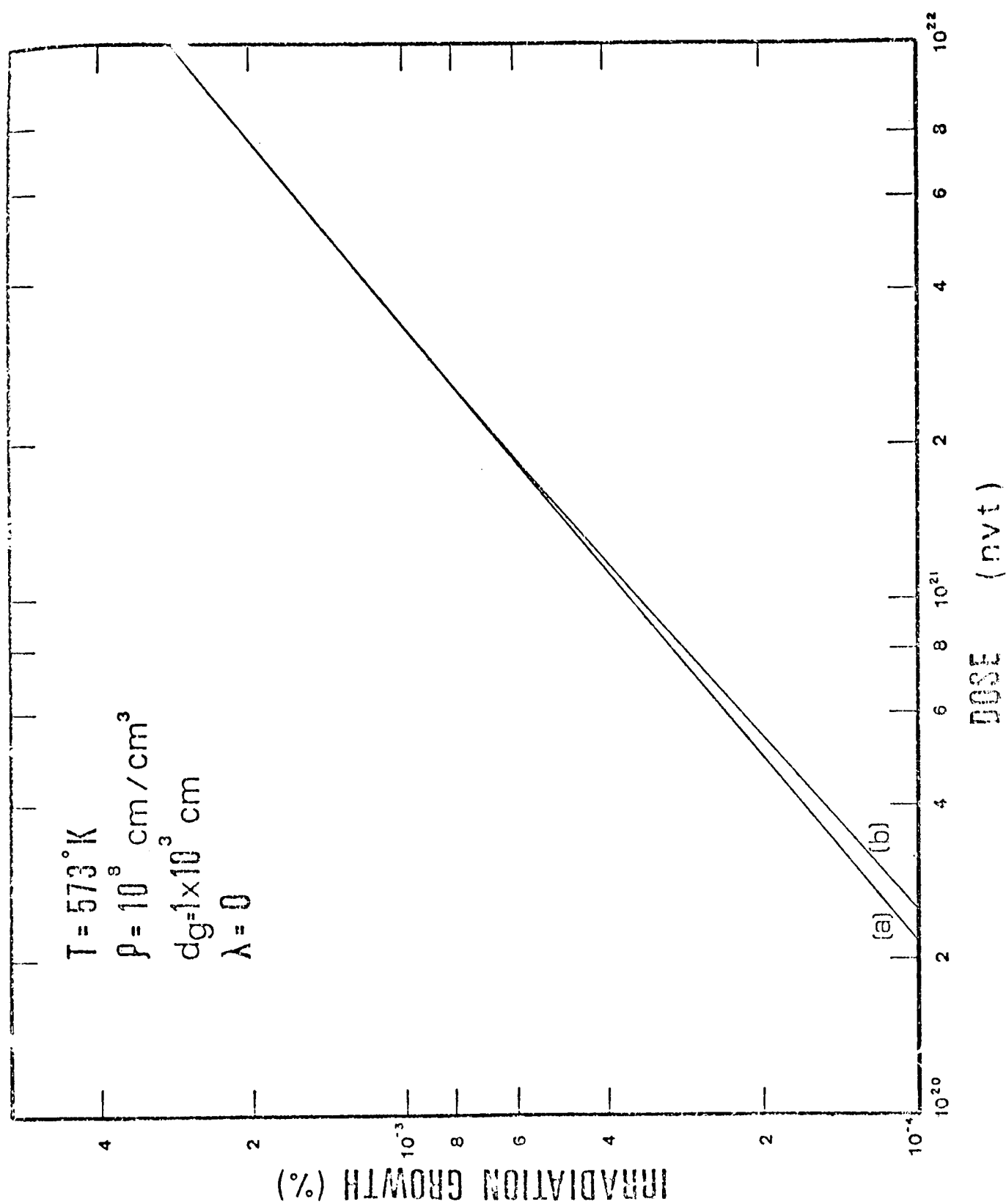


fig.11

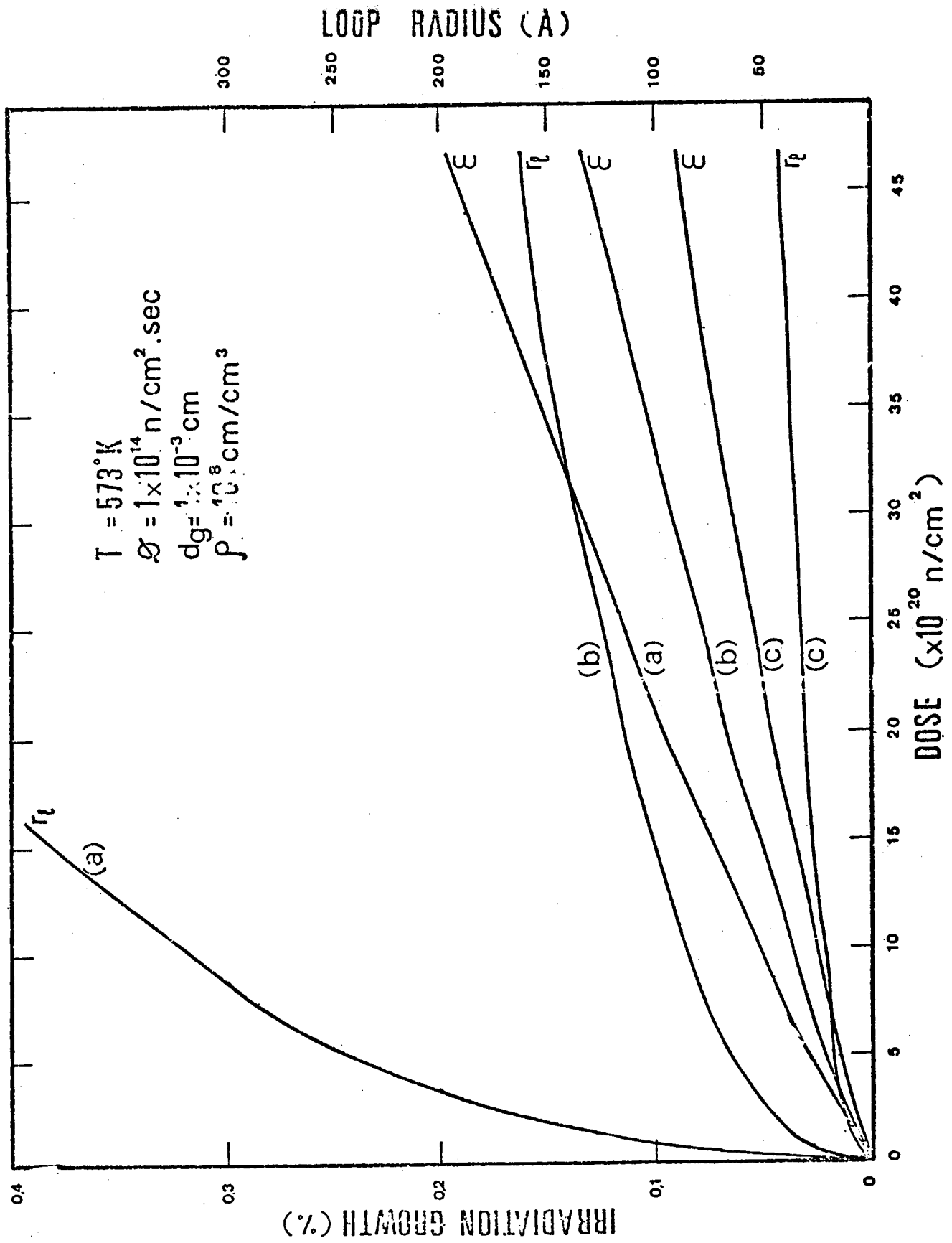


fig.12

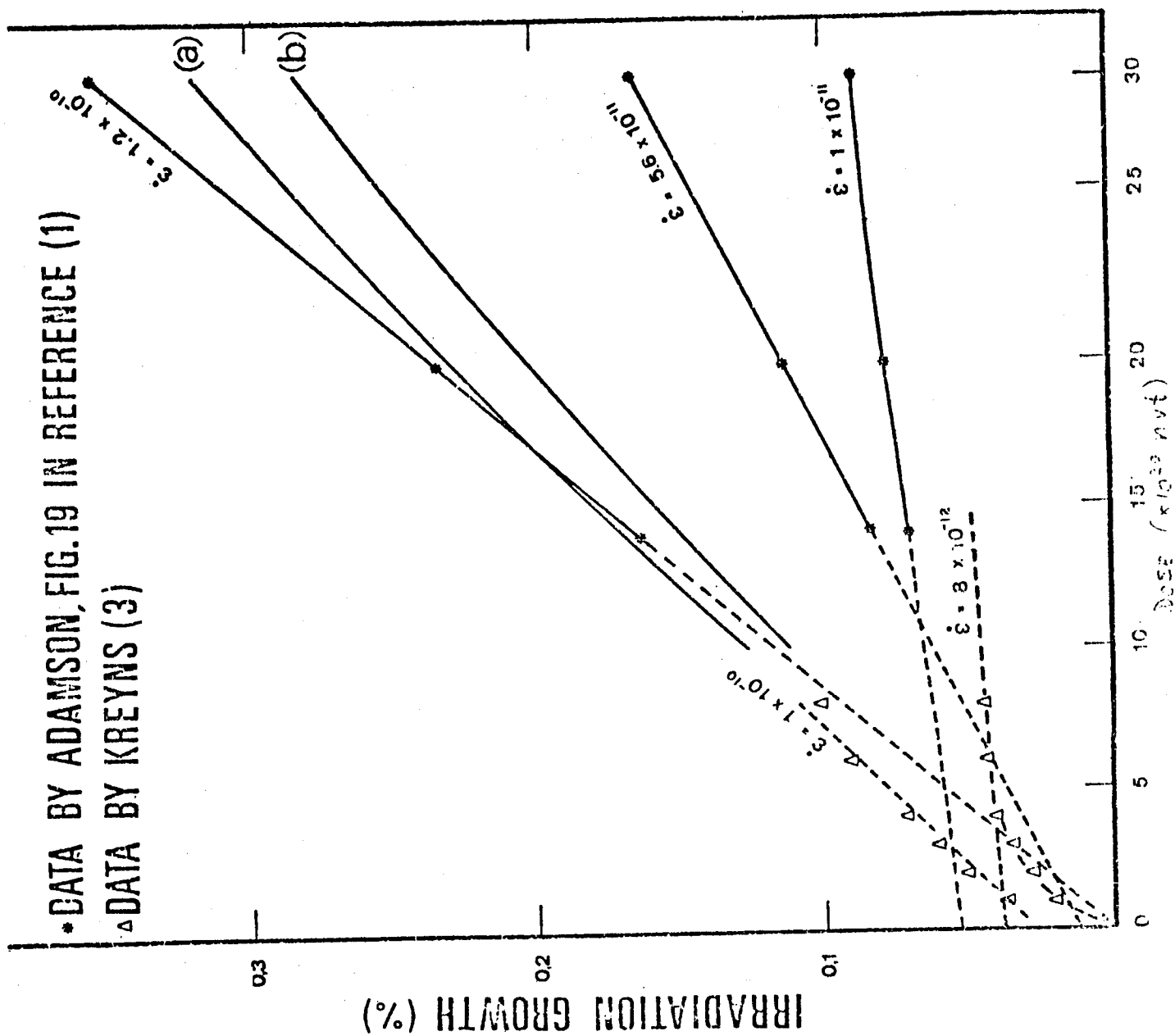


fig. 13

