

UNIVERSIDAD NACIONAL DE GENERAL SAN MARTÍN
COMISIÓN NACIONAL DE ENERGÍA ATÓMICA
INSTITUTO DE TECNOLOGÍA
“Prof. Jorge A. Sabato”

**Estudio de la naturaleza de los defectos creados por
irradiación neutrónica que provocan la fragilización de
aceros de recipientes a presión de centrales nucleares (*)**

por Aníbal Carlos Di Luch

Director: Dra. Ana M. Fortis

Co-director: Dr. Rodolfo Kempf

(*) Tesis para optar al título de *Magister en Ciencia y Tecnología de Materiales*

República Argentina

2016

AGRADECIMIENTOS

Deseo agradecer a mis directores de tesis: Dra. A. M. Fortis y Dr. R. Kempf, a los señores Daniel Anello, Gonzalo De Brito y Valentín Vaucheret del grupo Daño por Radiación, al Dr. Joaquín Sacanell del Depto. Física de Materia Condensada y al personal del Reactor RA1.

RESUMEN

Palabras Clave: recipiente a presión, aceros, fragilización por irradiación, efecto flujo.

Entre los componentes pasibles del daño por radiación en los reactores nucleares está el recipiente a presión (RPR) de una Central como Atucha II, realizado con un acero ferrítico bajo la denominación A/SA-508 Gr. 3 Cl. 1. Por radiación neutrónica un recipiente a presión fragiliza de modo tal que, bajo ciertas condiciones accidentales, se puede producir su rotura catastrófica.

Para garantizar la integridad de los RPR se realizan programas de vigilancia; además, y para anticipar los efectos, se irradian muestras del acero en forma muy acelerada en reactores experimentales.

Los ensayos acelerados no garantizan que el daño por radiación sea similar al sufrido por el recipiente durante su vida en servicio ya que hay propiedades que dependen, entre otros factores, de la difusión de aleantes y/o impurezas, o sea de la intensidad de la irradiación y del tiempo.

Para probar esto, en los Laboratorios del grupo Daño por Radiación del Departamento Estructura y Comportamiento de la Gerencia de Materiales de CNEA se diseñó y construyó una instalación en el Reactor RA1 del Centro Atómico Constituyentes para irradiar un acero similar al que constituye el RPR de la central Atucha II. Se llevaron a cabo dos irradiaciones con distintas aceleraciones en condiciones estrictas de espectro neutrónico y temperatura y se realizaron los ensayos mecánicos. Para esta tesis, se planificó y se está llevando a cabo una tercera irradiación del mismo material con un factor de avance menor a los anteriores, para lo cual se rediseñó el dispositivo de irradiación (loop) y el portaprobetas.

Una técnica basada en las propiedades magnéticas del material, se aplicó al material irradiado previamente para relacionar los resultados mecánicos con la microestructura desarrollada. Las técnicas magnéticas constituyen alternativas experimentales para los programas de vigilancia de los RPR, ya que requieren menor cantidad de material y pueden implementarse “in situ”.

De los resultados obtenidos a través de tratamientos térmicos se desprende que la formación de precipitados inducida por la radiación es la componente principal de las variaciones del comportamiento magnético y de la fragilización.

Siguiendo esta línea, el ensayo de punzonado, SPT, o Small Punch Test, es un procedimiento prácticamente no destructivo en virtud del tamaño reducido de las probetas y permite valorar las propiedades mecánicas de los materiales; en particular para esta tesis se desarrolló el equipamiento y se aplicó al acero del RPR obteniéndose buena relación con los ensayos tradicionales.

ABSTRACT

Keywords: pressure vessels, steels, radiation embrittlement, flux effect.

Among the components exposed to radiation damage in nuclear reactors is the pressure vessel (RPV) of Atucha II Nuclear Power Plant, it is made of ferritic steel A/SA-508 Gr. 3 Cl. 1. Neutron irradiation embrittles the pressure vessel so that, under certain accident conditions, it can produce its catastrophic failure.

To ensure the integrity of the RPV, surveillance programs are carried out. Steel samples are irradiated in an accelerated way in research reactors to anticipate the effects.

The accelerated tests do not guarantee that radiation damage is similar to that suffered by the vessel during its life as there are properties that depend, among other factors, on the diffusion of alloying elements and/or impurities, the intensity and duration of the irradiation.

To perform this assessment in the Radiation Damage Laboratory CNEA, it was designed and built a facility in the RA1 Research Reactor at Constituyentes Atomic Center. Two irradiations were carried out with different lead factors under strict temperature conditions and neutron spectrum and mechanical tests were performed. For this thesis, it was scheduled and it is currently being conducted a third irradiation of the same material with a lead factor of less than the former irradiation, for which the irradiation device (loop) and the specimen holder were redesigned.

A technique based on the magnetic properties of the material applied to the previously irradiated material to relate mechanical results to the microstructure developed. The magnetic techniques are experimental alternatives for the RPV surveillance programs because they require less material and can be implemented "in situ".

From the results obtained through heat treatment it is seen that the formation of precipitates induced by radiation is the main component of the variations in the magnetic behavior and embrittlement.

In this line, SPT, or Small Punch Test, is essentially a non-destructive procedure due to small size of the test samples and it allows to assess the mechanical properties of materials; in particular for this thesis the equipment was developed and applied to RPV steel obtaining good relationship with conventional tests.

PUBLICACIONES

Evaluación estructural de recipientes a presión mediante magnetometría y Small Punch Test. Libro de resúmenes de la 28° COMADEM + CORENDE 2015. ISBN 978-987-23957-6-6.

Método magnético de monitoreo de componentes nucleares minimizando la exposición. Kempf, R., Sacanell J., Di Luch, A. y Fortis A.M. X Congreso Regional Latinoamericano IRPA de Protección y Seguridad Radiológica, Buenos Aires, 12 al 17 de abril, 2015.

PROYECTOS CNEA

Proyecto de la Gerencia de Materiales: “*Fragilización de aceros de recipientes a presión*”. 2008 – actualidad. Dir: A. M. Fortis. Integrantes: R. Kempf, J. Sacanell, A. Di Luch, D. Anello.

ABREVIATURAS Y ACRÓNIMOS

ARN: Autoridad Regulatoria Nuclear de Argentina.

ASTM: American Society for Testing and Materials

BWR: Boiling Water Reactors, reactores nucleares que funcionan con agua en estado de ebullición.

CAC: Centro Atómico Constituyentes de CNEA

CAE: Centro Atómico Ezeiza de CNEA

CNEA: Comisión Nacional de Energía Atómica.

CELCA: Celdas Calientes; Instalación en el CAE para trabajar con material altamente activo.

CRP: Copper Rich Precipitates, precipitados ricos en cobre (representa a todos los precipitados aún los ricos en otros aleantes).

DBTT: Ductil-Brittle Transition Temperature, temperatura de transición dúctil-frágil.

DPA: Displacement Per Atom: número de átomos desplazados en una cascada de desplazamientos con respecto al número total de átomos.

FA: Factor de avance; aceleración de la irradiación para adelantar los posibles fenómenos que pueden ocurrir en algún lugar de un reactor.

IAEA: Agencia Internacional de Energía Atómica.

LAPEP: Laboratorio para ensayos pos-irradiación, ubicado en el CAE.

LOCA: (Lost of Coolant Accident), accidente por pérdida de refrigerante.

LWR: Light Water Reactors. Reactores presurizados que son moderados y refrigerados con agua liviana (H_2O)

MTR: Materials Testing Reactor; reactor para prueba de materiales y otros usos distintos de generar potencia aprovechable.

NRT: Norgett-Robinson-Torrens, modelo adoptado por la IAEA para determinar el número de átomos desplazados en una irradiación.

PHWR: Pressure Heavy Water Reactor, un PWR pero que funciona con agua pesada (D_2O).

PKA: Primary Knock-on Atom; primer átomo chocado por un neutrón y que inicia la cascada de desplazamientos.

PTS: Pressurized Thermal Shock; choque térmico producido por el ingreso de agua fría para controlar la temperatura del reactor cuando aún está bajo presión.

PWR: Pressure Water Reactors; reactores nucleares que funcionan con agua en estado líquido bajo presión.

RA-1 ó RA1: Primer reactor nuclear experimental construido en Argentina.

RPR: recipiente a presión de reactor; RPV (Reactor Pressure Vessel).

SMD: Stable Matrix Defects, defectos creados por el impacto de los neutrones en un material.

SPT: Small Punch Test.

TEM: Transmission Electron Microscopy

UMD: Unstable Matrix Defects, SMD que van modificándose a medida que progresa la irradiación.

USE: Upper Shelf Energy, Energía máxima absorbida en un ensayo Charpy.

VSM: Magnetometría de muestra vibrante.

ΔT T: corrimiento de la temperatura de transición dúctil-frágil medida a 41 Joules de energía absorbida.

ÍNDICE

CAPÍTULO I: ANTECEDENTES	1
I.1 Introducción.....	1
I.2 Antecedentes sobre el efecto del flujo neutrónico.....	2
I.3 Programas de vigilancia de los recipientes a presión en las centrales nucleares.....	3
I.4 El mecanismo de fractura de los materiales irradiados	5
 CAPÍTULO II: EFECTO DE LA RADIACIÓN SOBRE LOS MATERIALES.....	10
II.1 Introducción	10
II.1.1 Algunos tipos de reactores: PWR y BWR	10
II.1.2 Distribución neutrónica en un reactor	11
II.2 Daño por radiación	12
II.2.1 Sección eficaz de desplazamiento	14
II.2.2 Camino libre medio para la interacción neutrón-núcleo	15
II.2.3 La fenomenología de la cascada de colisiones.....	16
II.2.4 El número de desplazamientos atómicos	20
II.2.5 Distribución espacial del daño neutrónico	22
II.3 Recuperación del daño.....	24
 CAPÍTULO III: TÉCNICAS EXPERIMENTALES	27
III.1 Instalaciones y plan de irradiación.....	27
III.1.1 El reactor RA1	27
III.1.2 El factor de avance y el plan de irradiación	29
III.1.3 Descripción experimental de la facilidad de irradiación.....	31
III.1.4 Cápsula y probetas	35
III.2 Descripción del ensayo de impacto utilizado en trabajos anteriores a esta tesis	40
III.3 Caracterización del material irradiado	42
III.3.1 Ensayo Small Punch	42
III.3.2 Magnetometría VSM.....	46

CAPÍTULO IV: RESULTADOS	49
V.1 Ensayos magnetometría.....	49
V.2 Ensayos Small Punch	54
 CAPÍTULO V: DISCUSIÓN	 60
CONCLUSIONES	64
REFERENCIAS	65

CAPITULO I

ANTECEDENTES

I.1 Introducción

Los aceros ferríticos que se usan para construir recipientes a presión (RPR) de Centrales Nucleares sufren una degradación en sus propiedades mecánicas^{1,2} durante el servicio debido al ambiente neutrónico.

Si se irradia con neutrones una muestra de acero ferrítico se incrementa la tensión de fluencia y se reduce la ductilidad; además, durante la vida de la Central Nuclear se produce un corrimiento de la temperatura de transición dúctil-frágil del material (DBTT) hacia temperaturas más altas. Esto se comprueba experimentalmente analizando los resultados de los ensayos de impacto Charpy. Estos ensayos miden la energía absorbida por la muestra durante el impacto, antes y después de la irradiación.



Figura I.1. Recipiente a presión para una Central Nuclear. Los espesores de las paredes habitualmente oscilan entre 25 cm y 30 cm.

El estado de fragilización alcanzado por los aceros de recipientes a presión se caracteriza reportando el valor de corrimiento de la temperatura de transición dúctil-frágil (ΔT_T) en el ensayo de impacto con probetas Charpy [Ver Capítulo III]. Al desplazarse la DBTT a valores mayores de temperatura pone al recipiente en condiciones de fragilidad ya sea bajo determinadas condiciones de servicio o en el caso que deba inyectarse agua a temperatura ambiente en caso de accidente (como la pérdida abrupta de refrigerante).

Se han realizado numerosos trabajos de caracterización microestructural de aceros de RPR^{*3,4,5,6}; estas observaciones han revelado precipitación incrementada por la radiación, fundamentalmente de Cu, Ni y Mn⁷. Por primera vez Fisher et al.^{8,9} propusieron un modelo de envejecimiento desarrollado por Russell y Brown¹⁰ para aplicarlo al endurecimiento y la fragilización de los RPR. Los modelos recientes de

fragilización de RPR¹¹ incluyen una componente de endurecimiento por dispersión basada en ese modelo pero modificado, para tener en cuenta el incremento de la difusión producida por la sobresaturación de vacancias como resultado de la radiación.

Los defectos nanométricos que se desarrollan debido a la irradiación pueden ser asociados a dos formas dominantes de degradación. Estos son los defectos estables en la matriz (SMD), y los precipitados ricos en cobre (CRP) los cuales son fuente muy importante de la fragilización del acero debido al endurecimiento que ellos producen^{12,13,14}.

También se conoce que la irradiación provoca el aumento de la concentración de ciertos elementos dentro de unas capas nanométricas en los bordes de grano. Este último proceso no produce endurecimiento pero está asociado con el desarrollo de niveles crecientes de fractura intergranular por la segregación principalmente del fósforo en los bordes de grano, razón por la cual desde varias décadas atrás se reduce el contenido de fósforo en la composición de los aceros de los recipientes a presión de las centrales nucleares^{15,16}.

1.2 Antecedentes sobre el efecto del flujo neutrónico

El efecto flujo o tasa de dosis no está aun completamente demostrado¹². Recientemente, se han realizado estudios sobre el endurecimiento por irradiación de materiales para RPR con diferentes composiciones que ponen en duda el efecto flujo^{*13}. En estos trabajos se estudian múltiples aceros para RPR bajo diversas temperaturas y sometidos a irradiación neutrónica en distintos reactores con espectros neutrónicos significativamente diferentes.

De acuerdo al estado actual del conocimiento, para espectros rápidos, el efecto flujo depende del nivel de intensidad, donde el flujo rápido es definido como el número de neutrones por m²y por s [n/m²s] para $E > 1$ MeV. Se identifican tres regiones niveles bajos, intermedios y altos de intensidad para flujos rápidos^{6,9}. En cada rango es dominante un tipo específico de mecanismo físico:

- a) las contribuciones térmicas al proceso difusivo de aleantes ricos en Cu-Mn-Ni para bajos flujos,
- b) la recombinación intersticial-vacancia en el rango intermedio y
- c) la componente de defectos inestables en la matriz (UMD) domina para la intensidad de flujo más alta.

Para una baja intensidad de flujo neutrónico rápido ($E > 1$ MeV), la dosis para alcanzar el pico de endurecimiento por precipitados ricos en cobre (CRP) es una función de la tasa de dosis. Esta baja intensidad de flujo es típica de los Boiling Water Reactor (BWR) y no de los Pressure Water Reactor (PWR)¹⁷. Pero se debe destacar, sin embargo, que esta condición se cumple en la pared interna del recipiente a presión (RPR) de un Presurized Heavy Water Reactor (PHWR) como Atucha II, dado el

tamaño del recipiente del mismo (está más alejada del núcleo donde se originan los neutrones).

Según este modelo se necesita menos fluencia (menos tiempo de funcionamiento) para alcanzar el máximo de endurecimiento por precipitación (probablemente la mayor fragilización) cuando los flujos son bajos, es decir en la situación real de los RPR.

Tanto el daño de la matriz debido a la formación durante la irradiación de aglomerados de defectos puntuales y lazos de dislocaciones (SMD) [ver CAP. II], como la formación de precipitados ricos en cobre favorecida por la irradiación (CRP), se traducen en un incremento del número de obstáculos para el movimiento de las dislocaciones, lo que en última instancia causa la fragilización.

Para determinar efectivamente si la tasa de dosis es relevante en el daño y en el consecuente comportamiento mecánico, es que las irradiaciones neutrónicas se realizaron en el mismo reactor variando únicamente la intensidad de flujo. Es decir, manteniendo invariable el espectro neutrónico y la temperatura de irradiación.

I.3 Programas de vigilancia de los recipientes a presión en las centrales nucleares

La caracterización microestructural de los aceros de RPR utiliza un amplio rango de técnicas experimentales, modelización y simulaciones atomísticas. Estas deben complementar los datos obtenidos a través de programas de vigilancia, los cuales realizan ensayos periódicos sobre material irradiado, obteniéndose información útil para predecir el comportamiento a futuro. También se realizan irradiaciones del material en reactores MTR, en lugares donde el flujo neutrónico normalmente es muy superior al que recibe el RPR. Las extrapolaciones, como se verá, no siempre son confiables.

La mecánica de fractura se utiliza para establecer los límites de operación de los reactores. Los niveles de tenacidad de las planchas, los aros forjados y las soldaduras se establecen a priori y, a través de programas de vigilancia, se determinan las variaciones de los parámetros definidos por norma. Las curvas de tenacidad en función de la temperatura del material se contrastan durante toda la vida del reactor con el factor de intensidad de tensiones para una determinada condición de operación (presión y temperatura).

Una condición límite para la integridad del RPR es conocida como Pressurized Thermal Shock (PTS) que puede ocurrir durante un transitorio severo en el sistema, tal como un accidente de pérdida de refrigerante (LOCA, Lost Of Coolant Accident) o la ruptura de una tubería de vapor.

En estos casos, para evitar la fusión del núcleo, se inyecta agua a temperatura ambiente, y esto pone al material en una condición extrema de fragilidad, Figura. I.2.

La norma ASTM, Standard Method for Surveillance of Neutron Radiation of Reactor Pressure Vessel Steels (E 185-61) establece la metodología seguida en la mayoría de los países con reactores tipo PWR, y, con los años, fueron agregándose técnicas

alternativas para ajustar los corrimientos de la DBTT, y se fijaron los límites superiores de presión sobre los recipientes en función de la temperatura durante el calentamiento y enfriamiento en términos de las predicciones para los diferentes períodos en servicio.

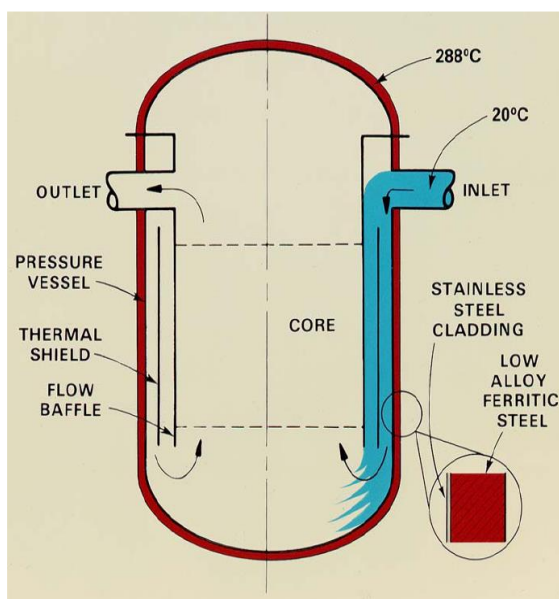


Figura I.2. PTS (Choque térmico presurizado)

La incidencia de mecanismos como los descritos en el comportamiento de elementos estructurales de reactores sometidos a largas exposiciones a la radiación, lleva a desarrollar los programas de vigilancia sobre los recipientes a presión, cuyo objetivo primordial es preservar la integridad de las plantas^{13,18}.

Los programas de vigilancia se llevan a cabo en la mayoría de los reactores mundo, Figura I.6. Tanto Atucha I como Atucha II no fueron diseñados con la posibilidad de ubicar cápsulas de vigilancia. Esto llevó a que los programas de control para Atucha I fueran hechos en reactores experimentales (VAK, Loviisa, BR2) en donde los flujos fueron hasta 800 veces superiores a los de las paredes internas del recipiente del reactor RA1.

Sin embargo, se buscó en su momento realizar un análisis dentro del reactor Atucha I y se colocaron muestras en el fondo de los canales de refrigeración.

Los especímenes de estos programas de vigilancia fueron irradiados en ubicaciones en donde los espectros neutrónicos fueron absolutamente diferentes a los de la zona más crítica del reactor. Los resultados obtenidos en todos estos casos no fueron concluyentes en cuanto a aseverar el estado del recipiente de Atucha I¹⁹.

En el Laboratorio de Daño por Radiación se realizaron dos irradiaciones de un acero similar al que compone el RPR de la central nuclear Atucha II con dos factores de avance, con el objetivo de analizar el efecto flujo en la fragilización de los RPR y determinar si son conservativos los resultados de los ensayos realizados en reactores experimentales a altos flujos y tiempos muchísimos más cortos que los de la vida de una

Central Nuclear. Los resultados obtenidos tienen una importancia fundamental para la interpretación del estado de fragilización de los aceros de RPR, para la seguridad de las plantas y para la posible prolongación de su vida útil.

Para esta tesis se continuó con el plan de irradiaciones con un factor de avance aún menor y se continuaron los análisis magnéticos de probetas ya irradiadas para obtener precisiones sobre los mecanismos actuantes en la fragilización de estos aceros. En el Capítulo 4 se detallan los trabajos experimentales para realizar esta tercera irradiación.

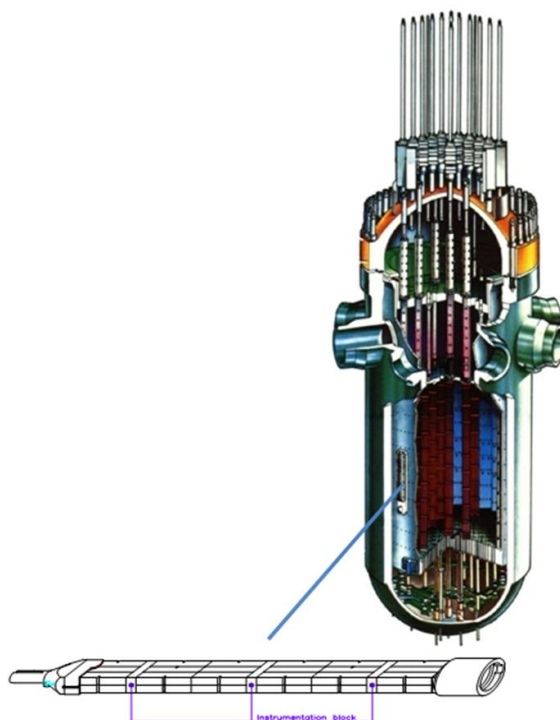


Figura I.6. Un reactor PWR y una cápsula de vigilancia. La ubicación de la cápsula de vigilancia es tal que el flujo neutrónico no es mayor que 3 veces el del área más afectada por la radiación en el RPR (ASTM, E 185- 02, E900-02)

I.4 El mecanismo de fractura de los materiales irradiados

La fractura ocurre cuando el factor de intensidad de tensiones en un material con fisuras iguala o excede la resistencia del material a la falla (tenacidad a la fractura). La tenacidad a la fractura es una propiedad del material para una dada condición del mismo. La fuerza que impulsa el crecimiento de una fisura es función de las tensiones aplicadas, el tamaño de la fisura y factores de geometría de la pieza con fisuras.

La tenacidad está afectada por factores externos como temperatura, ritmo de aplicación de las cargas y de ambiente: irradiación neutrónica, medio corrosivo, etc. y propios del material como: composición química/impurezas, tratamiento térmico, nivel

de tensiones internas, método de fabricación (método de soldadura, de trabajo mecánico, etc.) y cambios metalúrgicos dependientes del tiempo-temperatura.

Es interesante comprobar las alteraciones producidas por la irradiación en los mecanismos de fractura de los aceros. A muy altas dosis, el esfuerzo de corte sobre los planos de deslizamiento se hace tan grande que los cristales literalmente se separan. La apariencia de caras planas interrumpidas por escalones muestra que el corte ocurre sucesivamente a lo largo de planos paralelos y planos de intersección dentro del cristal. El aspecto es muy similar al clivaje pero la fractura es generada por deformación de corte. El desarrollo del mecanismo de fractura a muy altas fluencias está caracterizado por un confinamiento de la deformación en bandas conocido como canalización de dislocaciones.^{20, 21}

Un acero no irradiado, en cambio, muestra usualmente una fractura dúctil transgranular con cavidades, que es el resultado de la aparición de microporos en inclusiones y el posterior crecimiento y coalescencia de estos poros.

En el caso de los recipientes a presión tanto la fluencia alcanzada durante el tiempo normal de servicio como las temperaturas de trabajo hacen que el mecanismo de canalización de dislocaciones sea improbable, sin embargo podría ser importante en el caso de extensión de vida de las centrales.

Bajo condiciones normales de operación, el recipiente debe mantenerse en la zona de comportamiento dúctil, y las tensiones deben ser cuidadosamente controladas durante el calentamiento y enfriamiento para evitar una fractura frágil. Por lo tanto, es importante caracterizar la temperatura para la cual ocurre la transición dúctil-frágil. Esta zona de transición se observa en los ensayos de impacto Charpy y en los de tenacidad a la fractura. Hay que tener en cuenta que en esta zona la fractura dominante es la de clivaje que presenta una gran aleatoriedad intrínseca, por lo que la dispersión de los datos es importante lo que hace difícil establecer una definición única de la temperatura de transición, Figura I.3

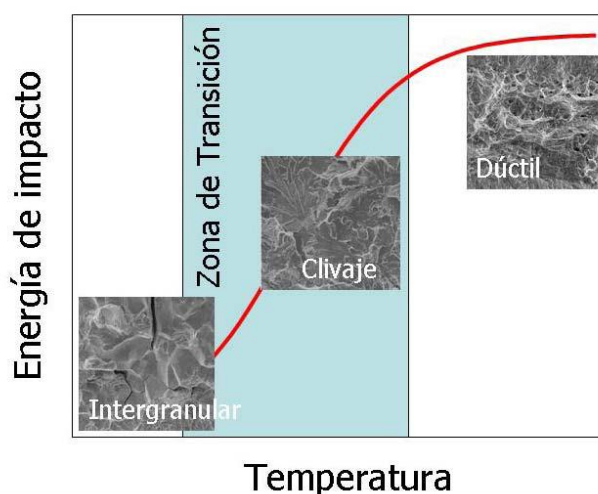


Figura I.3. Zona de transición de los materiales ferríticos

Para las fracturas frágiles las tensiones locales cerca de una fisura dependen de la tensión aplicada σ y de la raíz cuadrada de la longitud a de la fisura. La relación se llama factor de intensidad de tensiones²²:

$$K_I = \sigma (\pi a)^{1/2} \quad [\text{Mpa (m)}^{1/2}]$$

Su valor crítico es el K_{Ic} que depende del material. Esta relación se encuadra dentro de un mecanismo de fractura elástica lineal.

Un ensayo clásico de tenacidad a la fractura es la medida en especímenes compactos prefisurados de la carga vs el desplazamiento producido por la apertura de la fisura. En la Figura I.4 se muestra la configuración típica de un ensayo de tenacidad y su relación con las curvas Charpy.

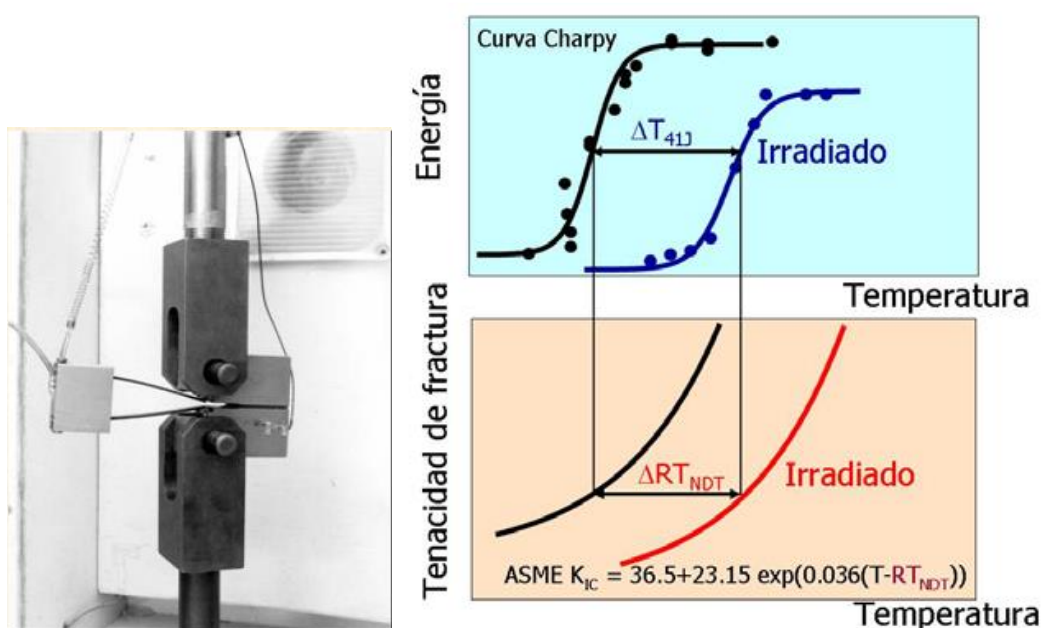


Figura I.4. Ensayo de tenacidad y relación de la fragilización con un ensayo Charpy

El cálculo de la temperatura de transición para el material irradiado supone que la variación de la tenacidad a la fractura con la fluencia neutrónica es la misma que la sufrida por la energía de impacto Charpy en términos de temperatura de transición, ver Figura I.4. Es decir, la determinación de la tenacidad a la fractura del material irradiado se realiza indirectamente a través del ensayo de impacto Charpy. Este método de evaluación de la tenacidad del material irradiado no es totalmente correcto, debido a que se relacionan dos propiedades del material de distinta naturaleza, es decir, se relaciona la variación de la curva de tenacidad de fractura estática, K_{Ic} , con la variación de la curva de impacto de carácter dinámico, a través del ΔTT a 41J.

Bajo irradiación con neutrones rápidos los aceros de recipientes a presión exhiben incremento en la tensión de fluencia, una reducción de la ductilidad y una reducción de la tenacidad caracterizada por el parámetro K_{Ic} como se ve en la Figura I.4. El endurecimiento del material produce a su vez un desplazamiento de la

temperatura de transición dúctil frágil, que se puede explicar a través del diagrama de Ludwig-Davidenkov, ver Figura I.5. Según este diagrama la fractura frágil ocurre cuando el límite elástico excede la tensión crítica de clivaje. En este punto de intersección es donde se define la temperatura de transición dúctil-frágil, DBTT²³.

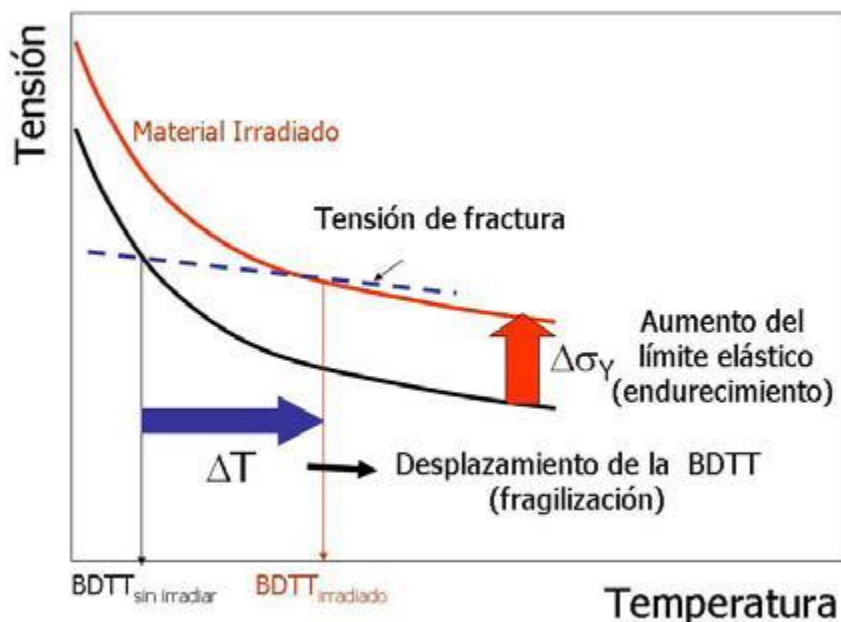


Figura I.5. Efecto de la irradiación: Diagrama de Ludwig-Davidenkov

La iniciación de la fluencia plástica en metales tanto irradiados como no irradiados es controlada por la interacción de las dislocaciones con los defectos²⁴.

A lo largo del tiempo durante el cual se estudió el endurecimiento por irradiación, dos principales mecanismos de endurecimiento fueron propuestos. El más reconocido es el endurecimiento de zona propuesto por Seeger²⁵, que es conocido como modelo de barreras dispersas. Las barreras, que bloquean el paso de las dislocaciones, serían los lazos de dislocaciones con o sin fallas de apilamiento producido luego del colapso de las cascadas (Ver Cap. II). Es una forma modificada de la teoría de Orowan para el salto de dislocaciones ancladas en obstáculos impenetrables. La tensión de corte para curvar un segmento de dislocación es:

$$\tau = \alpha Gb/l \quad [\text{Ec. I.1}]$$

donde G es el módulo de corte, l la distancia entre obstáculos y α el parámetro que indica la “dureza” del obstáculo.

Para el caso de una distribución al azar de obstáculos de diámetro d y densidad en volumen N , $l = (Nd)^{-1/2}$, entonces $\tau = \alpha Gb(Nd)^{1/2}$. Suponiendo que cada neutrón produce un obstáculo, esto es, N proporcional a la fluencia neutrónica, la dependencia con la dosis puede escribirse como:

$$\tau = K (\phi t)^{1/2} \quad [\text{Ec. I.2}]$$

en donde φ es el flujo neutrónico y t el tiempo de irradiación.

El otro modelo para el endurecimiento ha sido considerado en términos de la formación de nubes de defectos a lo largo de las dislocaciones presentes antes de la irradiación de modo que no pueden actuar como fuentes de nuevas dislocaciones²⁴. O sea, la deformación plástica no puede iniciarse hasta que las dislocaciones se destraben de la nube de defectos; la tensión necesaria para esto es la tensión de fluencia del cristal irradiado. A este mecanismo se lo conoce como endurecimiento de fuente y da cuenta de que parte de los aglomerados de defectos creados durante la radiación son móviles y pueden migrar hacia las dislocaciones dificultando el proceso de fluencia.

Cualquiera de los mecanismos descriptos se condice con el comportamiento a bajas dosis de la proporcionalidad del endurecimiento con la raíz cuadrada de la fluencia. Puede variar para dosis mayores en donde el segundo mecanismo explica mejor la canalización de dislocaciones evidenciada por el “yield drop” o caída brusca de la tensión. Cabe aclarar que las fluencias alcanzadas por las paredes del recipiente a presión siempre están por debajo de este fenómeno por lo que el modelo de barreras dispersas se ajusta al comportamiento de los aceros.

CAPÍTULO II

EFFECTO DE LA RADIACIÓN NEUTRÓNICA EN LOS MATERIALES

II.1 Introducción

En este capítulo se introducen algunos conceptos generales sobre las características de los reactores motivo del desarrollo de esta tesis y sobre las causas del deterioro de los materiales en el ambiente radiactivo en que funcionan.

II.1.1 Algunos tipos de reactores: PWR y BWR

Un PWR es un reactor a agua presurizada (Pressurized Water Reactor, PWR); el agua, que circula a través del núcleo y extrae el calor, es contenida dentro de un recipiente a una presión elevada (15-16 MPa) que la mantiene en el estado líquido. Posee un generador de vapor que, a través de un circuito secundario, lo envía a una turbina; a este tipo de reactor se lo llama de ciclo indirecto ya que ese vapor proviene de agua que nunca estuvo en contacto con los elementos combustibles.

En un reactor a agua hirviente (Boiling Water Reactor, BWR), por el contrario, el agua menos presurizada entra en ebullición al contacto con los combustibles. La mezcla de agua y de vapor así creada es introducida en los separadores de vapor situados en la parte superior de la vasija del reactor y, mientras la fase líquida es reintroducida a la entrada del núcleo, el vapor es enviado directamente a una turbina; es lo que se llama ciclo directo.

Se economiza así un generador de vapor y un circuito secundario; sin embargo, esta relativa simplicidad tiene algunos inconvenientes: el flujo de calor extraído es más bajo que en un PWR, el manipuleo de los combustibles es más complejo y existe un riesgo de llevar productos radiactivos a las turbinas.

Cuando un PWR tiene como combustible el uranio natural, la moderación se hace con agua pesada y el reactor es llamado PHWR (Pressurized Heavy Water Reactor).

Nuestro país tiene tres centrales nucleares en funcionamiento (Atucha I, Embalse y Atucha II) que fueron concebidas para funcionar con uranio natural dadas las reservas de mineral que tiene el país. En la actualidad se aplica a los combustibles utilizados en estos reactores un leve enriquecimiento con los que aumenta la eficiencia. Todas funcionan con agua pesada como moderador y refrigerante.

En general los neutrones producidos en el proceso de fisión en los elementos combustibles de estos reactores pierden energía dentro del mismo núcleo por interacciones elásticas e inelásticas con los átomos del medio y, finalmente, la distribución de energías neutrónicas (espectro neutrónico) en el núcleo de un reactor es muy diferente del espectro de fisión y es dependiente del tipo de reactor. Fuera del núcleo las energías neutrónicas continúan modificándose.

A partir de estos conceptos, múltiples diseños de reactores se han desarrollado considerando distintos tipos de material combustible (reproductores, conversores), teniendo en cuenta el material moderador usado (grafito, agua pesada, agua liviana), o el tipo de uso del reactor: compactos (reactor para submarinos), productores de energía (de agua presurizada PWR, de agua hirviente BWR), para prueba de materiales (MTR), para la producción de radioisótopos, etc.

Lo interesante es que cada reactor sufre de los efectos de la radiación en sus componentes de modo diferente, puesto que las energías neutrónicas, los materiales, la geometría y las temperaturas de funcionamiento son distintas. Para cada reactor habrá que analizar los cambios en las propiedades bajo su circunstancia particular.

II.1.2 Distribución neutrónica en un reactor

A medida que los neutrones generados en la fisión sufren interacciones con los materiales del núcleo sus energías se van modificando; la distribución en función de la energía varía produciéndose un incremento de varios órdenes de magnitud de los neutrones llamados "lentos"; es importante entonces conocer esta distribución, para lo cual se comenzará por definir algunos parámetros de gran utilidad.

Se define flujo neutrónico ϕ al producto de la densidad neutrónica (neutrones/m³) por la velocidad (m/s) de los mismos:

$$\phi = nv \quad [\text{n/m}^2\text{s}]$$

Como la velocidad neutrónica es consecuencia de su energía cinética, para todos los neutrones presentes en un reactor se puede definir una función $\phi(E)$, que toma una forma particular para cada rango de energías, dependiendo del tipo de reacciones que tienen lugar en cada rango.

En la Figura II.1 se observa la función $\phi(E)$ en función del $\log E$ para un medio bastante parecido al que corresponde a un reactor moderado con agua. Hay una zona llamada *térmica* porque las velocidades neutrónicas son del mismo orden de magnitud que las de las vibraciones de los átomos a las temperaturas normales de trabajo. La velocidad térmica más probable viene dada por la ecuación de Maxwell-Boltzman y es, a 20°C, de 2200 m/s, que corresponde a una energía cinética de 0,025 eV.

Otra zona es la llamada epitérmica o de resonancia, cuyas energías van de aproximadamente 1 eV a 100 o 200 keV, en donde la distribución varía como 1/E. Por último la zona "rápida" que se corresponde con el espectro de fisión puro. Los apartamientos de un espectro maxwelliano puro se deben a los fenómenos de absorción neutrónica que ocurren a muy bajas energías.

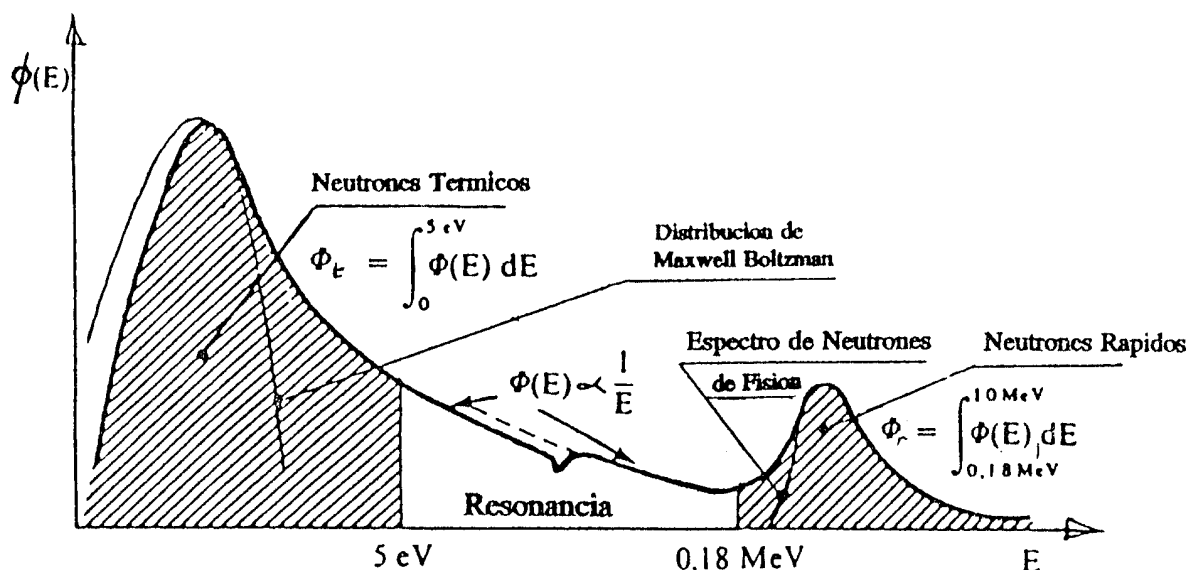


Figura II.1. Distribución de energías neutrónicas para un reactor térmico

A medida que la distancia al núcleo aumenta los neutrones continúan sufriendo el efecto del moderador y se deforma la distribución aumentando el número de neutrones térmicos y epitérmicos, con respecto a los rápidos. Cuando llegan a los límites del reactor, esto es, por ejemplo, la pared interna del recipiente a presión de un PWR, los neutrones pueden escapar o interactuar con el recipiente efectuando daño, o pueden reflejarse y volver al medio. Existen materiales reflectores como el grafito que se colocan adrede para evitar la fuga de neutrones y aumentar la eficiencia (se producen interacciones elásticas que cambian la dirección de los neutrones sin que sean absorbidos).

II.2 Daño por radiación

El efecto del bombardeo neutrónico sobre un material puede describirse teniendo en cuenta las características siguientes: los neutrones no tienen carga eléctrica, no necesitan sobrepasar fuerzas coulombianas repulsivas y pueden actuar directamente con los núcleos. La interacción depende fuertemente de la energía del neutrón. En un reactor nuclear el espectro de energías neutrónicas es amplio y varía de un lugar a otro dependiendo de las interacciones con cada material que el neutrón encuentra en su camino. Para los neutrones de altas energías, llamados rápidos ($E > 1 \text{ MeV}$), el proceso más común es el desplazamiento atómico

Los átomos del blanco pueden ser desplazados de su sitio en las redes por dos mecanismos básicos diferentes:

- a) Una colisión del neutrón con un núcleo durante la cual le transfiere una energía mayor que un cierto umbral y, sin embargo, el núcleo no cambia de naturaleza. Estas colisiones pueden ser tanto elásticas (colisiones clásicas de esferas duras), o inelásticas (o no elásticas). Para que ocurra, el neutrón debe tener una $E_n > 100 \text{ eV}$. La energía umbral para los desplazamientos, T_d ,

depende del núcleo blanco y de la dirección de colisión, pero, en principio, es de unas decenas del eV.

- b) El neutrón es capturado por el núcleo produciendo un núcleo compuesto excitado con masa $M_2 + 1$ que es inestable y que decae en unos 10^{-16} s con la emisión de neutrones, protones y radiación γ /o productos de fisión. El “rebote” conectado con la emisión de los productos del decaimiento puede producir un átomo desplazado como en el caso anterior, Figura. II.2. La captura puede ocurrir tanto para los neutrones de muy baja energía (0.01eV) como para los neutrones rápidos con energías por arriba de 2 MeV. Una parte considerable de la interacción de los neutrones de baja energía (térmicos o lentos) con las redes son de tipo inelástico (por ej. para el Fe, $\sigma_{\text{elást.}} = 4 \sigma_{\text{inelást.(captura)}}$, donde σ es la sección eficaz para el proceso respectivo).

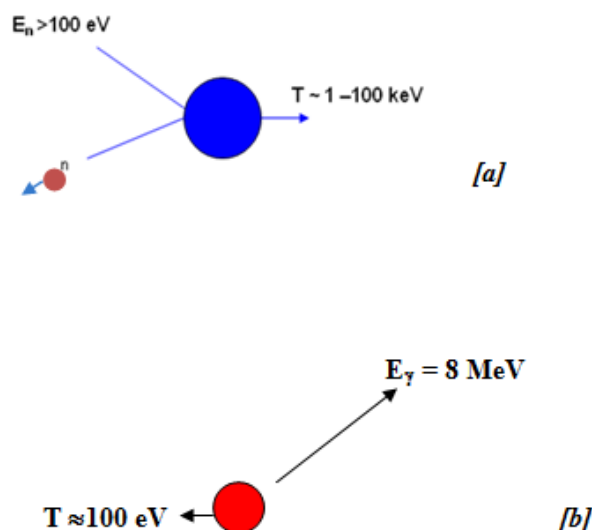


Figura II.2. [a] Un núcleo es desplazado por un choque elástico con un neutrón. [b] Un núcleo que capturó un neutrón decae emitiendo un fotón γ y sufriendo un retroceso (recoil) suficiente para salir desplazado de su sitio en la red.

La energía del átomo de retroceso en una reacción (n,γ) es $T = E_\gamma^2 / 2 M_2 c^2$, donde E_γ es la energía del fotón emitido. La energía total de los fotones emitidos corresponde a la energía de ligadura del neutrón en el núcleo (aproximadamente 8 MeV). Los valores medios de T son del orden de 100 eV, luego pueden producir desplazamientos.

Sin embargo, la contribución de la reacción (n,γ) a la producción de desplazamientos se puede despreciar frente a otras reacciones, ya que, por ejemplo, en un choque elástico neutrón-blanco, este último adquiere energías cinéticas del orden de los keV.

Los procesos de dispersión no elástica de los neutrones [reacciones (n,n') o inelastic scattering] son menos frecuentes ya que es necesario superar la energía de excitación del núcleo (≈ 8 MeV) para que el neutrón vuelva a ser despedido con otra energía. Para elementos de número de masa medio alto, la energía mínima de excitación es del orden de 100 keV. Al disminuir la masa, en general tiende a aumentar la energía de excitación, por lo que se requerirán neutrones de más energía para producir este tipo de dispersión inelástica, los que no son encontrados en los reactores de fisión.

II.2.1 Sección eficaz de desplazamiento

La sección eficaz σ de un blanco para una determinada interacción con los neutrones, es una propiedad que depende del blanco y de la energía del neutrón incidente; se define como el número medio de procesos individuales que tienen lugar por átomo (por núcleo) y por neutrón incidente. Se puede deducir que σ [cm^2] es la “superficie efectiva por núcleo individual” para una dada interacción.

Habrán entonces valores de secciones eficaces correspondientes a interacciones de dispersión elástica, a dispersión inelástica y para absorciones.

Es usual, dado los pequeños valores de estas secciones, utilizar como unidad el **barn**, que equivale a 10^{-24} cm^2 . Este valor corresponde aproximadamente a la sección geométrica que presenta como blanco un núcleo atómico medio ($r = 10^{-12} \text{ cm}$). Las secciones eficaces varían de un isótopo a otro de un material, y esta variación puede ser enorme.

Si se consideran sólo las colisiones que producen desplazamientos, existirá una probabilidad para este evento dada por una sección eficaz definida como:

$$\sigma(\Omega) = \frac{\text{n}^\circ \text{ de partículas dispersadas en } d\Omega \text{ por unidad de tiempo}}{\text{intensidad incidente}}$$

Se deduce que $\sigma(\Omega)d\Omega = \sigma(E_n, T_p) dT_p = -2\pi p dp$, en donde Ω es el ángulo sólido, p el parámetro de impacto y T_p la energía del átomo desplazado o energía transferida²⁶.

Se puede interpretar $\sigma(E_n, T_p) dT_p$ como la probabilidad no normalizada medida en área, de que la energía transferida esté entre T_p y $T_p + dT_p$. Para esta energía transferida existe una probabilidad $P(T_p)$ para que se produzca un desplazamiento. La sección eficaz de desplazamiento se puede expresar:

$$\sigma_d(E_n) = \int_0^{T_p^m} P(T_p) \sigma(E_n, T_p) dT_p$$

donde T_p^m es la energía máxima que se puede transferir en la colisión.

La energía transferida se deduce de consideraciones de conservación de impulso y energía:

$$T_p = \Lambda E_n \sin^2\left(\frac{\varphi}{2}\right) \quad \text{donde } \Lambda = \frac{4M_n M_p}{(M_n + M_p)^2}$$

En esta relación φ es el ángulo de dispersión en el centro de masa y depende del potencial de interacción y del parámetro de impacto; M_n y M_p son las masas respectivas del neutrón y del átomo blanco, llamado primario. En general la dispersión es isotrópica hasta energías neutrónicas de 2 MeV, o sea que $d\sigma/d\Omega$ es constante, y las colisiones se asemejan a las que se producen entre esferas rígidas, donde todas las energías de retroceso del átomo chocado son igualmente probables.

La energía transferida máxima es $T_p^m = \Lambda E_n$. Como la masa del neutrón es despreciable frente a la de un átomo promedio, entonces

$$T_p^m \cong \frac{4}{A} E_n$$

en donde A es la masa atómica del átomo colisionado.

Si la dispersión es isotrópica, entonces, la energía transferida promedio es $\bar{T} = T_p^m/2$. Si se toma $T_p = T_d \approx 25$ eV, que es la energía promedio necesaria para arrancar un átomo de su posición en una red cristalina, se obtiene la energía neutrónica mínima para desplazar un átomo en colisión directa que, por ejemplo para el Cu es 150 eV, para el Fe es 400 eV y para el Zr, 575 eV.

II.2.2 Camino libre medio para la interacción neutrón-núcleo

Si σ es el área efectiva por cada núcleo para una dada reacción, entonces $\Sigma = \sigma n_0$ es el área efectiva de todos los núcleos comprendidos en un volumen unitario de blanco, siendo Σ [cm^{-1}] la sección eficaz macroscópica y n_0 la densidad del blanco.

Si un haz de neutrones es de densidad $\mathbf{n}$ [cm^{-3}] y velocidad $\mathbf{v}$ [cm s^{-1}], el número de neutrones que llegan por segundo en un área de 1 cm^2 de blanco es $\mathbf{n}\mathbf{v}$, o sea, el flujo neutrónico ϕ .

Entonces $\Sigma \mathbf{n}\mathbf{v} = \Sigma \phi$ es igual al número de interacciones entre neutrones y núcleos por cm^3 de material irradiado y por segundo, lo que habitualmente se denomina ritmo de interacción. Este ritmo suele expresarse en función del camino libre medio λ , que denota la distancia total promedio que viaja un neutrón en un material antes de chocar.

Puesto que $\mathbf{v}$ es la distancia que viaja un neutrón en la unidad de tiempo, $\mathbf{v}/\lambda$ es el número promedio de interacciones por segundo. Para un haz de densidad $\mathbf{n}$:

$$\text{Ritmo de interacción} = \mathbf{n}\mathbf{v}/\lambda \text{ [neutrones/cm}^3\text{/s]} = \Sigma \mathbf{n}\mathbf{v}$$

Por lo tanto

$$\lambda = 1/\Sigma = 1/n_0\sigma \quad [\text{cm}]$$

Entonces el camino libre medio para producir desplazamientos podrá expresarse como:

$$\lambda_d = 1/n_0\sigma_d.$$

En la Tabla II-1 se dan algunos valores de camino libre medio entre desplazamientos para algunos metales y para energías neutrónicas típicas²⁷.

Tabla II.1. Caminos libres medios para algunos metales

	E_n [MeV]	T_p [keV]	σ_d [barn]	n_0 [$\times 10^{23} \text{ cm}^{-3}$]	λ_d [cm]
Fe	1	64	3.4	0.64	4.6
	0.2	3.2	5.7		2.7
Cu	1	63	3.2	0.83	3.75
	0.2	3.1	5.5		2.2
Zr	1	86	2.46	0.43	9.4

Como se observa de los valores de esta tabla, la distancia entre choques es del orden de los centímetros, lo que indica que para una muestra de dimensiones normales el evento es poco probable, siendo muy posible que el neutrón atravesase la muestra sin haber interactuado. Sin embargo, en un medio como el núcleo de un reactor, con flujos neutrónicos del orden de $10^{16} - 10^{17} \text{ n/m}^2/\text{s}$ o mayores, los eventos se producen en forma homogénea en todo el volumen del material irradiado. En un RPR el flujo es similar pero cambia la energía de los neutrones por la termalización que sufren al atravesar el moderador. Sin embargo, como se desprende de los valores de la Tabla II.1, los caminos libres medio son del mismo orden, independiente de la energía de los neutrones.

II.2.3 La fenomenología de la cascada de colisiones

La formación del primer átomo chocado y desplazado (PKA, primary knock-on atom) es equivalente a la formación de un par intersticial-vacancia y constituye la estructura básica del daño (par de Frenkel). Si la energía cinética del PKA es del orden de las decenas de eV o más, puede seguir moviéndose por el cristal produciendo colisiones con otros átomos para formar átomos desplazados secundarios, terciarios etc., Figura. II-3.

Similar a la formación de pares de Frenkel, la totalidad de las colisiones se desarrolla en un tiempo muy corto (menos de 10^{-13}s), durante el cual el resto de la red puede considerarse en reposo (proceso atómico). Este evento se llama *cascada de colisiones*.

En la primera parte de la cascada de colisiones, cuando la energía del PKA es todavía alta, las colisiones individuales están relativamente lejos una de otra y el movimiento se puede expresar a través de colisiones binarias individuales.

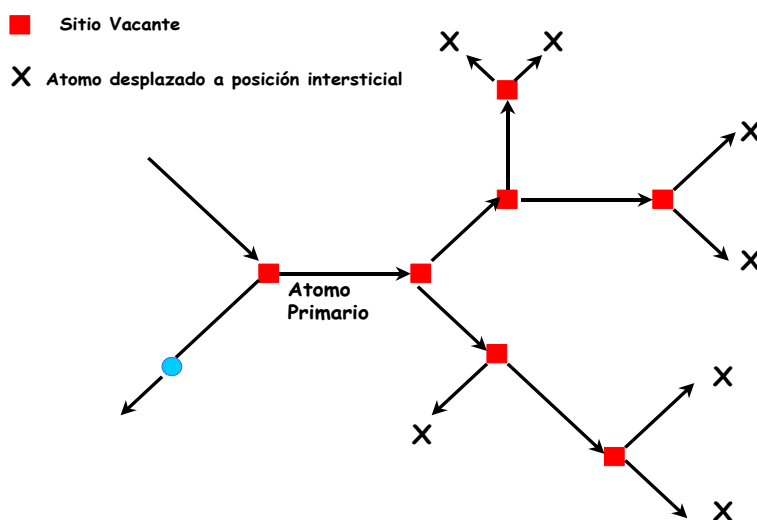


Figura. II.3. El comienzo de la cascada de colisiones

A medida que la energía de los átomos decrece la distancia entre colisiones también baja hasta que se hace comparable a las distancias interatómicas. Se vio anteriormente que el camino libre medio para la colisión neutrón-átomo es del orden de los centímetros, lo que da idea de la distribución de los puntos donde comienza a producirse el fenómeno definido como cascada. Dentro de la misma cascada, ya producido el primer átomo desplazado o átomo primario, habrá una frecuencia de eventos de colisiones átomo-átomo, para el que se puede definir también un camino libre medio entre colisiones.

Una considerable cantidad de energía (eV/átomo) se concentra en la parte final del camino del PKA en un intervalo de tiempo muy corto ($\approx 10^{-13} - 10^{-12}$ s) y en un volumen muy pequeño (10^4 átomos). Esto lleva a un desarreglo colectivo en esa región y a la formación al azar e irregular de aglomerados de vacancias rodeados por una capa de intersticiales que escapan de la región perturbada (llamada *zona desnuda* según Brinkman²⁸), Figura. II.4. Si la energía de la partícula incidente es muy grande, la cascada exhibe la tendencia a separarse en subcascadas.

En la modelización de la etapa final del camino del PKA, donde las colisiones ocurren en intervalos muy cortos y la cascada es entonces muy densa, se han descrito dos fases: una es la llamada pico de desplazamientos y la otra pico térmico, aunque ambas están íntimamente conectadas.

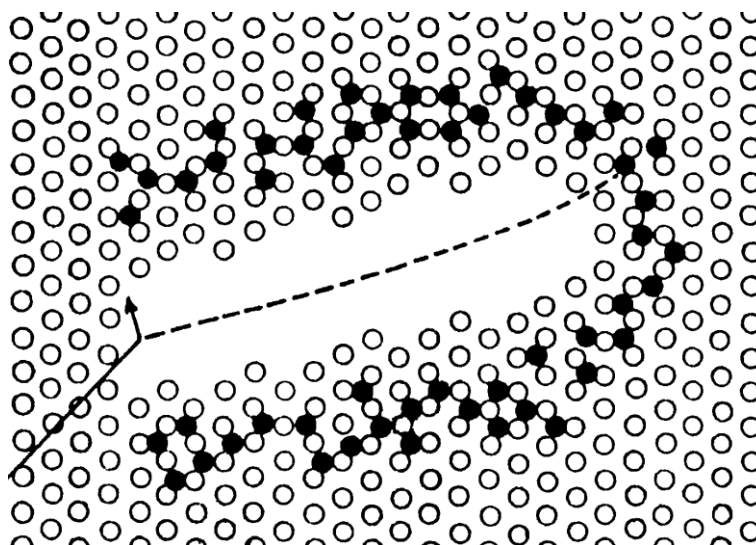


Figura II.4. Esquema de la zona desnuda según Brinkman

1) Pico de desplazamiento: En esta primera fase, que dura varias décimas de picosegundos, se produce un movimiento atómico dinámico colectivo; la reubicación ocurre al azar. Esta fase transitoria se denomina pico de desplazamiento (displacement spike). La distribución de energía entre los átomos durante las colisiones es afectada por la regularidad de su ordenamiento en el cristal. Esto puede producirse de dos maneras:

- a) Durante las colisiones los movimientos se focalizan (ver Figura. II.5) y la energía o masa atómica es transferida a grandes distancias (≈ 100 distancias atómicas) con pocas pérdidas. Esta focalización ocurre a bajas energías (≈ 100 eV).
- b) El segundo proceso es la canalización, durante la cual el átomo es transportado a través de túneles en la red, bordeados por planos densamente ocupados. La longitud de los trayectos canalizados es relativamente larga (la mayoría de la energía se pierde en colisiones inelásticas con los electrones). Estos conceptos fueron modificaciones al modelo de Brinkman, realizado por Seeger²⁹.

Ambos procesos pueden llevar a los átomos desplazados del centro de la zona dañada hasta ≈ 0.2 nm hacia afuera limitando la recombinación espontánea entre i y v. La configuración atómica en la fase del pico de desplazamiento es aparentemente inestable y vuelve al equilibrio durante la subsecuente evolución. También involucra recombinación instantánea y espontánea de pares de Frenkel próximos.

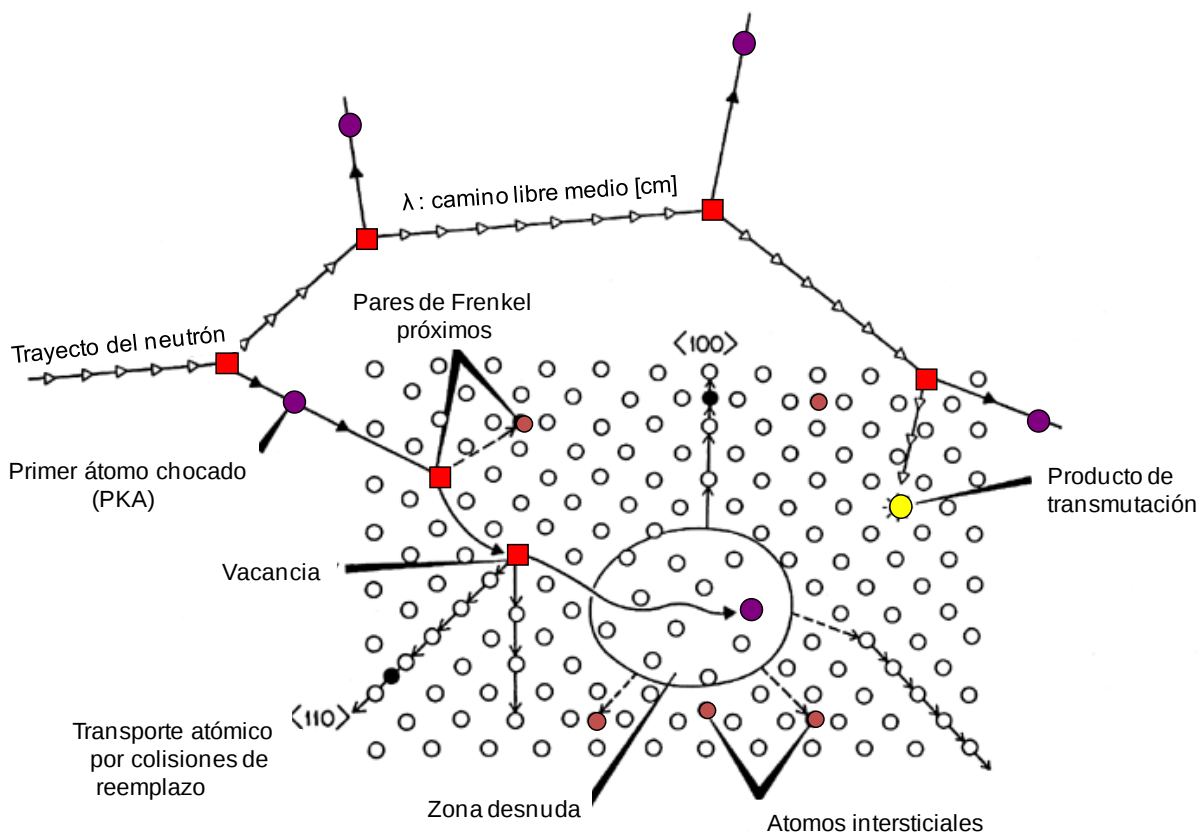


Figura II.5. Modelo de Seeger. Notar que la figura no conserva escalas. Esto se aprecia en la magnitud de las distancias entre colisiones neutrónicas comparada con las distancias interatómicas.

2) Pico térmico: Cuando la energía entre átomos durante las colisiones decrece debajo de la energía umbral para producir un desplazamiento, T_d , se disipa como un incremento de las vibraciones atómicas. El correspondiente pulso de calor se denomina pico térmico. La temperatura correspondiente al cambio local en la intensidad de las vibraciones atómicas de los átomos de la red puede alcanzar el punto de fusión después de cierto período de tiempo. Es gradualmente dispersada a través de colisiones con los electrones. Debido a la transferencia relativamente lenta de energía entre los componentes de los subsistemas de iones y electrones (la cual en primera aproximación es proporcional a la relación de masas entre el electrón y el ion), o sea la termalización, requiere un tiempo mayor de 10^{-11} s, que es el lapso de tiempo en el que ocurren varias vibraciones atómicas.

El posterior desarrollo en la cascada suele llamársele fase de relajación y sigue después que el pico de desplazamiento llega al equilibrio térmico y a la formación de una cuasi-distribución de defectos en la región dañada. En la fase final ocurre el colapso de la cascada, resultado de un cierto número de mecanismos, entre ellos el termotransporte (movimiento de vacancias contra el gradiente térmico de la periferia al

centro de la cascada) y el movimiento de intersticiales a lo largo de los gradientes de temperatura y concentración.

Entonces el desarrollo completo de la cascada de colisiones se puede separar esquemáticamente en varias etapas como se resume en la Tabla II-2.

Tabla II-2. Secuencia de eventos y tiempos característicos.

Evento	Tiempo (s)	Resultado
Colisiones binarias y transferencia de energía	$< 10^{-13}$	PKA
Desplazamiento colectivo de átomos, cascada de desplazamientos y recombinación espontánea	10^{-13}	Cascada de colisiones
Disipación de energía (pico térmico y colapso de la cascada)	10^{-11}	Pares de Frenkel estables y zonas desnudas
Interacciones entre defectos por movimientos térmicamente activados	10^{-8}	Recombinación y aglomerado de defectos, formación de defectos extendidos y cambios microestructurales.

Las primeras tres etapas ocurren a tiempos menores que 10^{-11} y están determinadas por los procesos de colisión. Luego aparece la formación de defectos: defectos aislados, pares de Frenkel, zonas desnudas, lo que se conoce como *estado de daño primario*.

El proceso subsiguiente ocurre a tiempos $> 10^{-8}$ s y está controlado por procesos de difusión; el movimiento térmicamente activado de defectos puntuales elementales da como resultado cambios en el estado microestructural del material irradiado.

II.2.4 El número de desplazamientos atómicos

Un parámetro básico que caracteriza a la cascada de colisiones es el número de átomos desplazados o el n° de pares de Frenkel formados en la disipación gradual de energía de la partícula proyectil. De los procesos antes descritos se destacan:

- 1) La formación del PKA como resultado de la colisión elástica entre el proyectil bombardeante que incide con una energía E y el átomo de la red; el PKA recibe una energía cinética T_p en el intervalo (T_d, T_{max}) .

- 2) La formación de múltiples átomos desplazados como resultado de las colisiones elásticas del PKA con energía inicial T_p y los átomos de la red.

El parámetro **DPA [desplazamiento por átomo]** es el número de átomos desplazados con respecto a los átomos que hay en una unidad de volumen. Para calcular el DPA, que es una medida de la exposición a la radiación y sensible al espectro, se utiliza un modelo para el cálculo de los átomos totales desplazados en una cascada. El **DPA** indica el número de veces que un átomo es sacado de su posición en la red. No es una medida del daño pero permite comparar entre varios experimentos en donde se irradia con partículas diferentes: neutrones, iones pesados, en reactores rápidos o térmicos...etc.).

Para este modelo se supone que el número de defectos formados es proporcional a la energía de daño, esto es, la energía consumida en la cascada. Es el modelo conocido como Kinchin - Pease³⁰. Es un modelo basado en numerosas simplificaciones: colisiones elásticas clásicas de esferas duras, existencia de un abrupto umbral T_d por debajo del cual no hay desplazamientos, se desprecian los efectos de la red y la recombinación i-v.

El modelo se puede resumir así: El PKA tiene una energía T_p luego de ser chocado por el neutrón. En promedio este átomo chocará con otro llevando cada uno la mitad de la energía original ($T_p/2$). En la etapa siguiente hay 4 átomos con energía $T_p/4$; en la etapa n habrá 2^n átomos con energías $T_p/2^n$. Cuando la energía transferida sea menor al doble de la energía mínima para producir un desplazamiento (T_d), la cascada finaliza. Es decir, el número de desplazamientos será:

$$\eta(T_p) = fT_p / 2T_d \quad [\text{Ec. II-1}]$$

donde f es un factor resultante de refinamientos posteriores del modelo involucrando el cálculo de una energía de daño y una estimación más realista del umbral T_d . Uno de ellos, el modelo de Norgett -Robinson-Torrens (NRT)³¹, es el recomendado como un estándar por la IAEA (Agencia Internacional de Energía Atómica). Los autores incluyen la pérdida de energía asociada a las colisiones inelásticas con los electrones y el valor anisotrópico de T_d para distintas direcciones cristalográficas. Esto permite una simulación por computadora de la cascada de colisiones y permite la comparación con varios experimentos de irradiación.

En el modelo NRT se considera que cuando la energía transferida al átomo primario es suficientemente alta, alcanza a ionizarlo. El átomo interactuará en forma coulombiana con los electrones del cristal y disipará energía por excitación electrónica y por ionización.

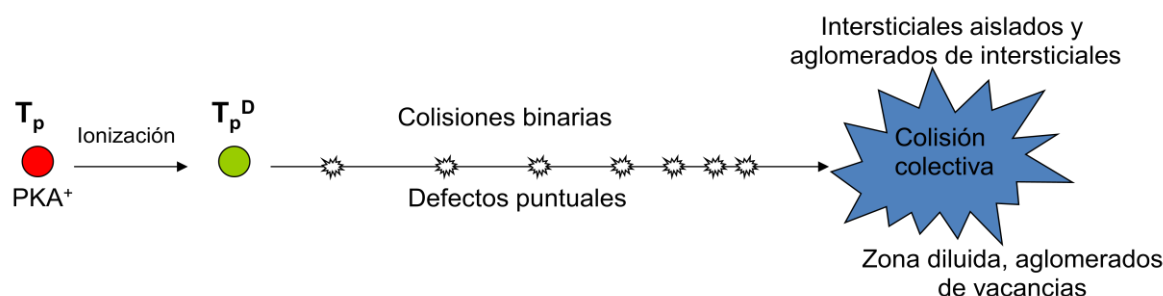


Figura II.6. Esquema de los procesos en una cascada

A medida que la energía del PKA va decayendo, son capturados electrones hasta que la carga efectiva del proyectil se anula. Finalmente la energía restante se disipa en colisiones elásticas con la red. Si bien este cambio es gradual, se ha intentado estimar un valor para esta energía de transición entre tipos de interacciones. Una de las estimaciones tiene en cuenta la energía de ionización de los átomos blanco, y se obtiene, para la mayoría de los metales que $T_{transición} \approx A$ [keV], donde A es la masa atómica del metal. Esta energía de transición puede asociarse la energía de daño T_p que es la resultante de restar a la energía del primario la pérdida en la excitación electrónica Figura II-6.

El resultado de la [Ec. II-1] es un límite máximo que corresponde a irradiaciones a 0°K, donde no ocurren reagrupamientos ni recombinaciones de vacancias e intersticiales térmicamente activados.

Para determinar el DPA, usando el modelo de NRT, es necesario conocer el espectro, el flujo y fluencia neutrónicos; además, la sección eficaz de desplazamiento efectiva $\sigma_d(E)$, que da la probabilidad de desplazamiento de un átomo del blanco por su colisión con el neutrón incidente de energía E ; en general, incluye las contribuciones de varios procesos de dispersión, (n,n) , (n,n') , $(n,2n)$, etc. Este valor ha sido tabulado, [ANSI/ASTM E 693-79].

El avance en el conocimiento de los procesos que ocurren cuando se irradia con neutrones ha sido en parte debido a que el daño en materiales modelo ha sido estudiado usando dinámica molecular (MD) y métodos de cinética de Monte Carlo³². Basado en estos resultados es ahora comúnmente aceptado que las predicciones de daño basados en el DPA y el NRT no son totalmente adecuadas cuando hay grandes variaciones en los espectros neutrónicos. Esto se debe a que los modelos son aproximaciones más o menos realistas pero que no contemplan todos los posibles procesos que tienen lugar cuando se irradia. En particular, además del número de átomos desplazados importa conocer su distribución, lo que es fuertemente dependiente de la energía neutrónica y del flujo neutrónico, o sea en qué intervalo de tiempo fue entregada esa energía.

II.2.5 Distribución espacial del daño neutrónico

En la Figura II-7 se esquematiza en forma idealizada cómo se puede representar en daño neutrónico en un componente, cuando la energía de los neutrones es suficiente como para desplazar átomos de las redes. Se puede inferir que a flujos neutrónicos bajos

o a tiempos cortos de irradiación, las cascadas producidas pueden considerarse fenómenos dispersos, como se observa en la Figura II.7. Pero a medida que una irradiación se prolonga las cascadas pueden superponerse o influenciarse una con otra, variando entonces el comportamiento del material irradiado.

Siguiendo el modelo de Seeger, en cada colisión colectiva se generan aglomerados de vacancias; éstos son comprimidos hasta formar discos que son transformados luego en lazos de dislocaciones. Se puede demostrar que cuando un aglomerado tiene un número suficiente de vacancias, un lazo de dislocaciones tiene la menor energía de formación. No en todos los materiales se produce este colapso del aglomerado. En muchos materiales de estructura cúbica como el hierro estos aglomerados quedan confinados como burbujas o, en ciertos casos, en los llamados voids, o burbujas llenas de gas (en general He, como producto de transmutación).

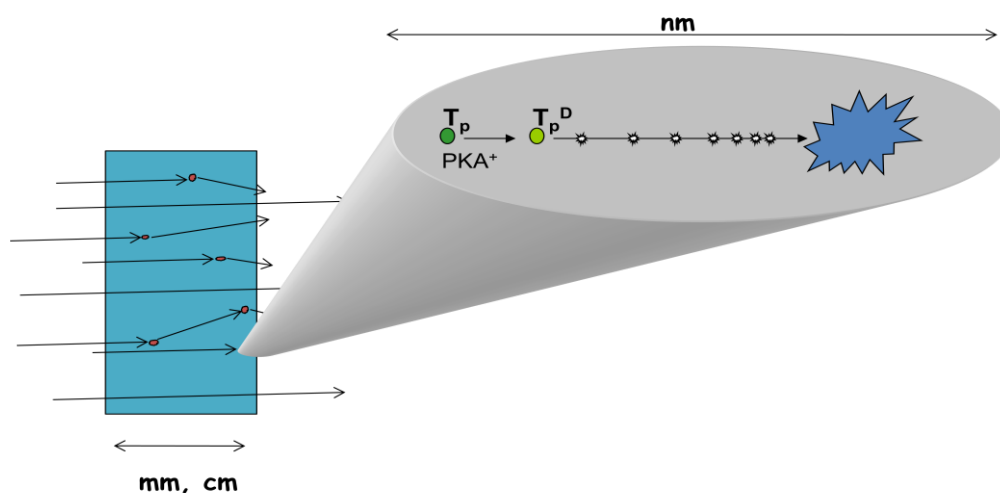


Figura II.7. Esquema de la distribución del daño en un material irradiado

Si los intersticiales están en condición de agruparse tomarán la configuración de mínima energía en la forma de un disco de un átomo de espesor, situado entre dos planos compactos adyacentes.

A diferencia de los lazos de vacancias, este tipo de proceso con los intersticiales requiere cierta activación térmica, por lo que será factible después de cierto tiempo, cuando los procesos de difusión hayan comenzado a modificar la estructura inicial del daño. Sin embargo, luego de algunas simulaciones hechas con dinámica molecular, existe alguna evidencia de la formación atómica de cierto tipo de aglomerados de intersticiales en los primeros instantes de vida de la cascada.^{38, 33, 34}

Si los lazos de dislocaciones son suficientemente grandes ($\geq 20 \text{ \AA}$), pueden ser resueltos por microscopía electrónica de transmisión y, además, su tipo (vacancia/intersticial) puede determinarse por técnicas de contraste. Sin embargo los aglomerados resultantes del evento de colisión (aglomerados atómicos) no suelen tener tamaños visibles por TEM^{35, 36}.

Procesos posteriores de difusión permiten el crecimiento de los lazos por la llegada de vacancias e intersticiales que los toman como sumideros preferenciales, estos últimos son mecanismos térmicamente activados que influirán decisivamente en la modificación de alguna de las propiedades de los materiales irradiados. Son los que se definen como SMD o UMD (defectos de la matriz estables e inestables).

II.3 Recuperación del daño

Como resultado de la irradiación con neutrones los defectos creados en los metales pueden catalogarse simplemente en defectos puntuales y aglomerados de defectos; se ha eliminado aquí toda referencia a posibles transmutaciones, cambios de fase en aleaciones y cualquier otro fenómeno derivado.

Ya se mencionó que el número y distribución espacial de defectos puede diferir bastante de lo que puede calcularse meramente con una teoría de desplazamientos. Y, además de esto, por encima de 0 K, la agitación térmica provocará una subsiguiente modificación que dependerá, fundamentalmente, de la temperatura y del tiempo: los defectos se moverán o modificarán de modo de disminuir la concentración por encima del equilibrio termodinámico.

Muchos procesos tienen lugar a temperaturas bien definidas, lo que inmediatamente lleva a considerar que si se conocen estas temperaturas, es posible identificar los procesos que están ocurriendo, a través de algún cálculo de migración.

El valor de energía para mover un defecto es la energía libre de activación para la migración, ΔG_m . Esta es suministrada por las fluctuaciones al azar en el campo local, el cual posee una densidad de energía vibracional. Si esta energía está distribuida según una distribución de Maxwell-Boltzman, la probabilidad de que se alcance el exceso de energía necesario será proporcional a $\exp(-\Delta G_m/kT)$.

De este modo se han identificado los procesos que tienen lugar a cada temperatura, de modo que en cada material que está siendo irradiado se están produciendo defectos pero, dependiendo de la temperatura muchos estarán desapareciendo en diferentes sumideros o por recombinación.

Cada propiedad es más sensible a un tipo de defecto que a otro, y, como cada radiación produce distintos defectos, las propiedades lo reflejan; pero lo interesante es que, para cada material, se puede decir que los rangos de temperaturas (o etapas) en donde la recuperación se produce coinciden aproximadamente, cualquiera sea la propiedad y cualquiera sea la radiación usada.

En la Figura II.8 se observan las recuperaciones isócronas de la resistividad eléctrica, después que especímenes de Cu fueron irradiados con fragmentos de fisión y con una dosis neutrónica de $2 \cdot 10^{18}$ n/cm² para $E \geq 1$ MeV; las irradiaciones fueron realizadas a 4,5 K. La coincidencia de los picos en las primeras etapas es un ejemplo de lo expresado en el párrafo anterior, aunque la importancia de cada etapa puede variar.

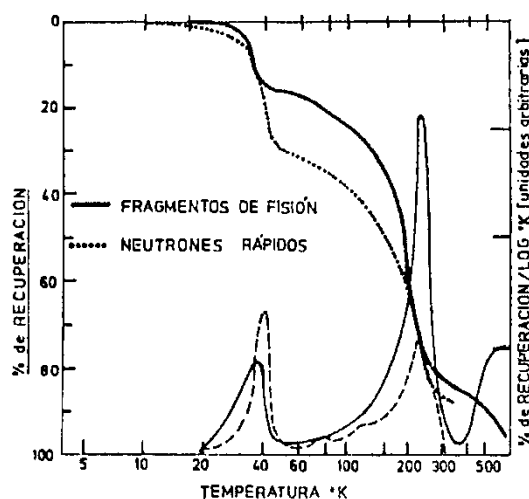


Figura II-8. Recuperación de la resistividad eléctrica de Cu irradiado con neutrones y fragmentos de fisión³⁷

Durante muchos años se trabajó en la identificación de los defectos responsables de cada etapa de recuperación. Algunas etapas tienen una interpretación prácticamente inequívoca pero otras han sido motivo de controversias³⁸.

Pero, en general, de numerosos estudios en diversos metales y, en particular, los estudios de la recuperación del endurecimiento por irradiación dan como resultado que las etapas en donde se produce el mayor porcentaje de recuperación de la estructura de defectos creada por irradiación que influyen en el endurecimiento, son las identificadas como IV y V en la literatura:

Etapa IV: $[(0,22 - 0,33)T/T_m]$. Aquí parece jugar el rol principal el crecimiento de los aglomerados de vacancias. En general es un pico estrecho debido a la discreta energía de migración de vacancias. Es una etapa que es más evidente cuando se irradia con neutrones que con electrones.

Etapa V: Es una etapa amplia en la que parecen ocurrir varios procesos: disolución de lazos de dislocaciones y de aglomerados de defectos en general; al final de la etapa V todo el daño es removido y la energía de activación de esta etapa está próxima a la de autodifusión. Es una etapa detectable principalmente con recuperaciones de la tensión de fluencia, puesto que los aglomerados de defectos influyen en el endurecimiento³⁹.

Según estas consideraciones, en el caso de los aceros, la etapa V comienza alrededor de los 250 °C. Esto se corrobora con experimentos realizados en los Programas Coordinados de Investigación de la IAEA⁴⁰, en donde se analizaron aceros para recipientes a presión irradiados a 290°C y a 250 °C. Entre ellos el JF A508 cl3 usado en esta Tesis. Tanto los ensayos de tenacidad a la fractura como los corrimientos de la temperatura de transición dúctil frágil mostraron una dependencia marcada entre

estas dos temperaturas de los parámetros medidos, sugiriendo que el decrecimiento de la temperatura de irradiación muestra un incremento de la sensibilidad a la radiación neutrónica. Esto se observa en la Figura II.9 para distintos aceros con distintas relaciones químicas (CR) usadas para caracterizarlos.

Además, cálculos basados en la teoría cinética⁴¹ han demostrado que para temperaturas de irradiación entre 250-300 °C la cantidad de daño en la matriz puede ser muy sensible al flujo neutrónico.

El endurecimiento de los aceros ferríticos por proceso de daño por radiación ocurre por debajo de los 400°C, dependiendo esta temperatura de la composición del acero; el endurecimiento es causado por las vacancias e intersticiales que produce la irradiación y por el precipitado de nuevas fases. En general, debajo de 0,3 Tm (~ 250°C), se forman lazos de dislocaciones provenientes del aglomerado de vacancias e intersticiales que incrementan la tensión de fluencia, produciendo endurecimiento y fragilización. Entre 0,3 y 0,4 Tm (250-450°C) los lazos de dislocaciones se hacen inestables y crecen incorporándose a la red de dislocaciones y la difusión es suficiente para la formación de precipitados.

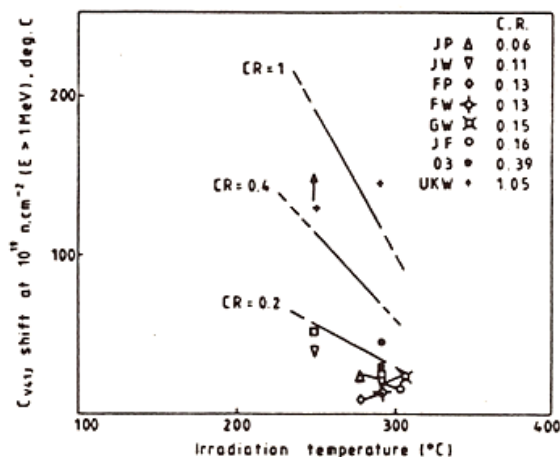


Figura II.9. Variación con la temperatura de irradiación de parámetros fractomecánicos de aceros para recipientes a presión.

CAPÍTULO III

TÉCNICAS EXPERIMENTALES

III.1.1 El reactor RA1

El reactor RA-1 de la CNEA es un reactor del tipo piscina. Está ubicado en el Centro Atómico Constituyentes y se inauguró en 1958, siendo el primer reactor nuclear argentino y primero en operar en Latinoamérica. Es un reactor de los llamados experimentales, concebido entre otras aplicaciones para la producción de radioisótopos y utilizado actualmente para realizar experimentos de distinto tipo, entre ellos los estudios de comportamiento bajo irradiación de distintos materiales. Figura III.1 y III.2.

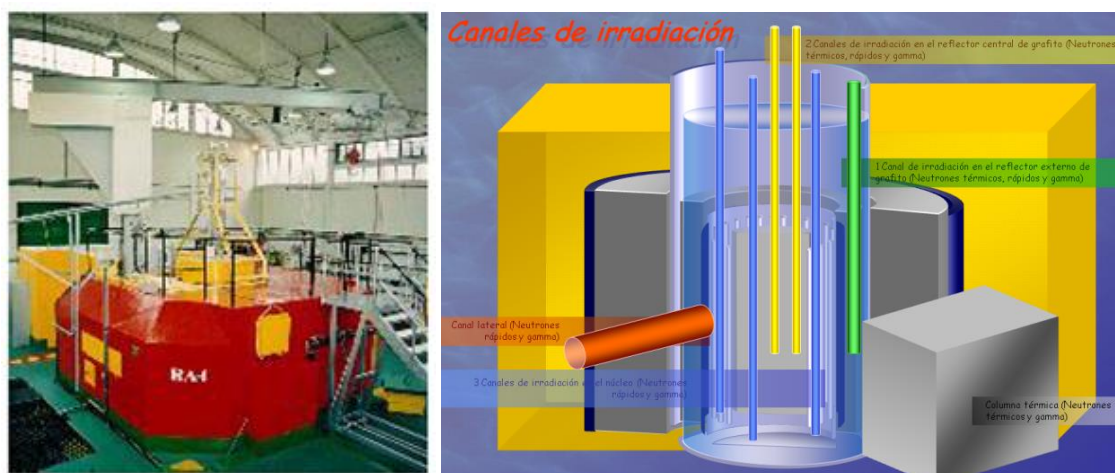


Figura III.1. El reactor RA1

El reactor posee 40 kW de potencia térmica, con núcleo de uranio enriquecido al 20% con ^{235}U , reflejado por grafito con moderador y refrigerante de agua liviana desmineralizada. Su flujo neutrónico promedio es de $\sim 10^{16}$ neutrones $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$; como es un reactor de bajo flujo tiene la ventaja de poseer menor ruido térmico y menos vibraciones mecánicas; es más fácil el control de la temperatura y la estimación del tiempo de irradiación; el producto del flujo neutrónico por el tiempo de irradiación constituye la llamada dosis o fluencia neutrónica.

En el centro del núcleo se encuentra la llamada columna central para irradiar muestras que son introducidas y extraídas tanto manualmente como en forma neumática (*Figura III.3*).

Existe además una posición de irradiación rodeada de elementos combustibles en el centro de la grilla (marcada en rojo en la *Figura III.3*) en donde puede ubicarse un dispositivo para irradiar bajo condiciones controladas de temperatura y flujo neutrónico.

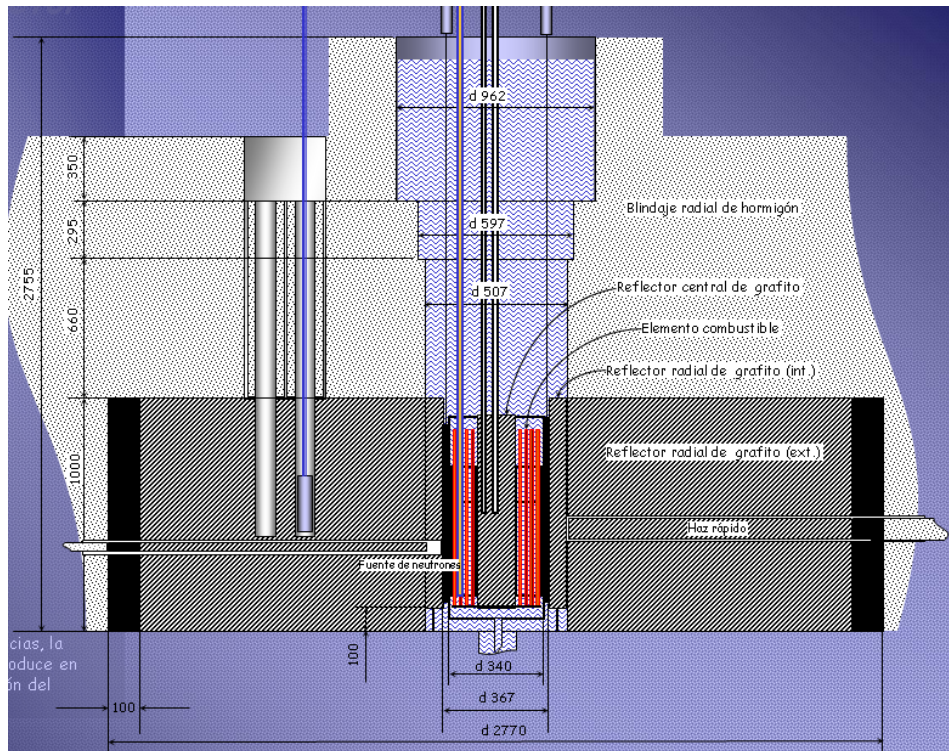


Figura III.2. El reactor RA1. Dimensiones.

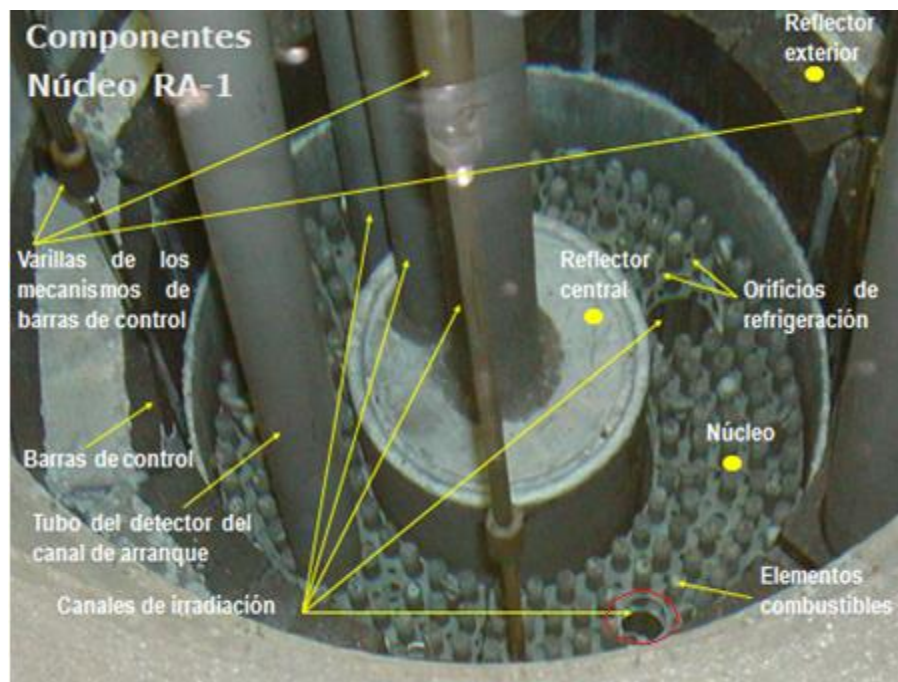


Figura III.3. Núcleo del reactor RA1

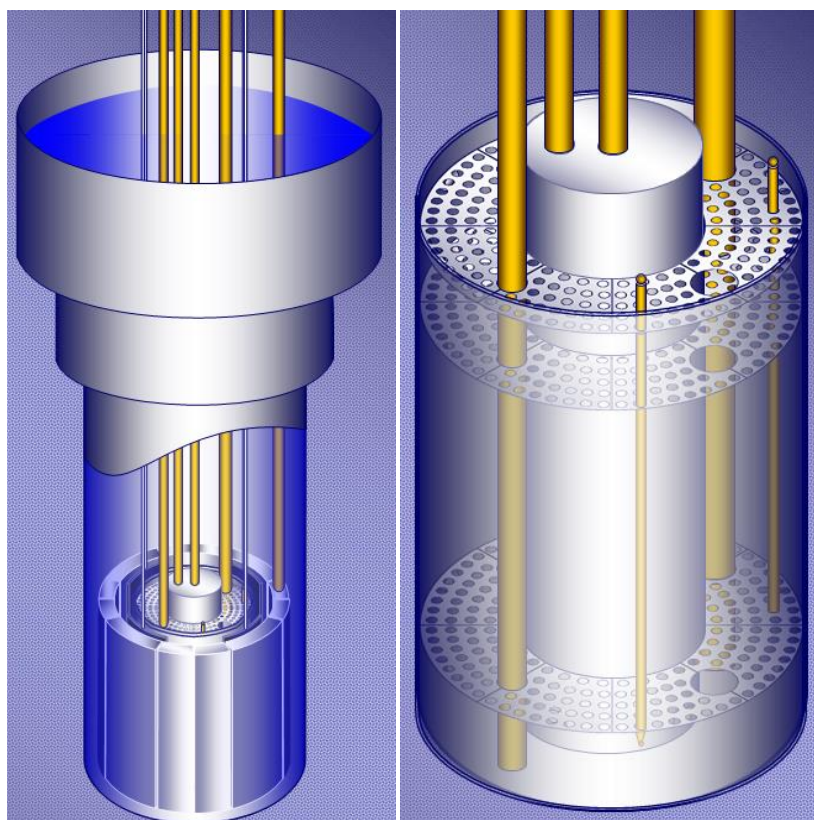


Figura III.4. Configuración del núcleo y canales de irradiación

En este último lugar es que se instaló un dispositivo para irradiar y en donde se realizaron las irradiaciones de las probetas que se ensayaron mecánicamente y de donde luego se extrajo el material para esta tesis. En la Tabla III.1 se indican los flujos medidos en el lugar de irradiación para los diferentes intervalos de energías neutrónicas.

Tabla III.1. Espectro neutrónico del reactor RA1

Energía neutrónica [MeV]	Flujo neutrónico [$\text{n m}^{-2} \text{s}^{-1}$]
0 – 0.1	2.25×10^{16}
0.1 - 1	3.318×10^{15}
1 – 17.33	3.715×10^{15}

III.1.2 El factor de avance y el plan de irradiación

Como se especificó en el Capítulo II el parámetro DPA [desplazamiento por átomo] es una medida de la exposición a la radiación sensible al espectro, es decir a la energía de los neutrones que impactan en la muestra; para calcularlo se utilizan modelos para determinar el número de átomos totales desplazados en una cascada de colisiones. Desde el punto de vista microestructural, no ha podido justificarse el uso de DPA como parámetro del daño, pero permite comparar entre varios experimentos en donde se irradia con partículas diferentes o con diferentes espectros neutrónicos.

Así, muchas propiedades de los materiales irradiados se miden en función de este parámetro o, en otros casos, en función de la fluencia neutrónica. La diferencia entre unidades de exposición a los neutrones y parámetros de correlación del daño debe siempre tenerse presente. Una propiedad como la fragilización de los aceros depende en parte de la formación o morfología de los precipitados, por lo tanto depende fuertemente del tiempo, dado que la difusión de especies juega un papel importante en la precipitación; entonces ni los DPA, ni la fluencia total recibida pueden dar cuenta por sí solas del comportamiento bajo irradiación.

En las irradiaciones llevadas a cabo en instalaciones de investigación, donde los flujos neutrónicos son muy intensos, se obtienen resultados diferentes de los obtenidos en las irradiaciones llevadas a cabo en posiciones de vigilancia de centrales nucleares PWR.

Además todos los datos a lo largo de las irradiaciones en reactores experimentales en el mundo tienen la incerteza de los flujos instantáneos, los espectros neutrónicos y la temperatura en cada lugar de irradiación.

Para independizarse de estos parámetros, para esta Tesis se propuso irradiar en un mismo lugar del reactor RA1 (igual espectro neutrónico) y a una temperatura similar a la de operación de las centrales, dos conjuntos de 8 probetas del acero JF a iguales dosis integradas pero con distintos tiempos de irradiación. Es decir distintos factores de avance (FA) para los mismos DPA. El factor de avance es la relación entre la densidad de flujo neutrónico instantáneo en la posición del espécimen de vigilancia y la densidad de flujo neutrónico máxima calculada en la superficie interna de la pared del recipiente y da una medida de la aceleración de la irradiación:

$$FA = \Phi_{VIGILANCIA} (E > 1 \text{ MeV}) / \Phi_{RPR} (E > 1 \text{ MeV}) \quad [\text{Ec. III.1}]$$

Los distintos factores de avance se lograron irradiando a potencia máxima e irradiando bajo las mismas estrictas condiciones pero a menor potencia. Un conjunto de probetas sin irradiar sirvió como referencia. Cabe destacar que muy pocas instalaciones en el mundo pueden funcionar a potencias menores que las máximas por lo que el experimento es único en su tipo y el reactor utilizado posee las características óptimas para realizar este experimento.

El daño en la pared del recipiente a presión de las Centrales Nucleares es producido en la mayoría de los casos por un flujo no muy intenso de neutrones rápidos, luego de un largo periodo de irradiación. Cuando se habla de un flujo poco intenso significa que es bajo respecto del valor del flujo rápido que existe en el núcleo de un reactor. Por ejemplo, el flujo rápido en la pared interna del recipiente de la CNA-I es $\Phi_{PI}(E>1\text{MeV})=1.19 \times 10^{14} \text{ n m}^{-2} \text{ seg}^{-1}$ y el flujo promedio en el núcleo de un reactor de potencia (que depende de la geometría del reactor) es de $\Phi (E > 1 \text{ MeV}) \sim 3 \times 10^{17} \text{ n m}^{-2} \text{ seg}^{-1}$; el flujo en una instalación MTR (Materials Testing Reactor) es por lo general 2-3 órdenes de magnitud mayor que en la pared interna de un RPR. En este sentido se pueden recordar las irradiaciones suplementarias para el material de CNA-1 que se ejecutaron en

el reactor alemán VAK, donde el factor de avance fue $FA = \Phi_{VAK}(E>1\text{MeV})/\Phi_{PI}(E>1\text{MeV})=183$.

Aun así hay que tener en cuenta que en la Central CNA-I el flujo rápido en la pared interna (PI) del recipiente a presión es alto comparado con el de RPR de centrales más modernas y la razón es que los PWR contruidos a principios de los años 70 tenían la pared más cerca del núcleo. A medida que la producción de aceros de recipientes a presión se modernizó, aumentó la potencia de las centrales y aumentó el espacio núcleo-RPR, con lo que el flujo en el RPR disminuyó.

Se estima⁴² que el flujo de neutrones rápidos en la pared interna del recipiente a presión de la Central CNA-II es de $\Phi_{PI}(E>1\text{MeV})=2\times 10^{13} \text{ n m}^{-2} \text{ seg}^{-1}$. Se ha estimado también que para 40 años calendario de vida útil de diseño (VUD) se llegará a una fluencia de $\approx 2.5\times 10^{22} \text{ n m}^{-2}$.

El plan de irradiación (anteriores y los de esta tesis) se muestra en la Tabla III.2, donde se indica la duración neta en horas que se irradió pero que, dada la disponibilidad del reactor, el tiempo real es mayor.

Tabla III.2. Plan de irradiación

Conjuntos irradiados	Flujo [n/m²s] [E> 1 MeV]	Fluencia [n/m²]	FA	Duración [horas]	Temp. [°C]
Primer conjunto	$3,7\times 10^{15}$	$6,58\times 10^{21}$	186	492	275
Segundo conjunto	$1,86 \times 10^{15}$	$6,58\times 10^{21}$	93	984	275
Tercer conjunto (irradiación actual)	$0,9\times 10^{15}$	$6,58\times 10^{21}$	46	1968	275

III.1.3 Descripción experimental del dispositivo de irradiación

Previo a la irradiación se realizó el diseño y construcción de un nuevo dispositivo para irradiar a temperatura en el núcleo del reactor RA1. Es de considerar que los dispositivos y elementos de control sufren el deterioro producido por la radiación y, para los planes de esta tesis, el largo tiempo necesario para la tercera irradiación impuso la necesidad de construir otro dispositivo.

El dispositivo para irradiar anterior constaba de un tubo de Aluminio 6063 con sección circular, de 3 metros de largo, que se coloca en el canal de irradiaciones del reactor RA1. Concéntrico al tubo de aluminio se colocó un horno por efecto Joule con un elemento calefactor de Ni Cr de forma tal que la potencia máxima por unidad de superficie fue de 2.3 W/cm^2 . El mismo se ubicó de forma que coincidiera con la zona de

máximo flujo del núcleo del reactor a la altura del nivel medio de los elementos combustibles.

En el nuevo diseño se optó por diseñar el horno en una sola pieza que se prolonga hasta la boca del dispositivo conformando una estructura monolítica sin uniones de ningún tipo. Para lograr esto, se partió de un tubo de aluminio 6063 de diámetro exterior 38,1 mm, espesor de pared 4,5 mm y largo 3 metros. Un extremo se cilindró a diámetro 32,6 mm y largo 340 mm y se practicaron dos hélices de 300 mm de longitud donde se bobina el cable calefactor. Realizada esta operación se le proyecta en esta zona aluminio fundido con el fin de cubrir todo el bobinado. Por último se mecaniza a diámetro 36 mm, quedando un gap de 1 mm con la pared del dispositivo. De esta manera se logra un horno de baja inercia. Ver figura III.5 y III.6.

Todo el dispositivo es refrigerado exteriormente por el agua del primario del reactor RA-1. La Figura III.5 muestra en detalle el tubo exterior y el conjunto horno–prolongador del dispositivo anterior. Todo este conjunto está compuesto por tres piezas, a saber: horno propiamente dicho, prolongador y posicionador.

En el interior se coloca la cápsula portaprobetas con 8 probetas del material JF. De esta forma al instalarse en el reactor se reproduce, en forma controlada mediante su horno y varias termocuplas, las condiciones de temperatura en la pared interna del recipiente a presión. Estas condiciones se reprodujeron exactamente en el nuevo dispositivo. El elemento calefactor es de tipo compacto, de NiCr con aislante de MgO y vaina de acero inoxidable AISI 316 de 1.6 mm de diámetro.



Figura III.5. Tubo exterior y conjunto horno- prolongador. Se observa el calefactor de NiCr con aislante de MgO y vaina de acero inoxidable AISI 316 de $\Phi=1.6$ mm.

El sensado de temperatura se efectúa con termocuplas compactas de 0.8mm de diámetro de Chromel-Alumel, con aislante de MgO envainada en AISI 316. Los calefactores se prolongan hacia el exterior con conductores de Cu, con MgO como aislante y envainados en AISI 316; para la salida al exterior se utilizan conectores pasantes para calefactores. En la Tabla III.3 se muestran las especificaciones en forma detallada.

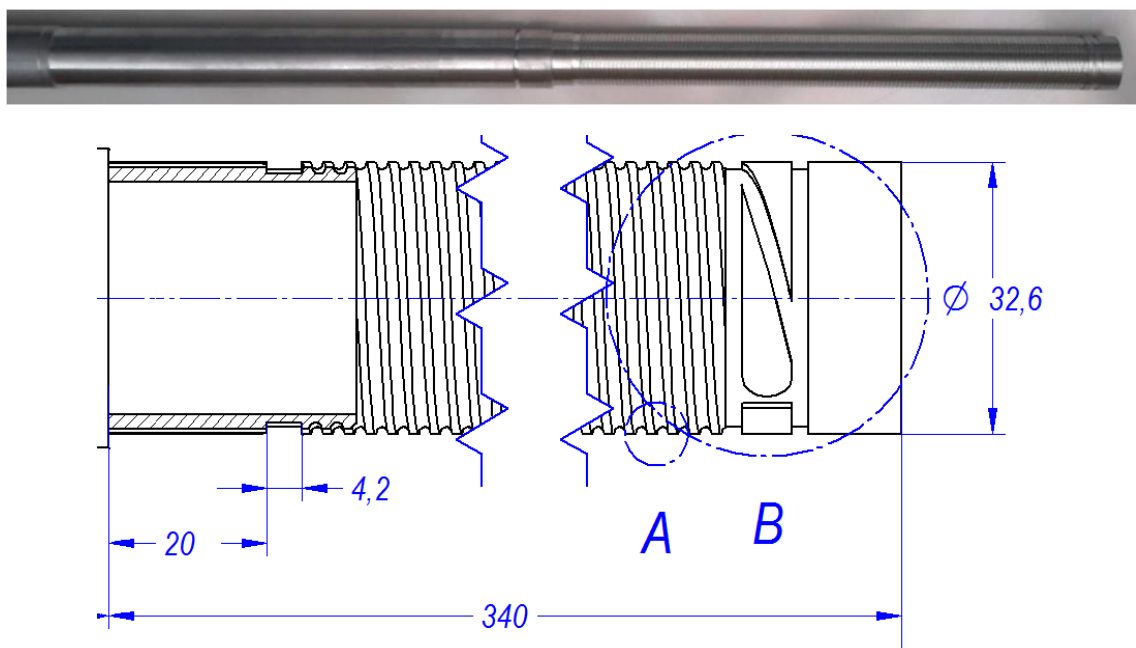


Figura III.6. Nuevo diseño del horno mostrando el alojamiento para el bobinado

Tabla III.3. Características generales del horno calefactor

Longitud efectiva del horno	30 cm
Longitud de una espira calefactora	10.45 cm
Resistencia del calefactor	5.5 ohm/m
Resistencia total	60.5 ohm
Potencia máxima: V^2/R	800 Watt
Corriente máxima admitida	3,6 A
Superficie de disipación	348,7 cm ²
Potencia máxima por unidad de superficie	2.3 W/cm ²

En la Figura III.7 se destacan las bridas que aseguran la estanqueidad del sistema y los pasantes de calefactores y termocuplas de la parte superior del dispositivo⁴³.

La transferencia térmica entre la pared del dispositivo y el horno se puede modificar con la inyección de gases de diferente conductividad. El centrado se realiza a través de patines en su parte inferior.

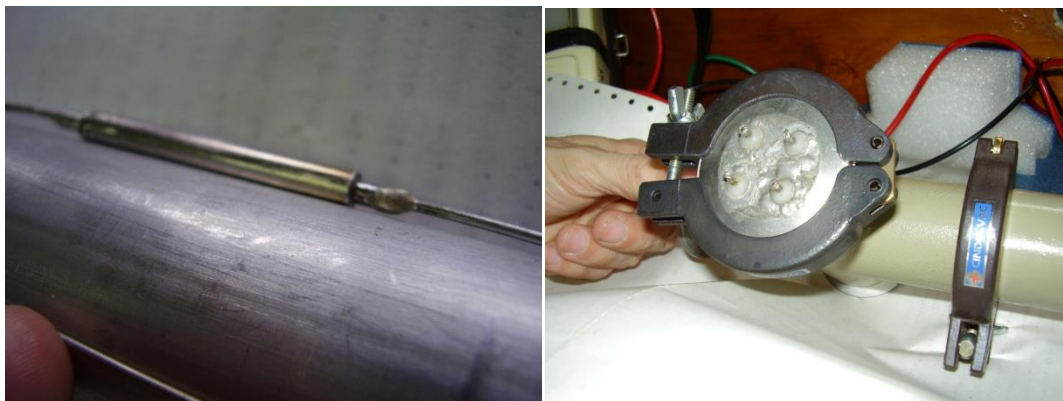


Figura III.7. Unión calefactor-conductor y conectores de señales

El control de temperatura se logra mediante un regulador diferencial con acción proporcional e integral que regula por medio de tren de onda. Las señales de las termocuplas llegan a través de cable compensado al panel de control que se encuentra en una sala anexa al reactor. El gradiente de temperatura sobre las probetas es inferior a 1 °C. En la Figura III.11 se muestra un esquema de la instalación con los circuitos de control de temperatura y de inyección de gases de transferencia.

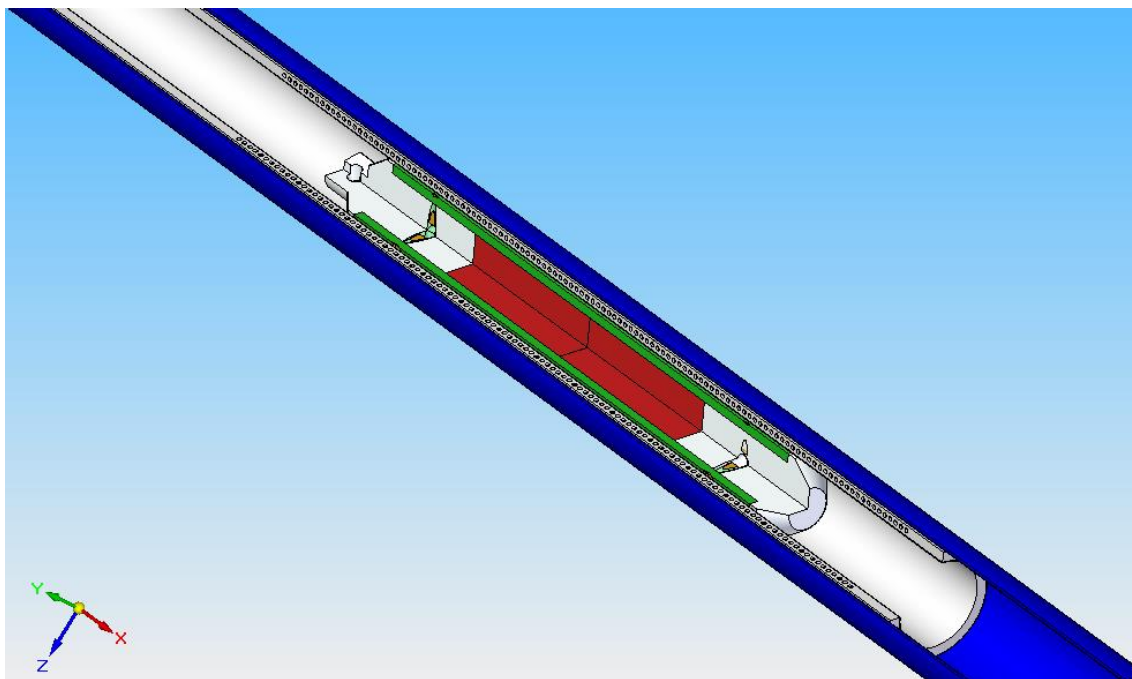


Figura III.8. Nuevo portaprobetas en posición de irradiación centradas en el horno

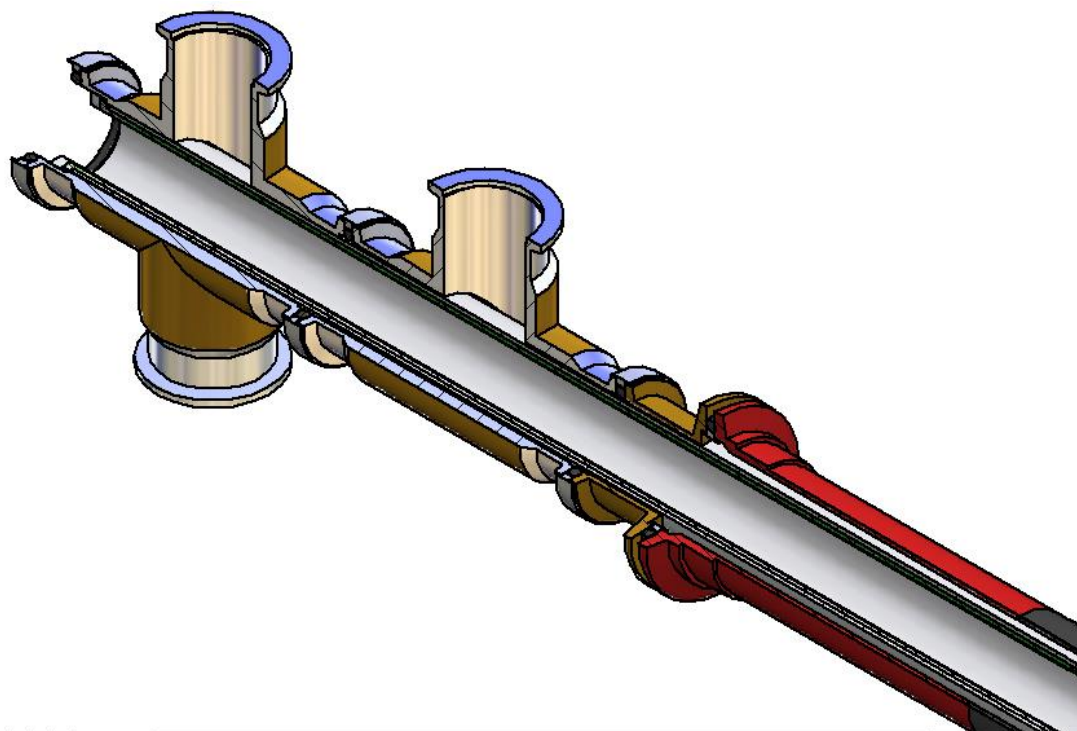


Figura III.9. Extremo superior del dispositivo de irradiación con las salidas para las termocuplas, conductores para el horno y la boca de ingreso del portaprobetas

Para las pruebas de estanqueidad se utilizó un sistema vacío que consiste en un conjunto de bomba mecánica y bomba difusora con las cuales se realizaron las pruebas de estanqueidad de las tapas, en los tubos y finalmente en el dispositivo completo, comprobando una aceptable tasa de fuga del orden de $5,7 \cdot 10^{-7} \text{ [l s}^{-1}\text{]}$. Las irradiaciones se realizaron en atmósfera de gases inertes a una presión de 0.12MPa; el tipo de gas utilizado (Ar, N o He) permite modificar la temperatura máxima a alcanzar. Se comprobó que la aislación eléctrica entre vaina y calefactor fuera mayor a 1 MΩ.



Figura III.10. Conjunto horno-prolongador actual desacoplado del posicionador

III.1.4 Cápsula y probetas

Como material de estudio se seleccionó un acero similar al que se utilizó en la fabricación del RPR de Atucha II, el cual esta nombrado como un JF. El material JF, al igual que el JRQ, es el utilizado en los proyectos coordinados de investigación de la Organización Internacional de la Energía Atómica, OIEA, sobre fragilización de aceros

de recipientes a presión. En el informe del Japan Steel Works SA MuroranPlant se lo especifica según el código ASME como un acero forjado SA-508 clase 3. En la Tabla III.4 se especifica la composición química. El tratamiento térmico que se le realizó a este material en la acería anteriormente mencionada consiste en un normalizado, templado y revenido a una temperatura de 650 °C.

La fragilización por irradiación neutrónica es muy sensible a la composición química, siendo la presencia del cobre y del fósforo la más perjudicial. El informe CNAII-PSAR⁴⁴ del año 1981 especifica concentraciones por debajo de 0,10 % de Cu y de 0,012 % para el P para el material del recipiente y sus soldaduras.

En cada cápsula de irradiación se ubican 8 probetas Charpy con entalla en V, todas orientadas en la dirección T-L. Es decir, con la entalla en la dirección del trabajado mecánico. En esa dirección se absorben energías menores en el ensayo de impacto y se favorece la determinación de la temperatura de transición dúctil-frágil. También se incorporaron probetas para ensayar con Small Punch. Este set consta de 75 probetas en forma de disco de 10 mm de diámetro y 0,5 mm de espesor. Su ubicación se puede apreciar en la figura III.17.

El número de probetas para cada caso depende del espacio dentro del dispositivo para que todas reciban la misma dosis de irradiación, teniendo en cuenta la distribución cosenoidal del flujo neutrónico con respecto al centro de los elementos combustibles.

Es bien conocido que en el proceso de fabricación (conformado) del material puede introducirse anisotropía en el material, es decir que sus propiedades mecánicas dependan de la orientación en que son extraídas las probetas. Este efecto de la orientación es especialmente importante en la determinación de la tenacidad, puesto que una probeta orientada en la dirección de la laminación puede comportarse distinto a otra orientada en la dirección transversal.

Las normas ASTM definen una nomenclatura para la orientación de las probetas de forma que la primera letra designa la dirección normal al plano de fractura y la segunda letra define la dirección de propagación de la fractura en la probeta Charpy, Figura III.12 y III.13.

En chapas, generalmente se ensayan probetas orientadas de forma que la fractura propague en la dirección de laminación TL puesto que es la orientación más débil y así se obtienen valores de tenacidad de fractura conservativos.

En el caso de aceros ferríticos de recipientes el efecto de la orientación es muy claro, siendo los valores de tenacidad de fractura, y de impacto Charpy en la orientación TL los menores⁴⁵.

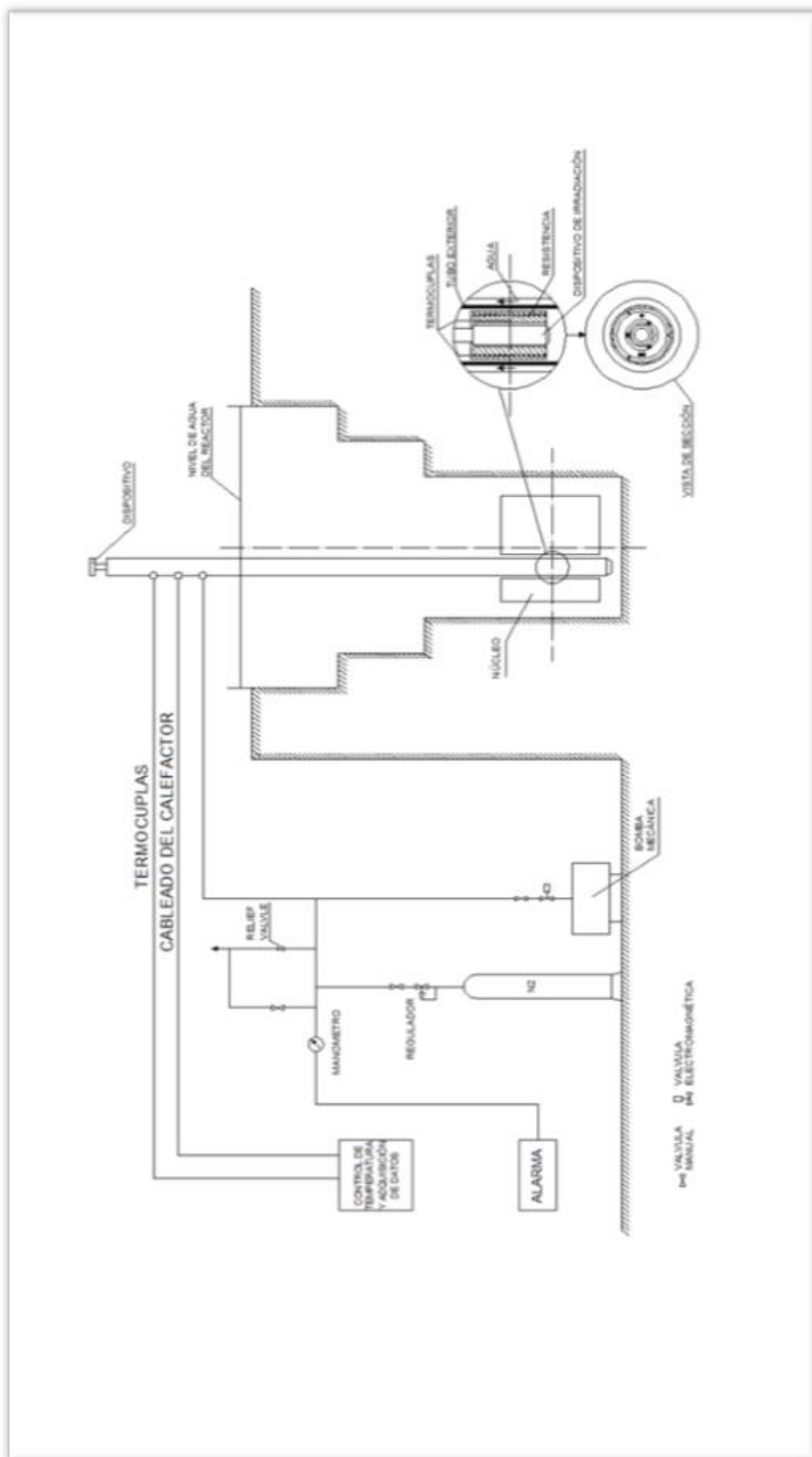


Figura III.11. Tanque del reactor RA1 con la facilidad y los controles de las irradiaciones

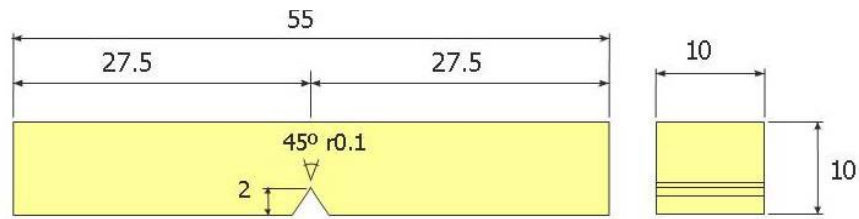


Figura III.12. Probeta Charpy-V, CVN, según norma ASTM A370

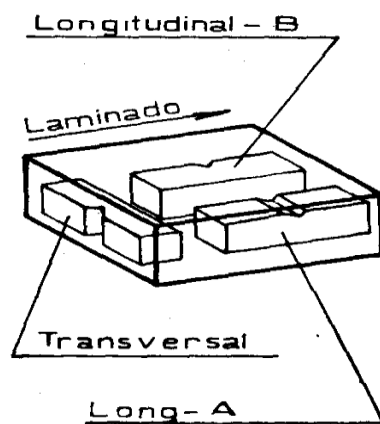


Figura III.13. Orientación de las probetas para una placa. Según la norma ASTM la indicada como transversal corresponde a la T-L. La longitudinal -A corresponde a la L-S. La longitudinal -B corresponde a la L-T.

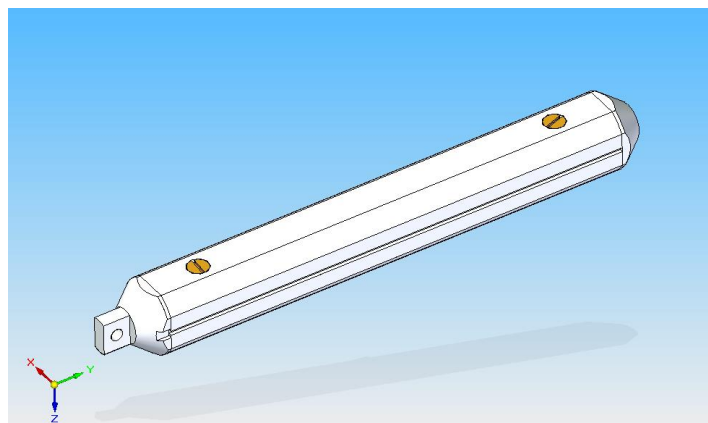


Figura III.14. Cápsula portaprobetas (primer diseño)

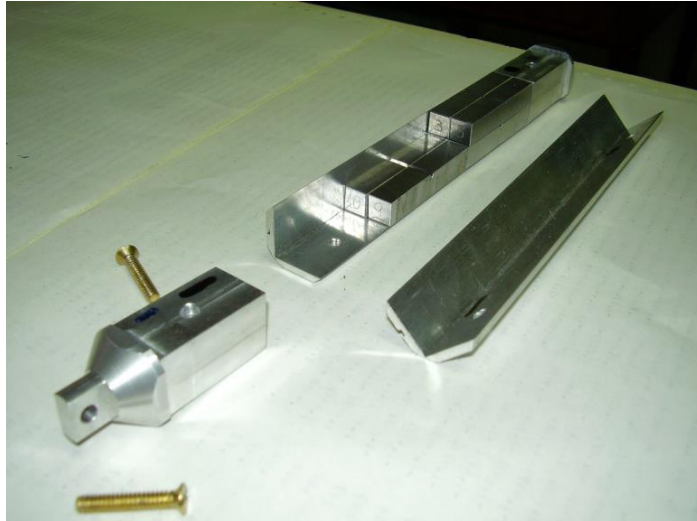


Figura III.15. Cápsula portaprobetas (primer diseño) y probetasCharpy

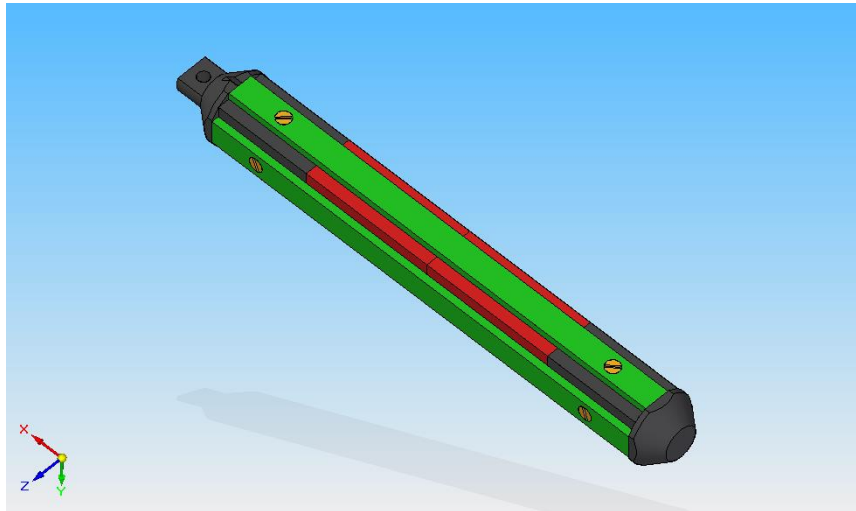


Figura III.16. Nuevo diseño del portaprobetas

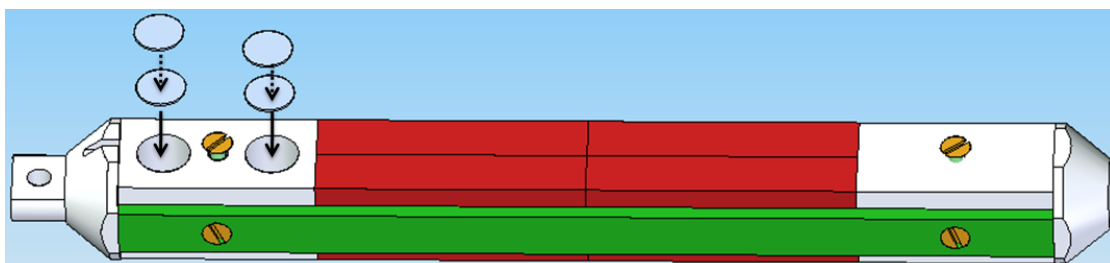


Figura III.17. Cápsula con las 8 probetas Charpy y los 75 discos SPT para futuros ensayos y caracterización dentro del dispositivo de irradiación

Las probetas se colocan unas sobre otras en grupos de 4, formando una columna vertical de 110mm de longitud del material a irradiar. En el primer diseño la cápsula

portaprobetas, construida en aluminio envuelve íntegramente las probetas, quedando de 29,3mm de diámetro por 220mm de largo. En el nuevo diseño se reduce el diámetro a 28,3 mm, logrando una reducción de 1 mm. La cápsula se ubica en el tubo de irradiación de manera tal que la entalla de las probetas Charpy enfrenta al haz de neutrones provenientes del núcleo al nivel medio de los elementos combustibles. Los prolongadores tienen el objetivo de homogeneizar la temperatura en la totalidad de las probetas. En la Figura III.15 se destaca la cápsula con sus homogeneizadores de aluminio y las probetas Charpy ubicadas en la misma.

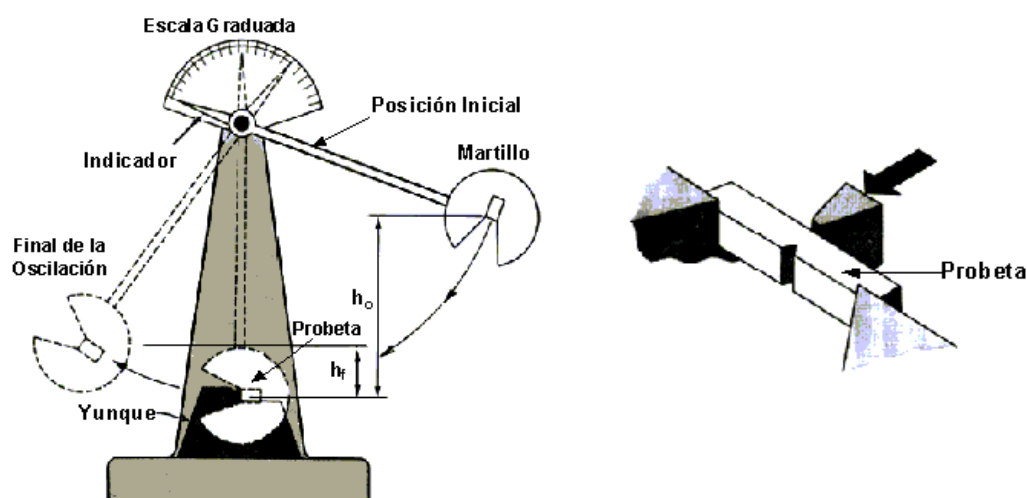
Tabla III.4. Composición del acero en estudio (% peso)

C	Mn	P	S	Si	Ni	Cr	Mo	V	Cu	Al	Ta
0.25	1.40	0.012	0.015	0.15	0.74	0.20	0.53	0.03	0.10	0.05	0.03

III.2 Descripción del ensayo de impacto utilizado en trabajos anteriores* a esta tesis

Los ensayos de impacto* Charpy se realizaron según la norma ASTM E 23. El ensayo consiste básicamente en un péndulo con una maza en su extremo, que es soltada desde una determinada altura e impacta sobre una probeta entallada apoyada en una base. La energía potencial de la maza en su parte superior se va convirtiendo en energía cinética a medida que baja. La energía necesaria para romper la probeta es el resultado del ensayo. Esta energía perdida por el péndulo es la que hace que no vuelva a su altura original. La energía de rotura se obtiene fácilmente midiendo la altura que alcanza la maza después de romper la probeta.

Estos ensayos se realizaron en la instalación Celdas Calientes (CELCA) del Laboratorio de ensayos posirradiación LAPEP ubicado en el CAE, en donde se encuentra un péndulo de ensayos de impacto Charpy WOLPERT de 300 J de capacidad, Figura III.18.



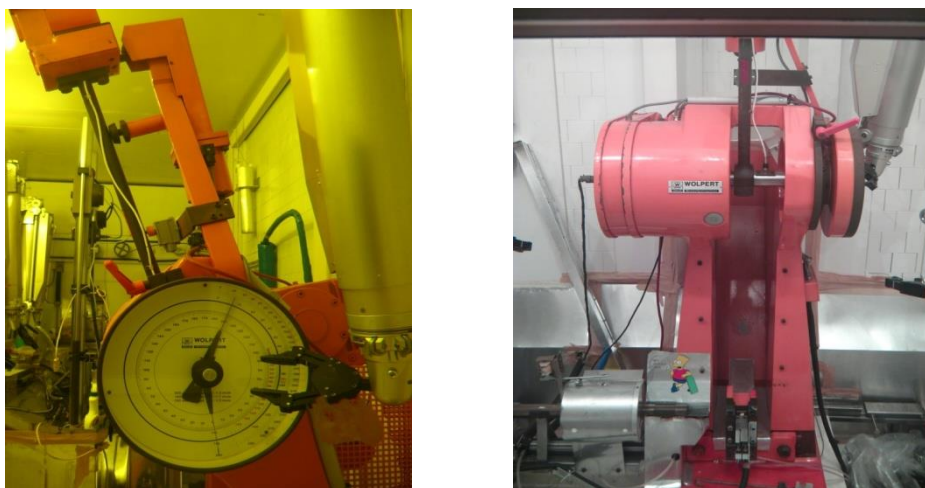


Figura III.18. Esquema de un ensayo Charpy y la máquina ubicada en las celdas calientes de Ezeiza.

Dado que la utilidad del ensayo viene dada sobre todo por el diferente comportamiento del mismo según la temperatura, es necesario disponer de diversos baños termostáticos para realizar los ensayos tanto a altas como a bajas temperaturas. La operación de sacar la probeta del baño a la temperatura adecuada, colocarla en la base de alojamiento y soltar el péndulo debe durar como máximo 5 segundos, según la norma ASTM E 23.

Para tener esto en cuenta se necesitó diseñar un sistema de calentamiento y enfriamiento en el cual se introduce una resistencia calefactora en un termo que contiene N_2 líquido; la función de esta resistencia es calentar el nitrógeno y presurizarlo para poderlo transportar hacia la cámara ambiental que se encuentra dentro de las Celdas Calientes y enfriar/calentar las probetas hasta la temperatura previamente elegida y ajustada en un controlador de temperatura. Este proceso se realizó con cada probeta y a diferentes temperaturas para obtener la curva Energía Absorbida vs. Temperatura de ensayo.

Los ensayos se realizaron a temperaturas entre $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$ hasta $55\text{ }^{\circ}\text{C}$. En la Figura III.14 se observan dos curvas típicas de material irradiado y sin irradiar. Es un ejemplo en donde se indica el corrimiento de temperatura correspondiente a 41 Joule (ASTM A-23) entre las dos curvas. Este ejemplo corresponde a un material altamente irradiado.

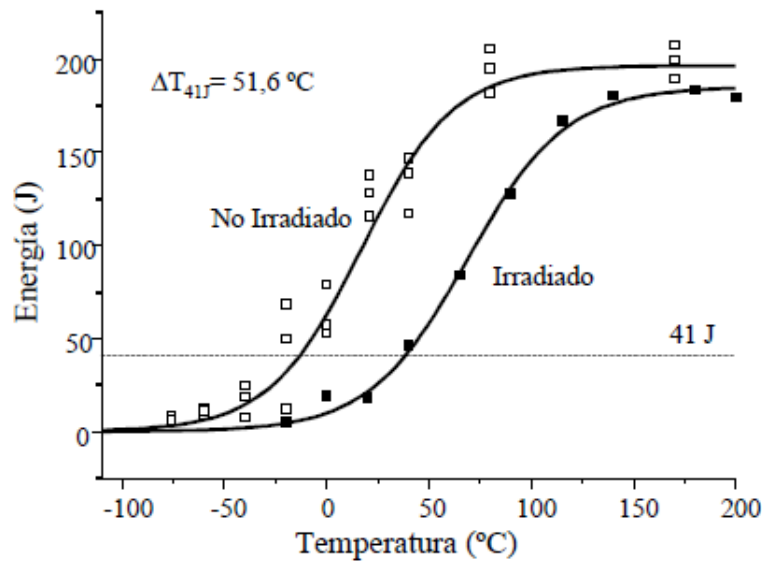


Figura III.19. Ejemplo de corrimiento una curva Charpy de material irradiado

Mediante el ensayo Charpy V se determinan una serie de características importantes para conocer el comportamiento del material. Las fundamentales son las siguientes:

- Energía de rotura: Es la energía que absorbe la probeta durante la fractura.
- Expansión lateral: Según sea el comportamiento de la probeta se produce una mayor o menor deformación de la misma en el área de rotura y sus proximidades, que se mide después del ensayo sobre la superficie de fractura.
- Porcentaje de fractura dúctil: Una vez rota la probeta se examina la superficie de rotura y se determina el % que corresponde a una rotura dúctil (de aspecto fibroso y mate) en contraposición a la rotura frágil (de aspecto brillante).

III.3 Caracterización del material irradiado

III.3.1 Ensayo Small Punch (SPT)

Los ensayos reducidos en masa para la caracterización del comportamiento mecánico de los materiales son especialmente interesantes, ya que permiten conocer sus características fundamentales utilizando volúmenes de material muy pequeños, de manera que, en muchas ocasiones, pueden considerarse como ensayos no destructivos y permiten, además, caracterizar mecánicamente regiones muy pequeñas (zonas térmicamente afectadas por la soldadura, capas superficiales, etc.) que son prácticamente imposibles de caracterizar mediante la utilización de los ensayos mecánicos convencionales. Las probetas utilizadas en el ensayo de punzonado, SPT (“Small Punch Test”) pueden tener diferentes tamaños y formas, por ejemplo una sección cuadrada de 10x10 mm² o discos que oscilan entre los 3 mm a 10 mm de diámetro y tan sólo 0,25 mm a 0,50 mm de espesor. El ensayo consiste en fijar la periferia de la probeta entre dos matrices y

deformarla hasta su rotura con un punzón de cabeza semiesférica registrando los valores de carga y desplazamiento.

La evaluación de las propiedades mecánicas de los componentes estructurales de las centrales térmicas y nucleares así como la valoración de su posible degradación durante su servicio prolongado (altas temperaturas, irradiación neutrónica), son aspectos fundamentales a la hora de asegurar la integridad estructural de estas instalaciones y su vida residual. La caracterización del comportamiento mecánico de los materiales estructurales, a excepción de su dureza, es por definición destructiva, ya que requiere la extracción directa de probetas de ensayo del componente a evaluar. Esto solo es posible si el tamaño de estas probetas es lo suficientemente pequeño como para posibilitar la reparación sencilla del componente, para que pueda seguir siendo operativo. Esta forma de actuar implica el uso de probetas de pequeño tamaño (probetas de masa reducida) que, normalmente, no cumplen los requisitos establecidos en las correspondientes normas de ensayo. De este modo, en el curso de los últimos años, se han venido utilizando diferentes tipos de probetas con dimensiones inferiores a unos pocos centímetros para la evaluación de las propiedades a tracción, fatiga, tenacidad a la entalla (Charpy), tenacidad a la fractura, crecimiento de grietas por fatiga, etc., cuyos resultados deben ser convenientemente interpretados con el fin de derivar las propiedades de los componentes (de mucho mayor tamaño) de los que se han extraído las probetas.

El ensayo SPT inició su desarrollo en el MIT en el año 1981 para estudiar la fragilización de los materiales producida por radiación. Su desarrollo continuó en Japón, particularmente en la universidad Tohoku y en el Instituto Japonés de Investigación sobre Energía Atómica (JAERI); en E.E.U.U. fue el EPRI el encargado de su desarrollo, mientras que en Europa los primeros trabajos sobre este ensayo aparecen en 1992 en la universidad de Swansea y el ERA, en el reino Unido y del CESI, en Italia.⁴⁶

Está siendo utilizado en la actualidad para determinar las propiedades mecánicas a tracción (incluida la ley de comportamiento del material), la temperatura de transición dúctil-frágil, el comportamiento a fractura y a fluencia (Creep), así como para estudiar cualquier fenómeno de fragilización, incluida la fragilización asistida por el medio ambiente.

El dispositivo de ensayo construido se puede ver en la figura III.20, la probeta de ensayo consiste en un disco de 10 mm de diámetro y 500 μ m de espesor, el cual es sujeto por una matriz inferior con un agujero de descarga $a = 4$ mm y una matriz superior con un canal guía de 2,5 mm de diámetro. Por este canal se desplaza un vástago de empuje y una bolilla de 2,5 mm de diámetro (2R). Este diseño ha sido realizado siguiendo las recomendaciones dadas en⁴⁶.

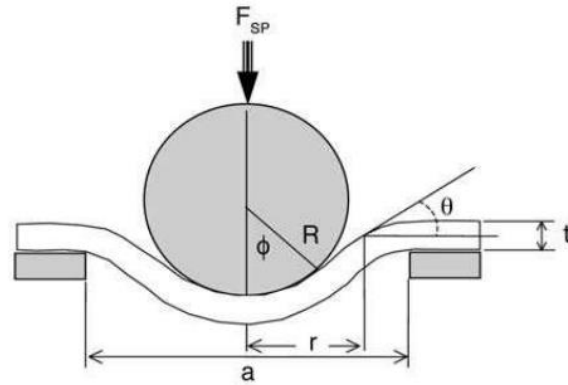
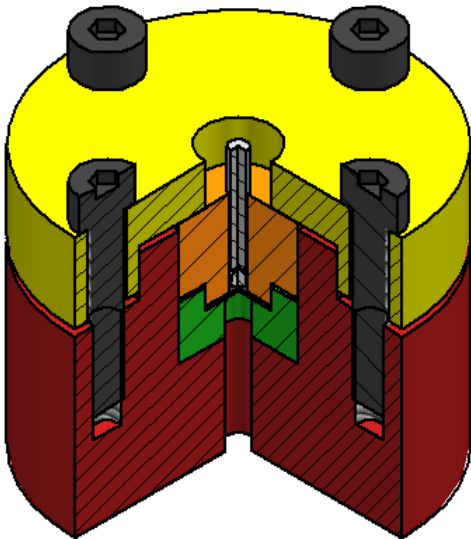


Figura III.20. Diseño del dispositivo de SPT

El ensayo se realiza con una velocidad de desplazamiento controlada y fija que se encuentra entre los 0,25 mm/min y los 2 mm/min (este rango de velocidades es el sugerido por el código de práctica de la Unión Europea⁴⁶) y se registran los valores de cargas y desplazamientos. Una curva típica se puede ver en la figura III.21.

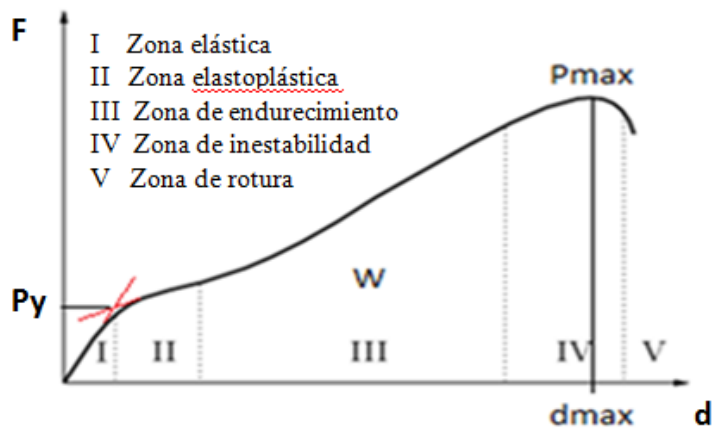


Figura III.21. Curva típica de ensayo SPT mostrando las diferentes zonas de comportamiento y el disco luego de ser ensayado

Las zonas características que se pueden observar en este tipo de ensayo son las siguientes:

- **Zona I.** Zona de deformación elástica: corresponde a la región rectilínea inicial.
- **Zona II.** Zona de transición elastoplástica: la deformación plástica ha comenzado en la región de contacto entre la probeta y el punzón.
- **Zonas III.** Zona de deformación plástica generalizada: la deformación plástica se extiende en la probeta y ocurre un adelgazamiento importante en su espesor.

- **Zona IV y V.** Zona de inestabilidad plástica y rotura: en las proximidades de la carga máxima, P_{max} , tiene lugar la inestabilidad plástica, con la formación de grietas que cuando atraviesan todo el espesor de la probeta dan lugar al descenso de la carga que se observa al final del ensayo.

Analizando las diferentes zonas, se obtienen una serie de parámetros característicos directamente relacionados con las propiedades mecánicas del material ensayado: pendiente del tramo inicial lineal (régimen elástico), fuerza para la que se inicia el régimen plástico, P_y , fuerza máxima registrada en el ensayo, P_{max} , desplazamiento en el punto de fuerza máxima, d_{max} , energía de fractura o área encerrada debajo de la curva fuerza-desplazamiento hasta el punto representativo de la fuerza máxima, W .

Realizando ensayos a diferentes temperaturas, se puede registrar la energía de fractura en función de la temperatura y de este modo determinar la temperatura de transición dúctil-frágil del material en este ensayo TT(SPT) y relacionarla con la temperatura de transición dúctil-frágil medida en ensayos Charpy, TT(Charpy).

Para lograr temperaturas bajas, hasta $-196\text{ }^{\circ}\text{C}$ se diseñó un arreglo como el que se ve en la figura III.22 y 23. El nitrógeno líquido ingresa a la zona de ensayo a través de un flexible proveniente de un termo presurizado, enfriando una masa de cobre de alta inercia térmica la cual se encuentra en íntimo contacto con el dispositivo de SPT, de esta manera se logra una óptima regulación de la temperatura de la muestra. Dicha temperatura es registrada por una termocupla que está en contacto directo con el disco a ser ensayado y controla la electroválvula de inyección de nitrógeno del termo. El contenedor es de doble pared y doble fondo aislado mediante vacío para minimizar la disipación térmica.

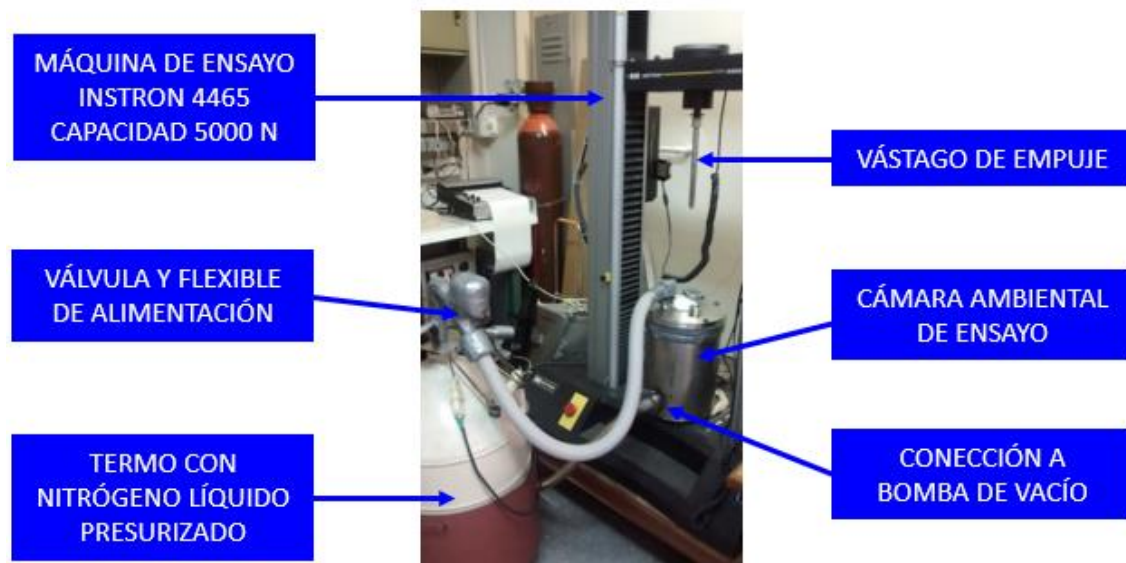


Figura III.22. Arreglo experimental para realizar ensayos SPT a bajas temperaturas

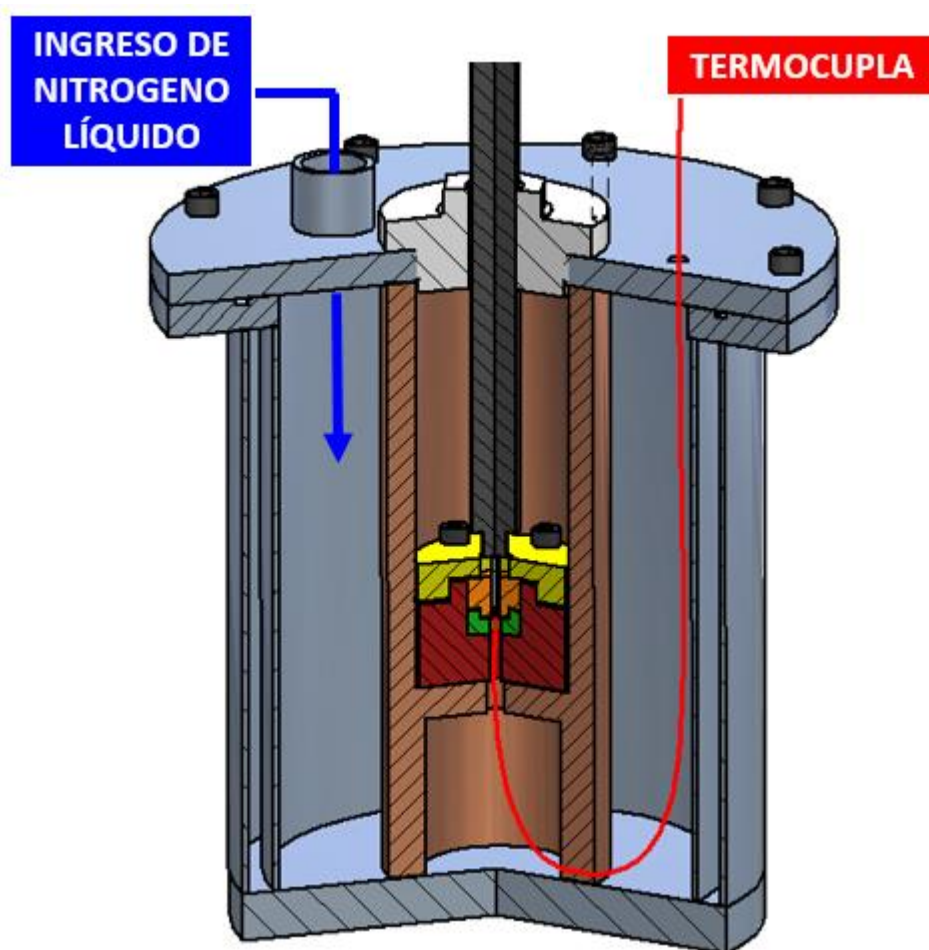


Figura III.23. Detalle del diseño

III.3.2 Magnetometría VSM

Las mediciones de magnetometría (VSM) consistieron en la realización de curvas de histéresis con el objetivo de observar el cambio de forma de dichas curvas y obtener cuantitativamente el campo coercitivo H_c y la magnetización de saturación M_s para el material irradiado. Los cambios de dichos parámetros con la radiación neutrónica están relacionados con la generación de aglomerados de defectos y por la creación de nanoprecipitados.

Para obtener los ciclos de histéresis se utilizó un magnetómetro de muestra vibrante marca Versalab Quantum Design, instalado en la Departamento Materia Condensada del CAC, Figura III.24; el mismo permite medir la magnetización en función de la temperatura entre 50 y 400 K bajo la aplicación de un campo magnético de hasta 3 Tesla.

La técnica de medición por muestra vibrante consiste en mover una muestra magnetizada dentro de un sistema de bobinas de detección; este movimiento induce en las bobinas una tensión que es proporcional al campo magnético de la muestra. Con este sistema, el equipo logra una precisión del orden 10^{-6} emu.

Este procedimiento se realizó para el material de las probetas irradiadas a diferentes FA y para el del juego sin irradiar. Este procedimiento se realizó para las muestras sin tratamiento térmico y con tratamiento térmico a 360°C durante una hora.

El magnetómetro de muestra vibrante (VSM) basa su funcionamiento en la ley de Faraday. Un esquema se muestra en la figura III.25. La muestra se centra entre los polos de un electroimán y va montada al final de una varilla. Dicha varilla conecta la muestra con un transductor que la hace vibrar verticalmente. Así la muestra es sometida a un movimiento sinusoidal de frecuencia ν , generando una fem (fuerza electromotriz) que es detectada en las bobinas colectoras. La señal eléctrica de salida de estas bobinas tienen la misma frecuencia ν que la muestra y su intensidad es proporcional al momento magnético de la muestra, la amplitud de vibración y la frecuencia ν . La intensidad de esta fem es medida por un circuito amplificador lock-in. El montaje permite realizar rotaciones de la muestra alrededor del eje vertical.

Para realizar una óptima determinación en la caracterización microestructural por las técnicas magnéticas es necesario no saturar la sensibilidad de cada equipo. Previo al trabajo con el material irradiado se estimaron las cantidades óptimas de material ferromagnético. Las muestras son discos de 3 mm de diámetro y 0,25 mm de espesor, no requieren de ninguna terminación superficial en particular, pero debe evitarse la oxidación. Se realizaron las pesadas de las muestras en una balanza obteniendo los resultados que se observan en la tabla III.5.

Tabla III.5. Peso de las muestras para la caracterización por VSM

Tipo de muestra	Peso de la muestra (mg)	Taza dosis [μSv/hora]
No irradiada	4,0 +/- 0.1	< 0,1
Irradiada con FA=93	4,1 +/- 0.1	< 0,1
Irradiada con FA=186	3,5 +/- 0.1	< 0,1



Figura III.24. Magnetómetro de muestra vibrante VersaLab

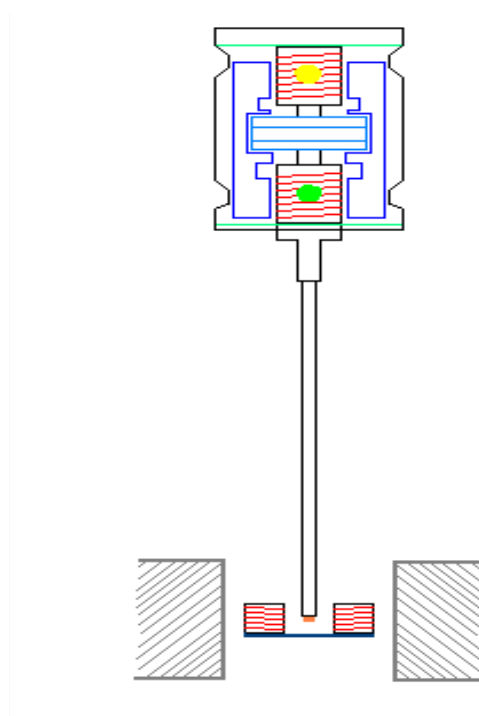


Figura III.25. Esquema básico del Magnetómetro de muestra vibrante. La muestra es sometida a una oscilación armónica únicamente en el eje vertical, perpendicular al campo magnético generado por el electroimán.

CAPÍTULO IV

RESULTADOS

IV.1 Ensayos magnéticos

Se realizaron una serie de ciclos magnéticos desde 0 a H_{max} , luego a $-H_{max}$ y de nuevo a 0 para cerrar el ciclo. Este procedimiento tiene que cumplir, en cada bucle, la condición $H_{max} < H_{sat}$ (campo de saturación), siendo H_{sat} el campo necesario para alcanzar M_{sat} (magnetismo de saturación). La figura IV.1 muestra esquemáticamente el protocolo H vs tiempo utilizado. Se extrajeron H_c (campos coercitivos) a partir de los datos de la siguiente manera: se tomó $H_c + (-H_c)$ como el campo magnético necesario para volver a cero magnetización después de llegar a H_{max} ($-H_{max}$). Luego, se tomó H_c como el valor medio de $|H_c + |$ y $|-H_c|$.

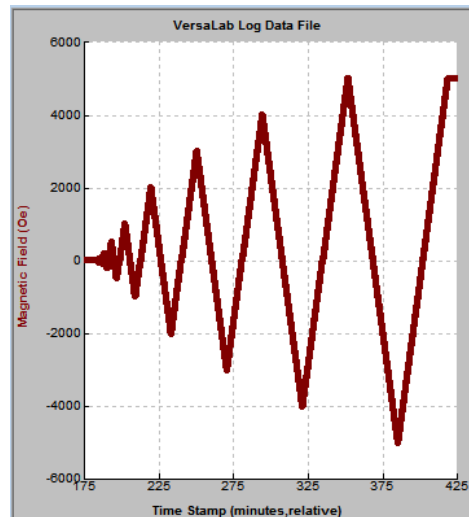


Figura IV.1. Muestra del protocolo utilizado para la generación de pequeños lazos de histéresis

Se realizaron ciclos de pruebas aplicando campos magnéticos crecientes desde 50 hasta 30000 Oe para obtener el campo coercitivo correspondiente a la saturación de la muestra.

Una vez obtenidos todos los datos de campo magnético aplicado y momento magnético de saturación, se puede obtener el valor del campo coercitivo que es el valor de interés en esta Tesis, ya que el campo coercitivo es la propiedad más sensible que caracteriza a los materiales ferromagnéticos. Como ya se dijo éste es el campo magnético necesario para reducir a cero la inducción magnética. El campo coercitivo aumenta cuanto mayor es el contenido de defectos y también cuando aumentan las tensiones internas⁴⁷.

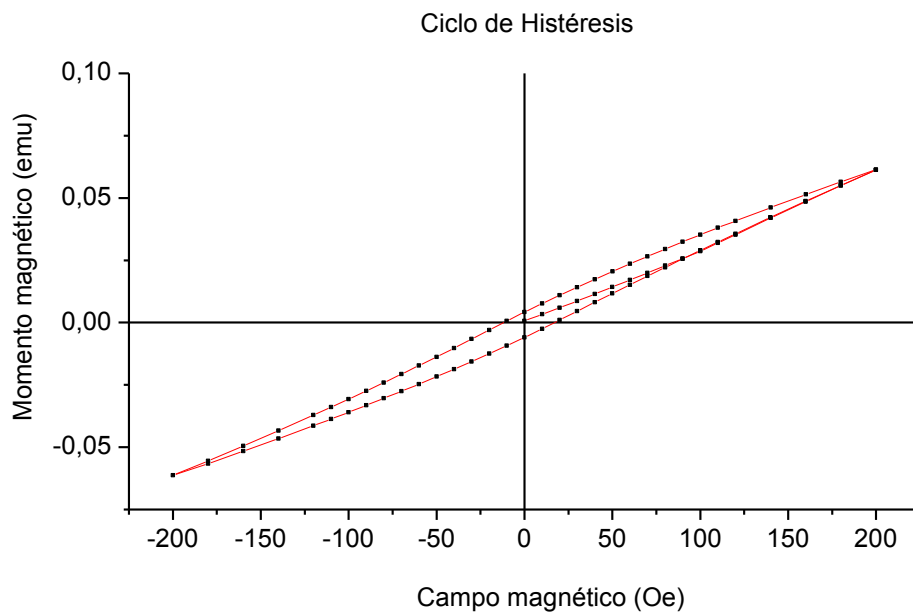


Figura IV.2. Ciclo de histéresis

Para obtener el valor del campo coercitivo (H_c) se graficaron todos los ciclos desde 50 – 30000 Oe y por medio de una interpolación se obtuvo el valor de H_c . Figura IV.2. y IV.3.

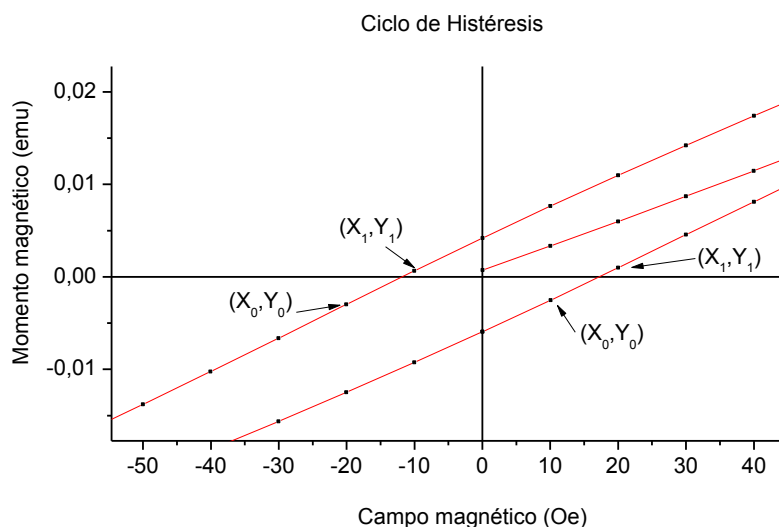


Figura IV.3. Variables para el cálculo del campo coercitivo y para la determinación del error.

Esto se aplica a cada uno de los ciclos antes obtenidos para luego poder realizar una gráfica del campo coercitivo vs el campo aplicado.

IV.1.1 Tratamientos térmicos

Se realizaron una serie de recocidos de 1 hora de duración a 360 °C a la muestra sin irradiar (FA0) y a las muestras irradiadas (FA93 y FA186).

Estos tratamientos térmicos se realizaron en una cámara de vacío como se ve en la Figura IV.4 con el objetivo de no oxidar las muestras. El nivel de vacío logrado fue del

orden de 10^{-6} Torr mediante bombas mecánica y difusora. El horno es de tipo eléctrico con una precisión de mantención de la temperatura de ± 2 °C.

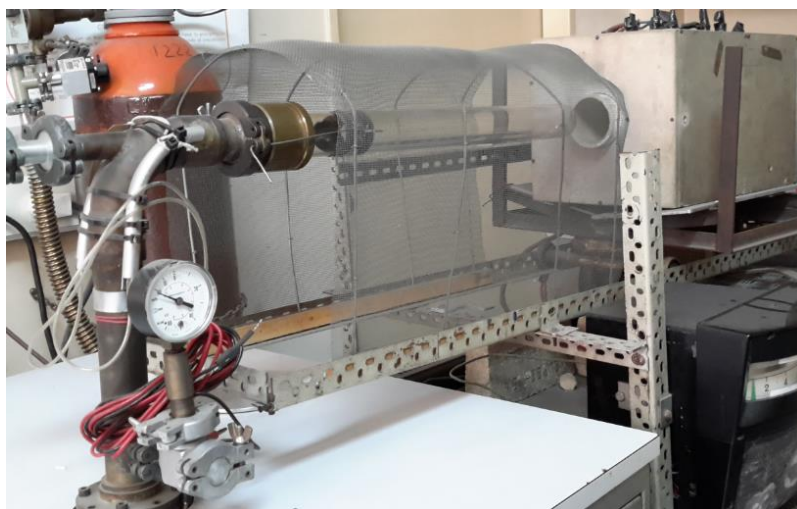


Figura IV.4. Cámara de vacío y horno de tratamiento térmico

Este tratamiento térmico se realiza con el objetivo de determinar la influencia de los precipitados y el daño estable en la matriz en el comportamiento magnético del material.

En la Tabla IV.1 se presentan los resultados de las magnetometrías para el material sin tratamiento térmico.

Tabla IV.1. Resultados magnetometrías material sin TT

CAMPO MAGNÉTICO Oe	CAMPO COERCITIVO HC ($\delta_{HC} = \pm 0,02$ Oe)		
	Oe		
	FA: 186	FA: 93	FA: 0
50	3.5	3,0	2.6
100	5.3	4.6	3.6
200	6.5	5.9	5,0
300	7.5	6.7	6,0
400	8,0	7.3	6.8
500	8,0	7.5	7,0
600	8,0	7.6	7,0
700	8,0	7.6	7,0
800	8,0	7.6	7,0
900	8,0	7.6	7,0
1000	8,0	7.6	6.9
2000	6.7	7.1	6.5
3000	5.8	6,0	5.4
5000	4.6	5.1	4.5
10000	3.8	4.1	3.5
30000	3,0	2.7	2.5

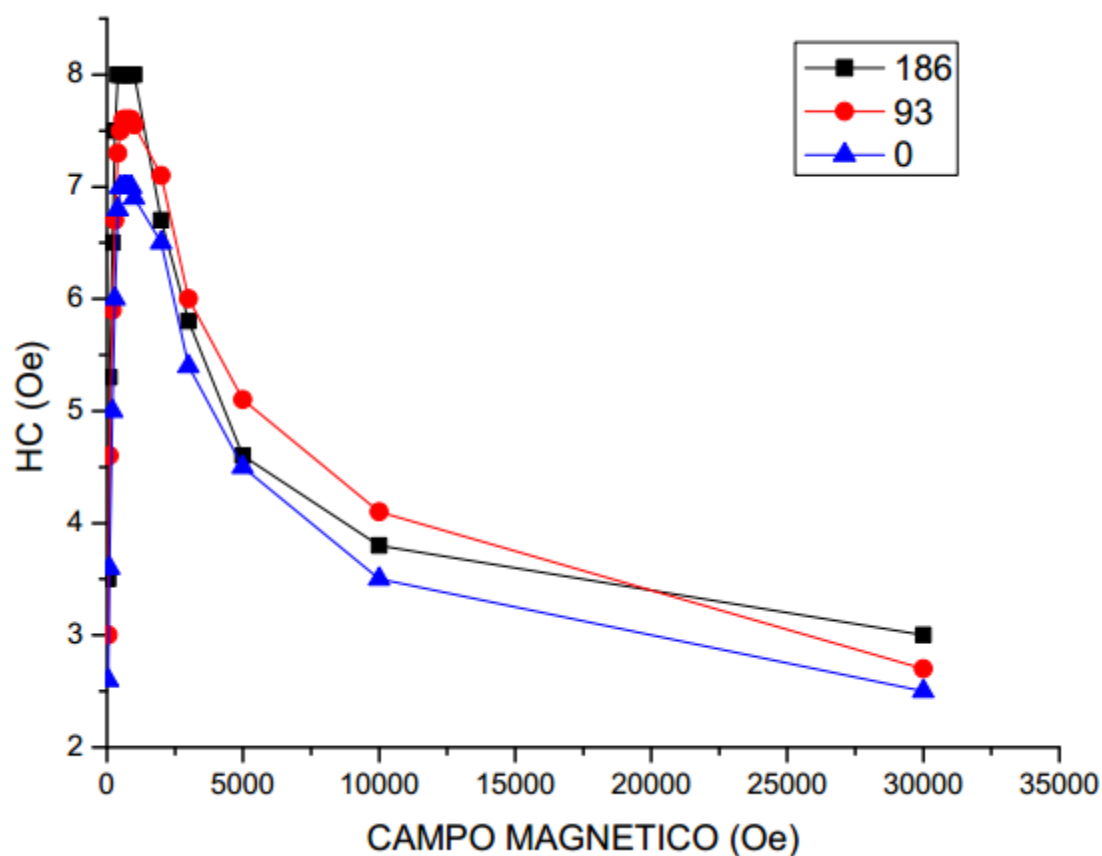


Figura IV.5. Curvas de campo coercitivo vs campo magnético para material sin TT

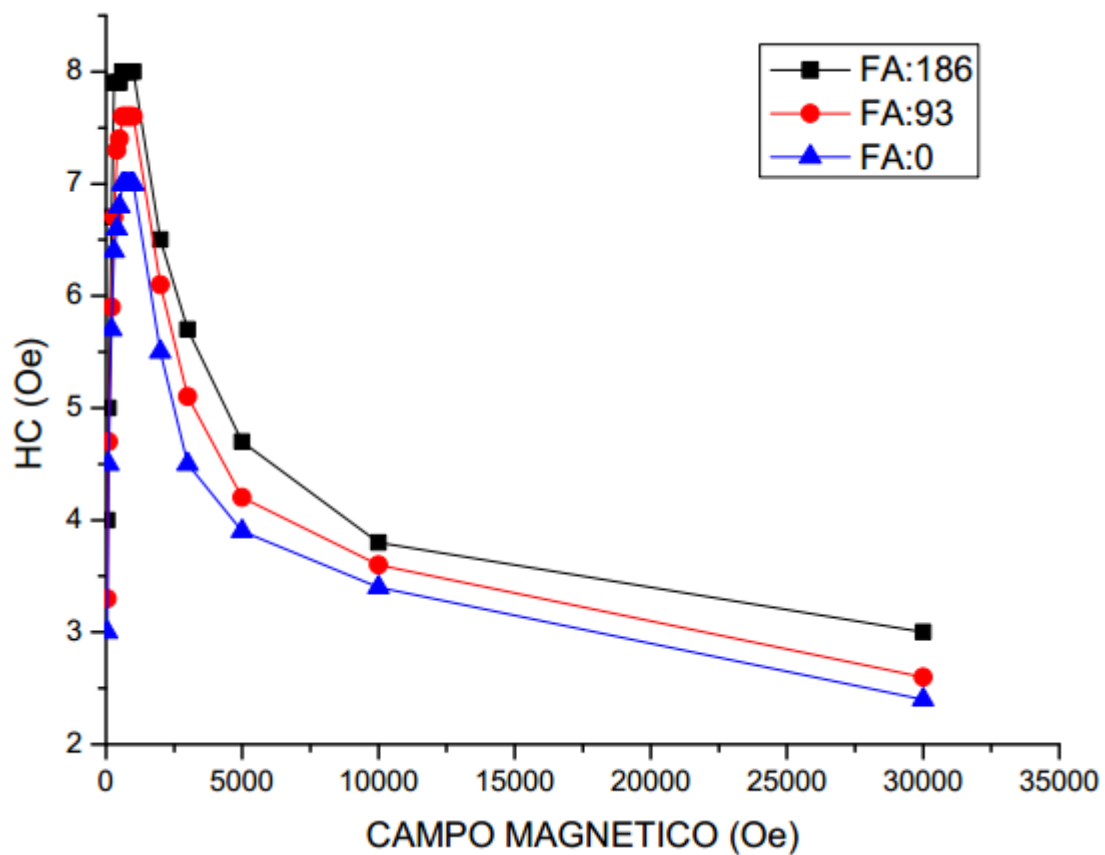
Las 3 muestras presentan un máximo en el campo coercitivo entorno a los 700 Oe de campo magnético, diferenciándose en el valor máximo alcanzado en cada caso. Figura IV.5.

Para la muestra sin irradiar se alcanza un máximo de 7 Oe en el campo coercitivo, en la muestra irradiada con factor de avance 93 se llega a 7,6 Oe y para la muestra con factor de avance 186 el campo coercitivo es de 8 Oe.

En la Tabla IV.2 se presentan los resultados de las magnetometrías para el material con tratamiento térmico a una temperatura de 360 °C durante 1 hora.

Tabla IV.2. Resultados magnetometrías material con TT de 360°C 1 hora

CAMPO MAGNÉTICO Oe	CAMPO COERCITIVO HC ($\delta_{HC} = \pm 0,02$ Oe)		
	Oe		
	FA: 186	FA: 93	FA: 0
50	4,0	3.3	3,0
100	5,0	4.7	4.5
200	6.7	5.9	5.7
300	7.9	6.7	6.4
400	7.9	7.3	6.6
500	7.9	7.4	6.8
600	8,0	7.6	7,0
700	8,0	7.6	7,0
800	8,0	7.6	7,0
900	8,0	7.6	7,0
1000	8,0	7.6	7,0
2000	6.5	6.1	5.5
3000	5.7	5.1	4.5
5000	4.7	4.2	3.9
10000	3.8	3.6	3.4
30000	3,0	2.6	2.4

**Figura IV.6. Curvas de campo coercitivo vs campo magnético para material con TT 360°C 1 hora**

Se puede observar tanto en la Tabla IV.2 como en la Figura IV.6 que para las muestras con tratamiento térmico los resultados son similares a los obtenidos en las muestras sin tratamiento térmico, especialmente en el rango de campo coercitivo máximo.

Las 3 muestras presentan un máximo en el campo coercitivo entorno a los 700 Oe de campo magnético, diferenciándose en el valor máximo alcanzado en cada caso. Figura IV.6.

Para la muestra sin irradiar se alcanza un máximo de 7 Oe en el campo coercitivo, en la muestra irradiada con factor de avance 93 se llega a 7,6 Oe y para la muestra con factor de avance 186 el campo coercitivo es de 8 Oe.

Para continuar con el análisis de los defectos responsables del comportamiento magnético se realizó un recocido a 460 °C. Considerando que a medida que avanza la irradiación aumenta la temperatura de recuperación de los defectos dada su evolución, se espera definir con este tratamiento si hay modificaciones en las variables analizadas. El análisis de estas muestras no se llegó a concretar hasta el momento de redactar esta tesis debido a que el magnetómetro se averió y debió ser reparado.

IV.2 Ensayos Small Punch

Con el objetivo de definir una velocidad de ensayo adecuada y constante para todos los ensayos, se realizaron 5 ensayos a velocidades crecientes desde 0,1 mm/min hasta 10 mm/min. Como se puede apreciar en la figura IV.7, al aumentar la velocidad de ensayo el material experimenta endurecimiento. La velocidad adoptada para la prosecución de los ensayos es de 0,5 mm/min, la cual proporciona un buen control de la secuencia de ensayo y está dentro del rango sugerido por el código de prácticas de la Unión Europea⁴⁶.

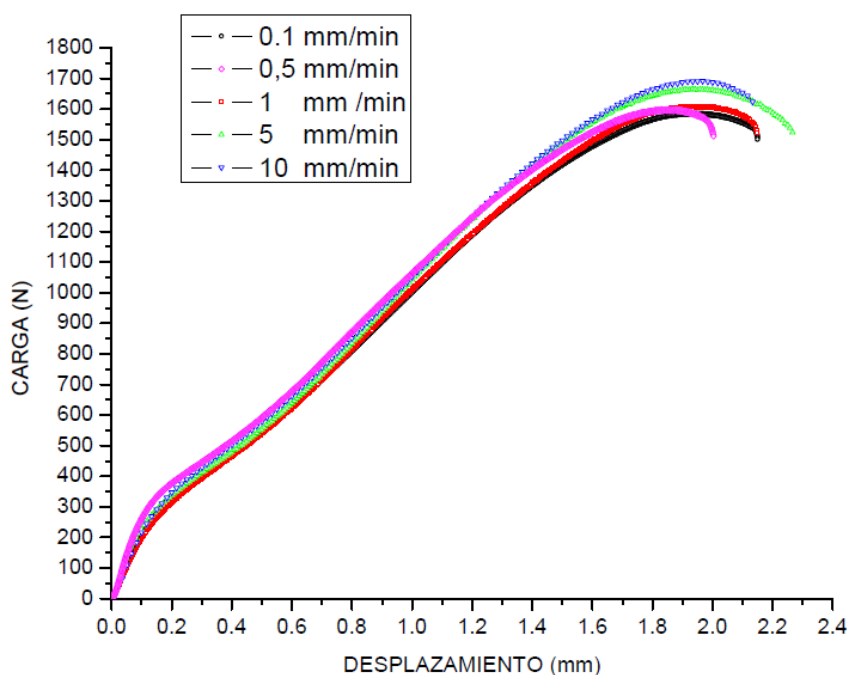


Figura IV.7. Curvas mostrando el efecto de la velocidad de carga

Se evaluó también el efecto de la variación del espesor en los parámetros mecánicos más importantes. La figura IV.8 muestra este efecto para espesores que oscilan entre 0,472 mm y 0,520 mm, un análisis similar en cuanto a influencia de los espesores de las probetas se puede encontrar en el trabajo de J. Autillo⁴⁸.

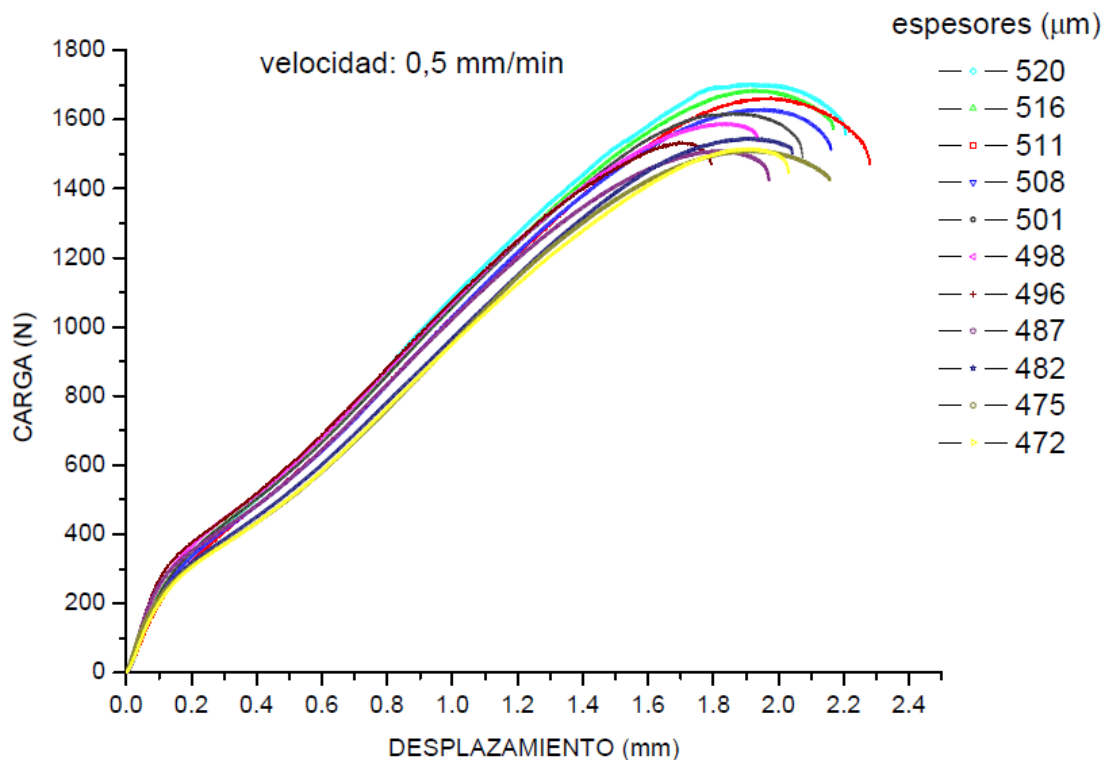


Figura IV.8. Curvas mostrando el efecto del espesor de la probeta

Se presentan 3 formas distintas de determinar el límite elástico como se ve en la Figura IV.9⁴⁸.

1. Mediante el cruce de las dos rectas tangentes correspondientes a las dos primeras zonas de las curvas. Este límite elástico se denomina $P_y(ct)$.
2. Mediante la intersección de la curva con una recta paralela a la pendiente inicial a una distancia igual a la décima parte del espesor de la probeta. Este límite elástico se denomina $P_y(t/10)$.
3. Mediante la intersección de la curva con una recta paralela a la pendiente inicial a una distancia igual y fija de 0,1 mm. Este límite elástico se denomina $P_y(0,1)$.

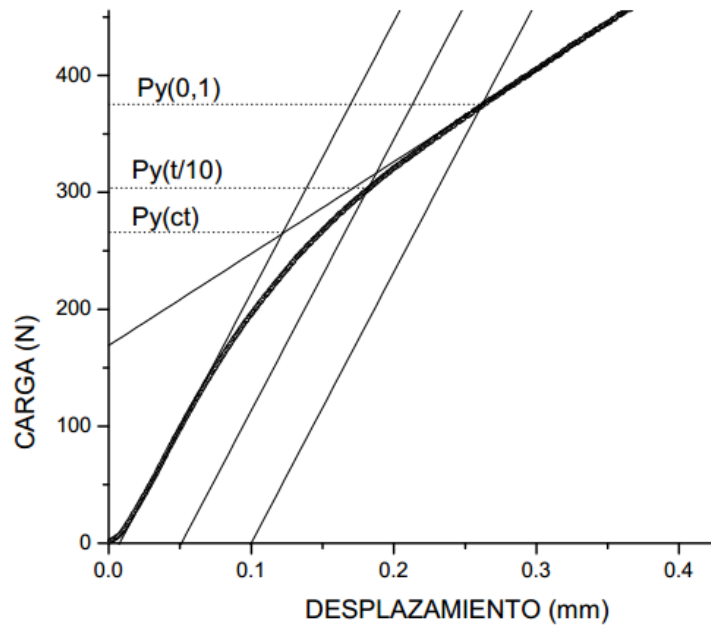


Figura IV.9. Diferentes maneras de definir el límite elástico

Los valores obtenidos se resumen en la Tabla IV.3. La carga máxima de se denomina P_{max} , el desplazamiento correspondiente a esta carga es d_{max} y la energía W se obtiene integrando la curva hasta el punto de rotura.

Tabla IV.3. Resumen de datos obtenidos para diferentes espesores

PROBETA	ESPOSOR t mm	PENDIENTE ELÁSTICA P/d N/mm	P_y (t/10) N	P_y (0,1) N	P_y (CT) N	P_{max} N	d_{max} mm	W J
1	0,472	2560	261	323	245	1515	1,914	1,698
2	0,475	3037	247	308	234	1511	1,923	1,725
3	0,482	2961	258	324	254	1545	1,912	1,739
4	0,487	3359	299	355	281	1509	1,818	1,655
5	0,496	3337	333	387	303	1533	1,696	1,545
6	0,498	3434	300	373	302	1588	1,830	1,752
7	0,501	2669	318	387	297	1617	1,850	1,773
8	0,508	2355	308	373	281	1630	1,955	1,906
9	0,511	2318	302	374	265	1662	1,977	1,773
10	0,516	2893	303	375	284	1684	1,923	1,914
11	0,520	2706	313	381	283	1703	1,923	1,940

Teniendo en cuenta el espesor de las probetas y aplicándolo adecuadamente a cada columna de la tabla se calculan el valor promedio, la desviación estándar y el coeficiente de variación obteniéndose los valores de la Tabla IV.4.

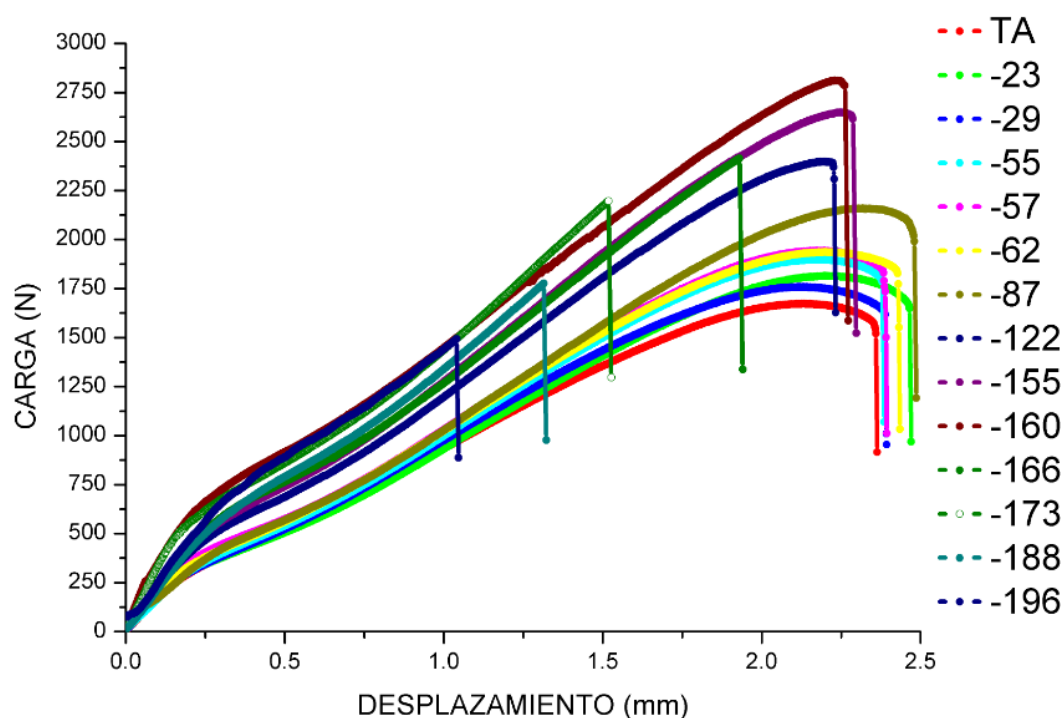
Tabla IV.4. Resultados afectados por el espesor de la probeta t

PROBETA	t mm	$(P/d)/t$ GPa	$P_y (t/10)/t^2$ MPa	$P_y (0,1)/t^2$ MPa	$P_y (CT)/t^2$ MPa	P_{max}/t^2 MPa	d_{max}/t	W/t^2 J/mm ²
1	0,472	5,4	1172	1450	1100	6800	4,054	7,622
2	0,475	6,4	1095	1365	1037	6697	4,048	7,645
3	0,482	6,1	1111	1395	1093	6650	3,966	7,485
4	0,487	6,9	1261	1497	1185	6363	3,732	6,978
5	0,496	6,7	1354	1573	1232	6231	3,420	6,280
6	0,498	6,9	1210	1504	1218	6403	3,675	7,064
7	0,501	5,3	1267	1542	1183	6442	3,692	7,064
8	0,508	4,6	1194	1445	1089	6316	3,849	7,386
9	0,511	4,5	1157	1432	1015	6365	3,869	6,790
10	0,516	5,6	1138	1408	1067	6325	3,727	7,189
11	0,520	5,2	1158	1409	1047	6298	3,698	7,175

VALOR MEDIO	5,8	1192	1456	1115	6445	3,794	7,153
DESVIACIÓN	0,9	76,571	65,006	76,279	185,768	0,188	0,396
COEF. VAR.	0,1	0,064	0,045	0,068	0,029	0,049	0,055

Se puede ver claramente que la manera de definir el límite elástico que menor dispersión presenta es el $P_y(0,1)/t^2$ con un 4,5%. La energía tiene una dispersión del orden de 5,5%.

Se realizaron ensayos desde temperatura ambiente ($T_A = 22\text{ }^{\circ}\text{C}$) hasta los $-196\text{ }^{\circ}\text{C}$ (nitrógeno líquido) como se puede apreciar en la Figura IV.10.

**Figura IV.10. Serie de ensayos a diferentes temperaturas**

En líneas generales al descender la temperatura la carga máxima y el módulo de elasticidad (pendiente de la zona lineal inicial) aumenta hasta alcanzar la temperatura de transición dúctil-frágil y la deformación posterior a la carga máxima se reduce (ensayos TA hasta $-160\text{ }^{\circ}\text{C}$). A partir de allí la carga máxima y la deformación total disminuyen súbitamente y no presenta deformación posterior a la carga máxima (ensayos $-160\text{ }^{\circ}\text{C}$ hasta $-196\text{ }^{\circ}\text{C}$).

En la Figura IV.11 se dejaron únicamente 6 curvas para mejorar la visualización e individualización de las mismas, hay 3 curvas a temperaturas en la región dúctil (TA, $-57\text{ }^{\circ}\text{C}$ y $-122\text{ }^{\circ}\text{C}$) y 3 en la región de transición dúctil-frágil ($-160\text{ }^{\circ}\text{C}$, $-173\text{ }^{\circ}\text{C}$ y $-196\text{ }^{\circ}\text{C}$). Claramente la energía absorbida por las últimas dos probetas es netamente inferior a las anteriores.

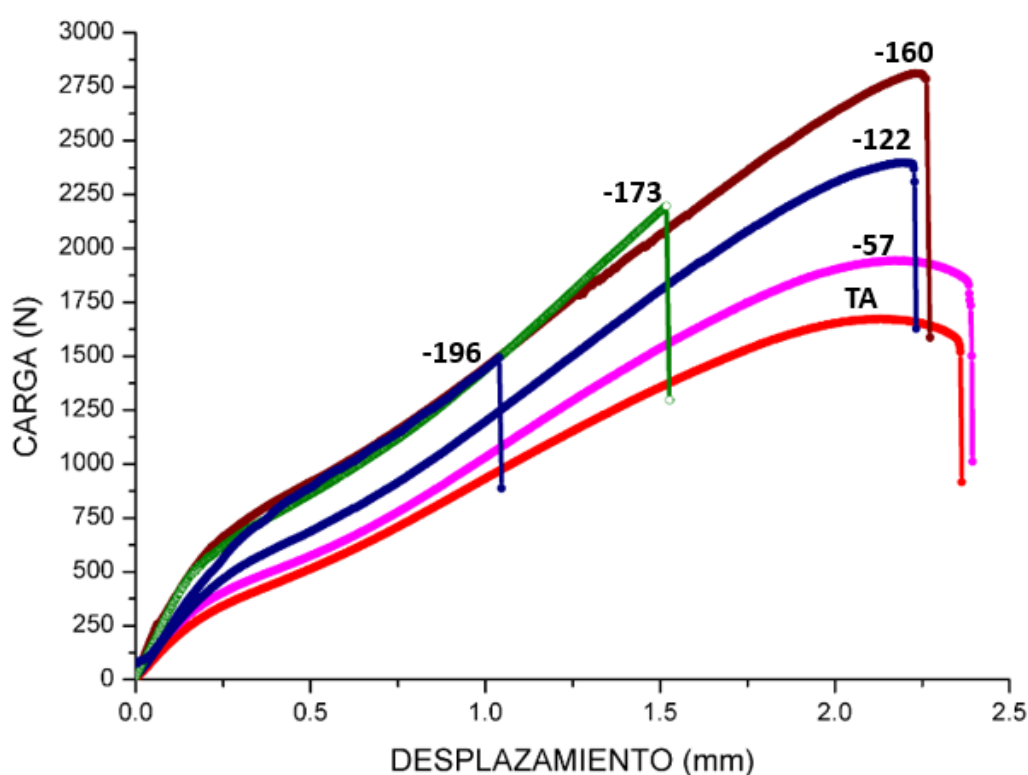


Figura IV.11. Seis curvas de ensayos a diferentes temperaturas

En la Figura IV.12 se representan para cada temperatura de ensayo la energía específica absorbida hasta la rotura. Se aproximaron mediante dos regresiones lineales la zona dúctil y la zona de transición dúctil-frágil.

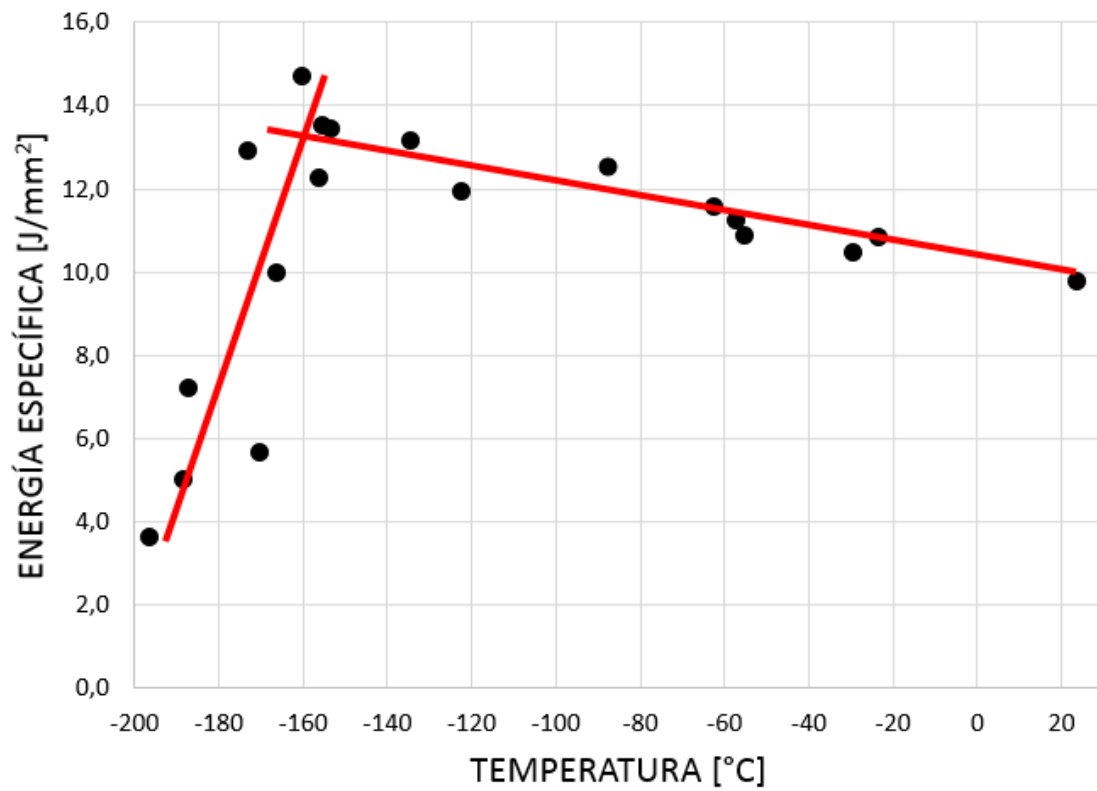


Figura IV.12. Gráfico de la energía específica vs temperatura (curva de transición dúctil-frágil)

CAPÍTULO V

DISCUSIÓN

El daño en la matriz (SMD) domina la respuesta de los aceros de bajo contenido de cobre ($\text{Cu} < 0.1$ a 0.15 % peso) y tiene que ver con la formación tanto de aglomerados de defectos (vacancias y autointersticiales) como con la combinación de átomos de aleantes con los defectos creados por la irradiación. Dada la baja fluencia en los RPR, los aglomerados de defectos creados por la irradiación, que son obstáculos para el movimiento de las dislocaciones, son considerados barreras dispersas y, en estas condiciones, el endurecimiento varía como la raíz cuadrada de la fluencia de los neutrones rápidos, y decrece con el incremento de la temperatura de irradiación. Este comportamiento es consistente con la información experimental de las propiedades mecánicas medidas y ha sido también modelada con éxito usando simulaciones atomísticas.

La componente del daño asociada al aumento de los precipitados ricos en cobre (CRP)* se conforma de agrupamientos ricos en ese elemento a través de la normal nucleación debido a la alta sobresaturación de cobre. La contribución al daño por CRP a la fragilización depende del contenido de Cu y Ni del acero y también depende de la fuerte interacción entre Cu-Ni-Mn. La contribución al daño por CRP al total de la DBTT depende de la duración de la irradiación y la temperatura, ya que la conformación de precipitados depende del coeficiente de difusión de estos elementos y del número de defectos producidos en las cascadas de desplazamientos como consecuencia de la irradiación neutrónica⁴⁹.

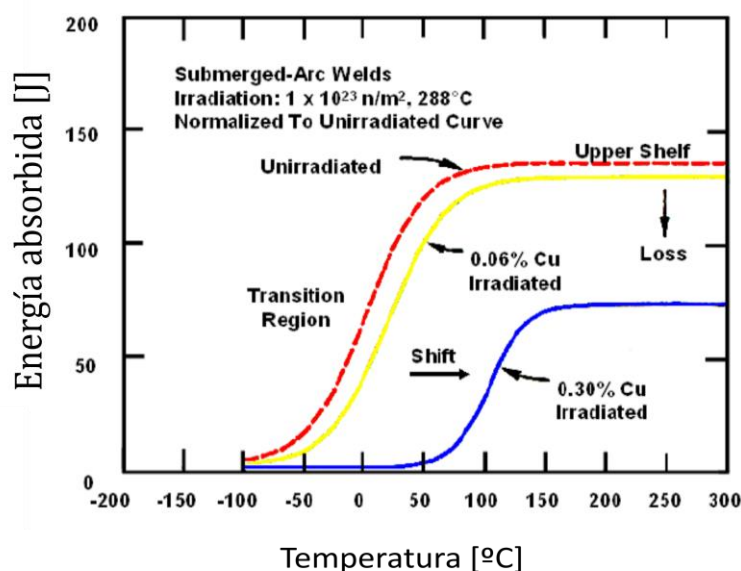


Figura V.1. Efecto del Cu en el comportamiento en la transición dúctil-frágil

En las primeras prácticas de acería se utilizaba chatarra de automóviles, que aún contenían cobre, para la fabricación del material base del recipiente del reactor y también se empleaban consumibles recubiertos de cobre en las soldaduras. Después de 1972, el contenido de cobre se redujo sustancialmente pero aún existe un significativo número de recipientes que funcionan con altos niveles de cobre en sus soldaduras.

De las dos contribuciones que hacen aportes a la fragilización, la que se conoce mejor experimentalmente es el daño por CRP. Tanto la microscopía electrónica de transmisión TEM como las técnicas PAS (aniquilación de positrones), MS (espectroscopía Mössbauer), Microscopía de efecto túnel, SAXS (dispersión de rayos X a bajo ángulo)⁵⁰, SANS (dispersión de neutrones a bajo ángulo)⁵¹ y la APT (atom probe tomography) han permitido caracterizar experimentalmente el tamaño y naturaleza de los precipitados, el número relativo de estas nanoestructuras, su composición y su fracción volumétrica.*^{52, 53}

Del análisis de los resultados obtenidos para muestras irradiadas y para muestras irradiadas y tratadas térmicamente se puede decir que el efecto sobre las propiedades magnéticas, más precisamente sobre el campo coercitivo, es producto exclusivamente de los precipitados ricos en cobre (CRP) y no intervendría el daño estable en la matriz, ya que los recocidos efectuados eliminan en gran medida este tipo defectos. Se observa además una dependencia de la magnitud del campo coercitivo con el factor de avance: las muestras sin irradiar presentan el menor campo coercitivo, en torno a los 7 Oe, en tanto que las irradiadas con factor de avance 93 llegan a un campo de 7,6 Oe y las de factor de avance 186 alcanzan los 8 Oe. En trabajos anteriores se ha demostrado que el tamaño y distribución de precipitados estaría influyendo en el campo coercitivo en concordancia con los resultados obtenidos.

En investigaciones llevadas a cabo en aleaciones hierro-cobre envejecidas artificialmente⁵⁴ para lograr una estructura de daño similar a la producida por irradiación neutrónica en cuanto a los precipitados ricos en cobre, se han obtenidos resultados similares referidos a la dependencia del campo coercitivo con el tamaño y distribución de precipitados. En dichas investigaciones tanto el tamaño como la distribución de los precipitados se controlan con el tiempo y la temperatura del tratamiento térmico de envejecido.

Actualmente no existen publicados otros trabajos que comprueben la relación entre el campo coercitivo y el grado de fragilización del acero irradiado.

Referido al ensayo Small Punch, las distintas bibliografías^{55,56,57} sugieren una relación lineal entre la temperatura de transición del ensayo de impacto Charpy (T_{CVN}) y la obtenida con SPT (T_{SP}). La expresión utilizada es la siguiente:

$$T_{CVN}[K] = \alpha \cdot T_{SP}[K]$$

donde α es un valor entre 2,30 y 2,75 según la Figura V.2.

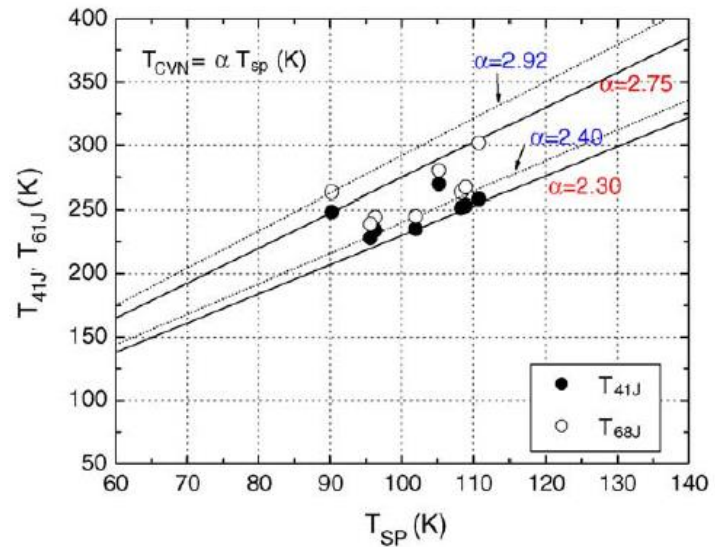


Figura V.2. Valores de α para T_{41J} y T_{68J}

Si consideramos T_{41J} como temperatura de transición del ensayo Charpy, como lo muestra la Figura V.3, este valor es de aproximadamente $-21\text{ }^{\circ}\text{C} = 252\text{ K}$. Para calcular la temperatura de transición en Small Punch se toma la temperatura correspondiente a la energía media en la zona de transición como se ve en la Figura V.4 y sugiere la bibliografía [A], $E_{SP} = -175\text{ }^{\circ}\text{C} = 98\text{ K}$.

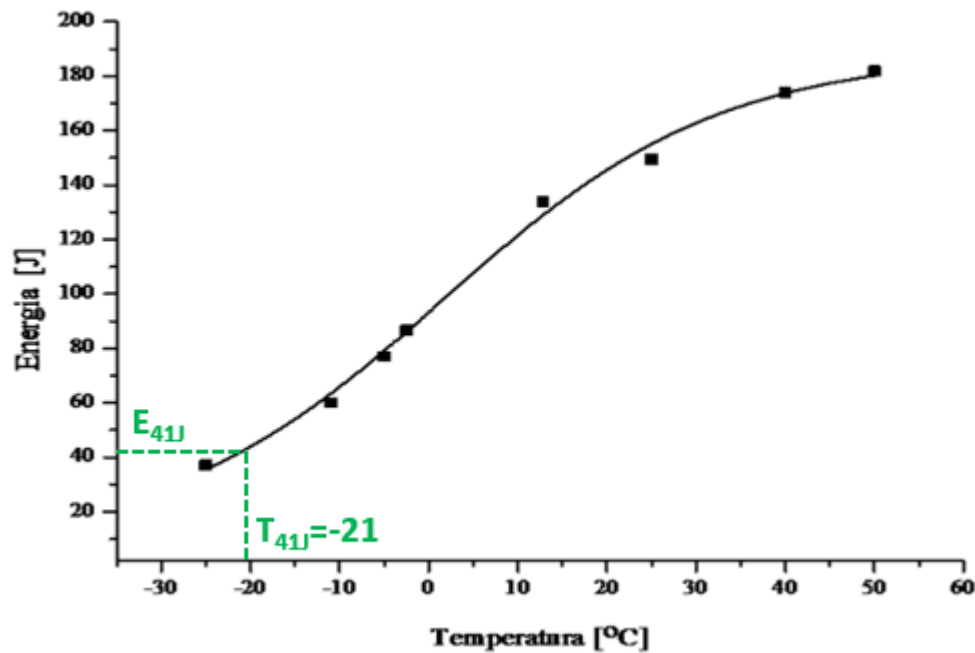


Figura V.3. Determinación de la temperatura de transición T_{41J} en el ensayo de impacto Charpy

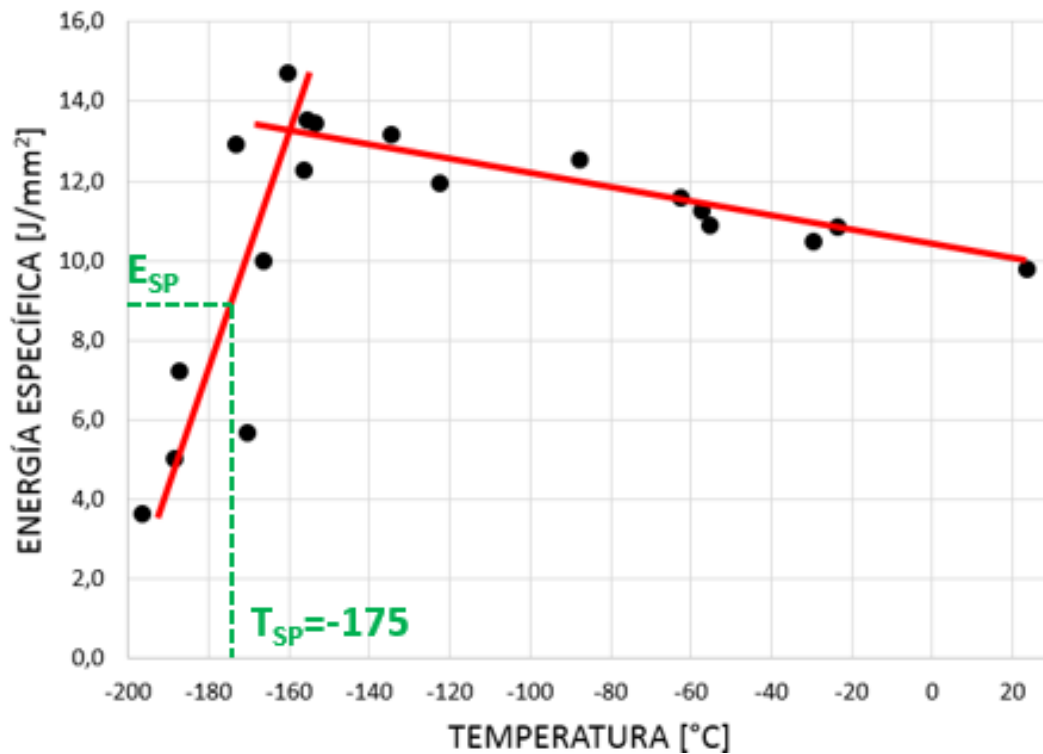


Figura V.4. Determinación de la temperatura de transición T_{SP} en el ensayo Small Punch

Despejando de la ecuación anterior el valor de α se obtiene:

$$\alpha = \frac{T_{CVN}[K]}{T_{SP}[K]} = \frac{252\text{ K}}{98\text{ K}} = 2,57$$

Este valor concuerda con los informados por las diversas bibliografías como ya fue mencionado anteriormente.

CONCLUSIONES

- Se logró planificar y comenzar la irradiación del tercer juego de probetas Charpy a un nivel de flujo cuarta parte del flujo máximo.
- Se incorporaron probetas de SPT a la irradiación actual con el objetivo de obtener y evaluar la curva de transición dúctil-frágil y compararla con la curva obtenida mediante ensayo de impacto con probetas Charpy.
- Se diseñó un nuevo dispositivo de irradiación mecanizado a partir de un solo caño de aluminio, minimizando la cantidad de partes a unir y por lo tanto, reduciendo la posibilidad de falla mecánica.
- Se desarrolló un nuevo portaprobeta con capacidad para 8 probetas Charpy y del orden de las 100 probetas para SPT.
- Los resultados de las magnetometrías del material irradiado y recocido de manera de eliminar o reducir el daño en la matriz SMD, estarían corroborando que la principal componente de la fragilización del material serían los CRP para este acero en particular que contiene cobre.
- Se logró diseñar y construir el dispositivo y la cámara de ensayo para bajas temperaturas para SPT.
- Se evaluó el efecto de la velocidad de ensayo y los espesores de las probetas en el ensayo SPT.
- Se ensayaron una serie de probetas de material sin irradiar y se pudo comparar la temperatura de transición con la obtenida en el ensayo de impacto Charpy obteniendo un valor de α del orden del sugerido en bibliografía.
- Los resultados de los ensayos Small Punch son muy prometedores en la evaluación de material irradiado ya que la reducida masa de las muestras minimizan la dosis en el personal.
- Como trabajo a futuro es menester realizar los mismos ensayos al material irradiado, obtener las temperaturas de transición, compararlas con las del ensayo Charpy y analizar los resultados.

Referencias

- * R. Kempf. Tesis doctoral. Instituto Sábato. 2013.
- ¹ G.E. Lucas y G.R. Odette, "Advances in Understanding Radiation Hardening and Embrittlement Mechanisms in Pressure Vessels Steels", Proceedings of the Second International Symposium on Environmental Degradation Materials in Nuclear Power Systems-Water Reactors, ANS, Illinois, (1986)345.
- ² G.E. Lucas "An Evolution Of Understanding Of Reactor Pressure Vessel Embrittlement", J. Nucl. Mater. 407 (2010) 59-69
- ³ T. De la Rubia, V VBulatov, MRS Bull 26 (2001) 169.
- ⁴ S. Jumel, J.C Van Uysen, J. Ruste, C. Domain, J. Nucl. Mater. 346 (2005) 79-97
- ⁵ G. R. Odette, B. D. Wirth, D.J. Bacon, N.M. Ghoniem, MRS Bull, 26 (2001) 176.
- ⁶ S.J.Zinkle, M.K. Miller "Advanced in microstructural characterization" J. Nucl. Mater. 386-388 (2009) 8-14.
- ⁷ G. R. Odette and G.E. Lucas, Radiat. Eff. Def. Solids 144 (1998) 189-231.
- ⁸ S.B Fisher, J.E Harbottle, N. Aldrige, Philos. Trans. Roy. Soc. London A 315 (1985) 301.
- ⁹ S.B Fisher, J.T Buswell, International Journal of Pressure Vessels and Piping 27 (1987) 91.
- ¹⁰ K.C. Russel and L.M. Brown, Acta. Met.20 (1972) 969.
- ¹¹ G.R. Odette, T. Yamamoto, D. Klingensmith, "On the Effects of Dose Rate on Irradiation Hardening of RPV Steels", Philos. Mag. 85 (2005) 779–797.
- ¹² W. Server, C. English, D.Naiman, S Rosinski, Charpy Embrittlement Correlations Status of Combined Mechanistic and Statistical Bases for U.S. RPR Steels (MRP-45), PWR Materials Reliability Program (PWRMRP) 1000705, Final report, (2001).
- ¹³ B. D Wirth, On the Character of Nano-Scale Features in Reactor Pressure Vessel Steels Under neutron irradiation, Ph. D. Thesis, Departament of Materials, UC Santa Barbara, (1998).

-
- ¹⁴ EPRI-CRIEPI Workshop on Dose rate Effects in RPR Materials, Olympic Valley, CA, US, November (2001) 12-14 EPRI, Palo Alto, California: 2002, and CRIEPI, Tokyo, Japan (2003).
- ¹⁵ R. Chaoudi, R. Gerard, J. Nucl. Mat. 418 (2011) 137-142
- ¹⁶ S. Jumel, J. C. Van Duysen, J. Ruste, C. Domain, J. Nucl. Mat. 346 (2005) 79-97.
- ¹⁷ M. Caro and A. Caro, Phil. Mag. 80 (2000) 1365-1378.
- ¹⁸ Design of a Surveillance Program for LWR Pressure Vessels (ASTM E185-02, E900-02).
- ¹⁹ “Programa de Vigilancia del Recipiente a presión CNA1. Análisis de seguridad” CNEA- Informe técnico nº 007/93.
- ²⁰ F. A. Smidt, Scripta Met. 4 (1970) 517-520.
- ²¹ D.S. Gelles, M.L. Hamilton y R.E. Schäublin, en Effect of Radiation on Materials, 20th Int. Symposium, ASTM-STP 1405 (2001), 523-534.
- ²² Anderson T. L. (1995), "Fracture Mechanics. Fundamental and Applications", 2nd ed., CRC Press Inc., Boca Ratón, EEUU.
- ²³ Guided Charpy Embrittlement Correlation for Reactor Pressure Vessel Integrity Assessment,” Effects of Radiation on Materials: 21stInternational Symposium, ASTM STP 1447.
- ²⁴ B.N. Singh, A.J.E. Foreman, H. Trinkaus, “Radiation hardening revisited: role of intracascade clustering”, Journal of Nuclear Materials 249 (1997) 103-115]
- ²⁵ Seeger, in: Proc. 2nd UN Int. Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, Sept. 1958, Vol. 6, p. 250
- ²⁶ M.W. Thompson, “Defects and Radiation Damage in Metals”, Cambridge University Press, (1969), 264.
- ²⁷ A.M. Fortis, “Daño por Radiación”, IS/A-84/12 – (2012) CNEA
- ²⁸ J.A. Brinkman, Am. J. Phys., **24**, nº 1-9, (1956), 246.
- ²⁹ A. Seeger, Proc. Second. International Conf. on Peaceful uses of Atomic Energy, New York, (1958), 250.

-
- ³⁰ G.H. Kinchin y R.S. Pease, Report on the Progress in Physics, **18**, (1955), 1.
- ³¹ M.J. Norgett, M.T. Robinson, e I.M. Torrens, Nucl. Eng. Des.,**33**, (1975), 50.
- ³² T. Diaz de la Rubia y M.W. Guinan, Mat. Sci. Forum 97-99, (1992), 23.
- ³³ W. Schilling and Hans Ullmaier, Physics of Radiation Damage in Metals, Materials Science and Technology A Comprehensive Treatement, Ed. R.W. Cahn, P. Haasen and E.J. Kramer, Vol. 10 B, Nuclear Materials, Vol. Ed. B.R.T. Frost, VCH, 1994, p205
- ³⁴ A.J.E. Foreman, W.J. Phyntian y C.A. English, Philos. Mag. A, 66 (1992),671
- ³⁵ M.J. Makin, Simposium on the Nature of Small Defect Clusters, Unclassified UKAEA report AERE-R-5269, (1966).
- ³⁶ R.W.Gilbert, K. Farrell y C.E. Coleman, J. of Nucl. Mat,84, (1979).
- ³⁷ R.C. Birtcher, T.H. Blewitt, B.S, Brown y T.L. Scott, Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals, Vol I, (1975)
- ³⁸ F.W. Young, Jr, en “Radiation Damage in Metals”, American Soc. for Metals, Metals Park, Ohio, (1976), 95.
- ³⁹ H.C. González y E. Bisogni, Phys. Stat. Sol.(a), 62, (1980).
- ⁴⁰ Results of the IAEA Coordinated Research Programs on Irradiation Effects on Advanced Pressure Vessel Steels, ASTM, STP 870, 1985
- ⁴¹ Stoller, R. E, The Role of Point Defect Clusters in Reactor Pressure Vessel Embrittlement, Sixth International Symposium on Environmental Degradation of Materials inNuclear Power Systems- Water Reactors, August 1-5, 1993, San Diego, California, TMS,Warrendale, (1993), pp. 747 - 754.
- ⁴² Juan Longino (CAB), comunicación privada.
- ⁴³ R.Kempf, D. Anello, A.Fortis. “Diseño de una facilidad para irradiar a altas temperaturas”, DxR-NT 1/08 (2008).
- ⁴⁴ Nuclear Power Plant Atucha II: Preliminary Safety Analysis Report, CAI-1981. CNEA- Biblioteca Leo Falicov, CAB.

-
- ⁴⁵ M. Brumovsky et al., “IAEA Coordinated Research Project on Assuring Structural Integrity of Reactor Pressure Vessels”, IAEA TecDoc Draft, (2002).
- ⁴⁶ CEN. CWA15627. Small Punch Test Method for Metallic Materials. 2006.
- ⁴⁷ H.Kronmuller and M. Fahnle, “Micromagnetism and the Microstructure of Ferromagnetic Solids” (Cambridge University Press, Cambridge, 2003).
- ⁴⁸ J. Autillo, M. A. Contreras, C. Betegón, C. Rodríguez¹ y F.J. Belzunce. Utilización del ensayo miniatura de punzonamiento (Small Punch Test) en la caracterización mecánica de aceros. *Anales de Mecánica de la Fractura* Vol. I (2006).
- ⁴⁹ P. Asoka Kumar, B.D. Wirth "Composition and Magnetic Character of Nanometer-Size Cu Precipitates in Reactor Pressure Vessel Steels: Implications for Nuclear Power Plant Lifetime Extension”, *Philosophical Magazine Letters* 4, (2002).
- ⁵⁰ D. E. Alexander, B.J. Kestel, P. R. Jemian, G. R. Odette, D. Klingensmith and D. Gragg, *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* 540 (1999) 415.
- ⁵¹ P. Asoka-Kumar, B.D. Wirth, P.A. Sterne, R.H. Howell and G.R. Odette, *Philos. Mag. Letters* 82 (2002) 609–615.
- ⁵² B. A. Gurovich, E.A Kuleshova, O.V Lavrenchuk, K. E. Prikhodko, Ya. I. Shtrombakh, *J. Nucl. Mat.* 264 (1999) 333-353.
- ⁵³ E. Mader, Kinetics of irradiation embrittlement and the post irradiation annealing of nuclear reactor pressure vessel steels, Ph. D. Thesis, Department of Materials, UC Santa Barbara (1995).
- ⁵⁴ Yi Li, Yuanfei Li, Shanquan Deng, Ben Xu, Qiulin Li, Guogang Shu and Wei Liu. Changes in the magnetic and mechanical properties of thermally aged Fe–Cu alloys due to nano-sized precipitates. *J. Phys. D: Appl. Phys.* 49 (2016) 035006 (7pp).
- ⁵⁵ Min-Chul Kim, Yong Jun Oh, Bong Sang Lee. Evaluation of ductile–brittle transition temperature before and after neutron irradiation for RPV steels using small punch tests. *Nuclear Engineering and Design* 235 (2005) 1799–1805.
- ⁵⁶ Mc Naney, J., Lucas, G.E., Odette, G.R., 1991. Application of ball punch tests to evaluating fracture mode transition in ferritic steels. *J. Nucl. Mater.* 179–181, 429–433.
- ⁵⁷ Misawa, T., Adachi, T., Saito, M., Hamaguchi, Y., 1987. Small punch tests for evaluating ductile–brittle transition behavior of irradiated ferritic steels. *J. Nucl. Mater.* 150, 194–202.