

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

Caracterización de la fractura intergranular de Ni por burbujas de He ^(*)

por Luciano E. Rielo

**Director del trabajo
Dr. Juan E. Ramos Nervi**

**Codirector del trabajo
Dr. Julián R. Fernández**

**Tutor
Ing. Rodrigo Meza Quiñones**

^(*) Trabajo de Seminario – Ingeniería en Materiales

República Argentina

2023

RESUMEN

El Ni presenta una propiedad nuclear única que limita la vida útil de ciertos componentes en el interior del reactor que contienen cantidades significativas de este metal. La exposición prolongada a un flujo de neutrones térmicos produce el isótopo ^{59}Ni a partir del ^{58}Ni , el cuál incrementa la producción de He. El objetivo del trabajo es calcular el porcentaje umbral de BG cubierto por burbujas de He (%GBCA) al cuál una aleación base de Ni puede fallar debido a fragilización intergranular, y estudiar la tendencia de este umbral con el aumento de la temperatura. Para ello, se calcula la fractotenacidad de bicristales de Ni puro con distinto %GBCA. Para simular los ensayos de tracción se utilizó LAMMPS, un código libre de dinámica molecular. Los ensayos de tracción se realizaron en una microprobeta con una entalla en el BG, a tasa de deformación y temperatura constantes. Se emplearon distintas tasas de deformación con el fin de encontrar una óptima. Se desarrolló un algoritmo que genera distribuciones de burbujas de He para embeber en las microprobetas de Ni, en base al análisis de anillos espaciadores *ex service* CANDU. Se realizaron 5 ensayos de tracción a 473 K que se utilizaron para validar la metodología de cálculo comparando con la literatura. Luego se elaboraron 12 probetas más para ensayar a 573K y generar un gráfico de fractotenacidad en función del %GBCA. Los resultados mostraron que a 573K el umbral aumento un 2%, respecto 473K.

Palabras clave: Dinámica Molecular, Fragilización por He, Aleaciones base Ni, LAMMPS

ABSTRACT

Ni has a unique nuclear property that limits the service life of certain reactor internal components that contain significant amounts of this metal. Prolonged exposure to a thermal neutron flux produces the isotope ^{59}Ni from ^{58}Ni , which increases the production of He. The objective of the work is to calculate the threshold percentage of BG covered by He bubbles (%GBCA) at which a base alloy of Ni can fail due to intergranular embrittlement, and study the tendency of this threshold with increasing temperature. For this, the fractoténacity of bicrystals of pure Ni with different %GBCA is calculated. LAMMPS, a free code of molecular dynamics, was used to simulate tensile tests. The tensile tests were performed on microspecimens with a crack in the BG, at a constant strain rate and temperature. Different strain rates were used in order to find an optimal one. An algorithm was developed that generates distributions of He bubbles to embed in the microspecimens of Ni, based on the analysis of ex-service CANDU annular spacers. There were 5 tensile tests at 473 K that were used to validate the calculation methodology comparing with the literature. Then 15 more specimens were developed to test at 573K and generate a graph of fractoténacity as a function of %GBCA. The results showed that at 573K the threshold increased by 2%, compared to the value corresponding at 473K.

Key words: Molecular Dynamic, He Embrittlement, Ni alloys, LAMMPS

AGRADECIMIENTOS

Al Dr. Juan E. Ramos Nervi y al Ing. Rodrigo Meza, junto con el resto del equipo del dpto. de ingeniería en materiales y diseño de combustibles. A lo largo de este trabajo todos demostraron un compromiso excepcional con mi crecimiento académico y profesional. Quiero expresar mi gratitud por el apoyo, y orientación que me brindaron desde Nucleoeléctrica Argentina S. A.

Su guía experta y dedicación me brindaron la confianza y los conocimientos necesarios para enfrentar los desafíos que surgieron a lo largo del camino. Su disponibilidad constante y su voluntad de compartir su experiencia fueron fundamentales para la mejora continua de este trabajo. Debido a su iniciativa y visión este proyecto pudo comenzar, y estoy sinceramente agradecido por la oportunidad de continuar su trabajo. Al Dr. Julián R. Fernández, muchas gracias.

Eduardo y Patricia...

A lo largo de mi carrera de ingeniería y, de hecho, a lo largo de toda mi vida, han sido mi fuente constante de amor, apoyo y aliento. Su dedicación inquebrantable y su compromiso con mi éxito han sido el cimiento sobre el cual he construido, y seguiré construyendo, cada uno de mis logros. Ustedes fueron quienes me enseñaron los valores de la perseverancia, la disciplina y el trabajo arduo. A mi vieja, la persona más fuerte de este mundo, cuyo amor incondicional por sus hijos trasciende cualquier explicación que pueda ofrecer cualquier artículo científico. A mi viejo, el tipo más divertido y alegre, que siempre está sacándonos mil y una sonrisas a todos los que lo rodeamos. Los amo infinitamente y les agradezco por darme la oportunidad de convertirme en la persona y el ingeniero que soy hoy.

Queridos papá y mamá, este logro también es de ustedes.

ABREVIATURAS

BG	Borde de grano
DM	Dinámica molecular
MC	Monte Carlo
CSL	Coincidence Site Lattice
LAMMPS	Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator
GC	Gradiente Conjugado
CM	Centro de Masa
EAM	Embedded-Atom Model
BDZ	Bubble Depleted Zone
CANDU	Canada Deuterium Uranium
CNA	Centrales Nucleares Atucha
CNA-I	Central Nuclear Atucha I
LWRs	Light Water Reactors
PHWRs	Pressure Heavy Water Reactors
GBCA	Grain Boundary Covered Area
LOCA	Loss of Coolant Accident

OBJETIVO

Este trabajo final de carrera de grado en ingeniería en materiales tiene como objetivo comprender el estudio de M. Demkowicz sobre el efecto de la fragilización por He en el Ni, donde estimó el %GBCA umbral para que ocurra fractura frágil intergranular en un BG $\Sigma 9\{111\}/\{115\}$ a 473 K, reproducir su metodología de cálculo de fractoténacidad mediante técnicas de simulación computacional con dinámica molecular, y finalmente observar la tendencia de este umbral con mayores temperaturas.

ÍNDICE

1. INTRODUCCIÓN	7
1.1. Central Nuclear Atucha I	7
1.2. Primeras visualizaciones de helio en níquel en reactores PHWRs	7
1.3. Efecto de la radiación en las aleaciones base níquel	9
2. MOTIVACIÓN	11
3. MODELIZACIÓN	12
3.1. Métodos de modelado	12
3.2. Dinámica molecular	12
3.3. LAMMPS	13
3.4. OVITO	14
3.5. Red de Sitios Coincidentes	14
4. DESARROLLO COMPUTACIONAL	16
4.1. Construcción del borde de grano	16
4.1.1. Orientación de los cristales	16
4.1.2. Superficie gamma	17
4.1.3. Optimización del desplazamiento del cristal	20
4.2. Ensayo de tracción	22
4.2.1. Procedimiento	23
4.2.2. Tasa de deformación	24
4.3. Algoritmo de distribución de burbujas de He	26
4.4. Fractoténacidad	28
4.5. Cálculo del área de cobertura real de borde de grano	30
5. RESULTADOS	32
5.1. Validación de la metodología de cálculo	32
5.2. Efecto del área de cobertura por burbujas de He en borde de grano	34
6. CONCLUSIONES	41
7. BIBLIOGRAFÍA	43

1. INTRODUCCIÓN

1.1. Central Nuclear Atucha I

Sobre el margen derecho del río Paraná de las Palmas, a 100 km de la Ciudad Autónoma de Buenos Aires, en la localidad de Lima del partido de Zárate, se encuentra el complejo nuclear Atucha, donde funcionan las centrales nucleares Atucha I y II.

La central nuclear Atucha I (CNA-I), de diseño alemán, desarrollado por KWU, fue la primera central de potencia de América Latina. La central es refrigerada y moderada con agua pesada (D_2O). A diferencia del agua común, el agua pesada incluye en su fórmula dos átomos de deuterio y uno de oxígeno. El deuterio a diferencia del hidrógeno posee un neutrón más en su núcleo. Para que una reacción en cadena se sostenga en el tiempo, es necesario que los neutrones liberados en cada colisión “sobrevivan” para producir nuevos choques, y así dar lugar a sucesivas fisiones. Eso se logra en un reactor mediante un elemento moderador. El agua pesada absorbe aproximadamente 70 veces menos neutrones que el agua común y esta propiedad la hace ideal como agente moderador en ciertos reactores nucleares, como CNA-I. En los reactores nucleares alimentados con uranio natural debe usarse agua pesada como moderador. El más popular de los reactores de este tipo es el CANDU.

CNA-I está equipada con un reactor de tipo PHWR de diseño Siemens/KWU. El reactor y las partes más importantes de la instalación se encuentran dentro de una esfera de acero de 50 m de diámetro, con un volumen libre de 50800 m^3 . Utiliza uranio natural como combustible, y tiene recambios de este durante operación (*on-line refuelling*). Entró en operación comercial en 1974 y contribuye con 380 MW eléctricos al Sistema Interconectado Nacional [1].

1.2. Primeras visualizaciones de helio en níquel en reactores PHWRs

Distintas aleaciones base níquel han sido utilizadas a lo largo del desarrollo de la industria nuclear debido a su resistencia a la corrosión y propiedades mecánicas a altas temperaturas. Sin embargo, inicialmente cuando las plantas nucleares fueron construidas, el comportamiento de las aleaciones base níquel luego de largos periodos de operación en el interno de los reactores nucleares no era completamente conocido.

Los componentes base Ni sometidos a radiación en LWRs, son afectados principalmente por el fenómeno de corrosión bajo tensión. En los componentes de aleaciones base Ni utilizados en PHWRs otro mecanismo de degradación cobra importancia, y es denominado como fragilización por He. Este último es promovido por los altos flujos de neutrones térmicos producto del uso de agua pesada en ese tipo de reactores [2].

Los primeros detectores de flujo neutrónico utilizados en reactores CANDU consistían en cables coaxiales con aislación mineral de MgO e Inconel 600 como núcleo. La integridad del recubrimiento y la continuidad del núcleo del detector deben mantenerse en condiciones para una adecuada operación. Durante el tiempo en servicio de estos reactores CANDU, se generaban cada vez más síntomas de falla de detectores, como pueden ser señales ruidosas, picos de señales o pérdida de señal. Grant Bickel et al. (2010) [3] realizaron el análisis de esos detectores y hallaron que la reducción de propiedades mecánicas del Inconel se debía a la combinación de irradiación y altas temperatura. Encontraron discontinuidades en los núcleos de Inconel debido a la fragilización del material. También hallaron que la degradación era menor en los detectores expuestos a menores temperaturas.

En las centrales CANDU existen dispositivos denominados anillos espaciadores (*garter springs*) cuya función es evitar el contacto entre los tubos de presión y los tubos de calandria (Figura 1). Si hubiera contacto entre esos dos tubos, un alto gradiente de temperatura induciría tensiones de origen térmico en el tubo de presión generando fisuras y una posterior fuga del refrigerante. A esta falla se la denomina LOCA (*Loss of Coolant Accident*). En este caso los anillos espaciadores son fabricados de Inconel X-750. Judge y col. (2014) [4] estudiaron anillos que estuvieron en servicio varios años. Estos anillos mostraron ductilidad y capacidad de carga reducida respecto a las propiedades del material antes de ser irradiado. El modo de falla de estos dispositivos, luego de estar 10 años en servicio, resultó ser por fractura frágil intergranular. A partir de distintos métodos de caracterización, como TEM, DRX, y EELS lograron obtener la distribución de diámetros de burbujas y cavidades, tanto en la matriz como en BG. Además, encontraron que la presencia de He coincidía con la posición de dichas cavidades (Figura 2). Dedujeron que la propagación de una fractura frágil intergranular en aleaciones base Ni se relaciona con la presencia de burbujas de He en BG.

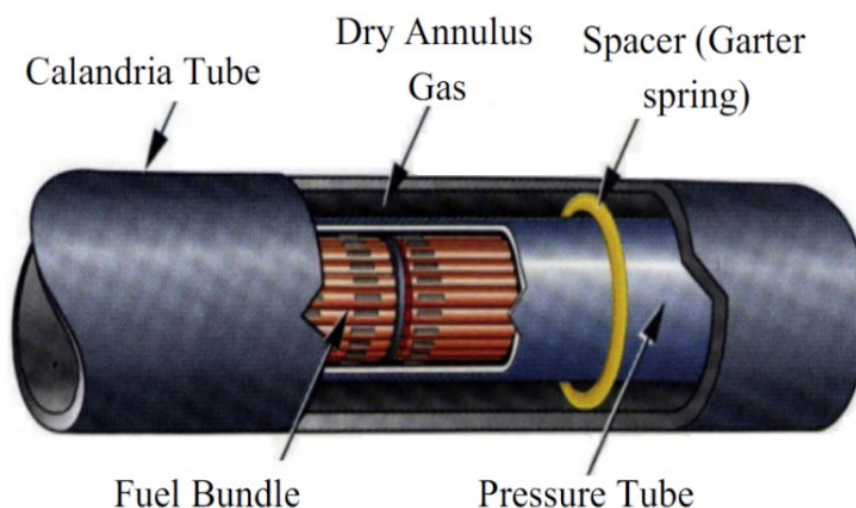


Figura 1. Esquema representativo de un canal de combustible en un reactor CANDU [4].

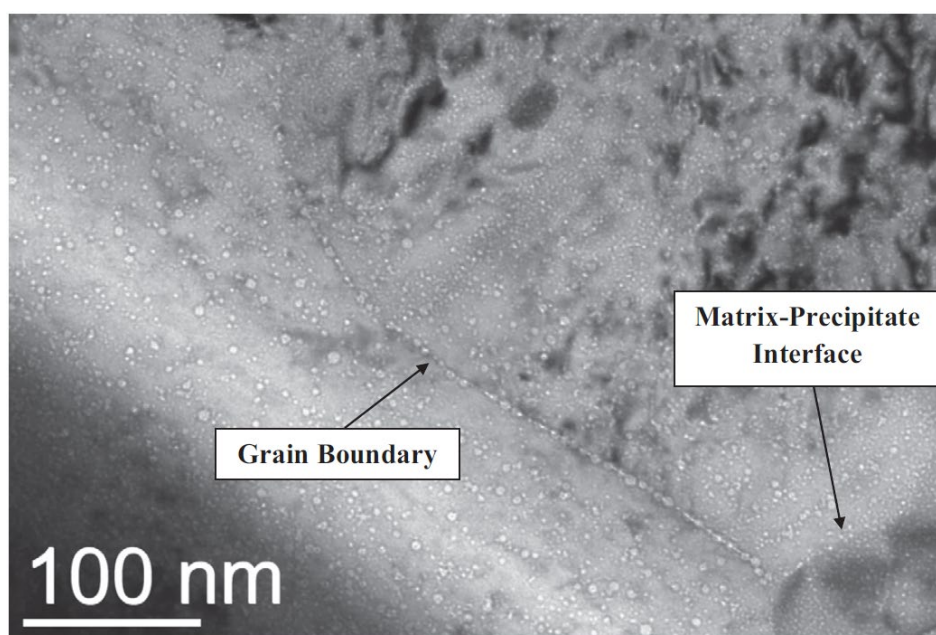


Figura 2. Micrografía TEM. Alineación de burbujas en borde de grano y en la interfase matriz-precipitado luego de haber irradiado a 300-330°C hasta ≈ 55 dpa y 18.000 appm He [4].

1.3. Efecto de la radiación en las aleaciones base níquel

El níquel tiene una propiedad nuclear muy particular, y es causante del presente trabajo final de carrera de grado: tiene una relativamente alta sección eficaz frente la absorción de neutrones térmicos, comparado con el resto de los elementos. Esto limita la vida útil de componentes en internos de reactor fabricados de aleaciones que contienen cantidades significativas de este metal. Ejemplos de estos componentes en internos de reactor pueden ser anillos separadores, bridas, o sujetadores tales como bulones y pines.

El aspecto de mayor criticidad de las aleaciones base Ni utilizadas en internos de reactores nucleares son el aumento de dpa y la producción de gases (He y H) que ocurren como resultado de las reacciones de transmutación del Ni, cuya tasa de reacción depende del espectro neutrónico y del tiempo de exposición. Largo tiempo de exposición en un flujo de neutrones térmicos resulta en la producción de ^{59}Ni a partir del ^{58}Ni , que es el isótopo principal del Ni. Una vez producida una suficiente cantidad del isótopo ^{59}Ni , el cual tiene muy alta sección eficaz para las reacciones tipo (n, γ), (n,p) y (n, α), resulta en un incremento de la tasa de producción de H, He y dpa.

La transmutación en dos etapas del ^{58}Ni , a ^{59}Ni , y subsecuentemente en reacciones (n, γ), (n,p) y (n, α) es:

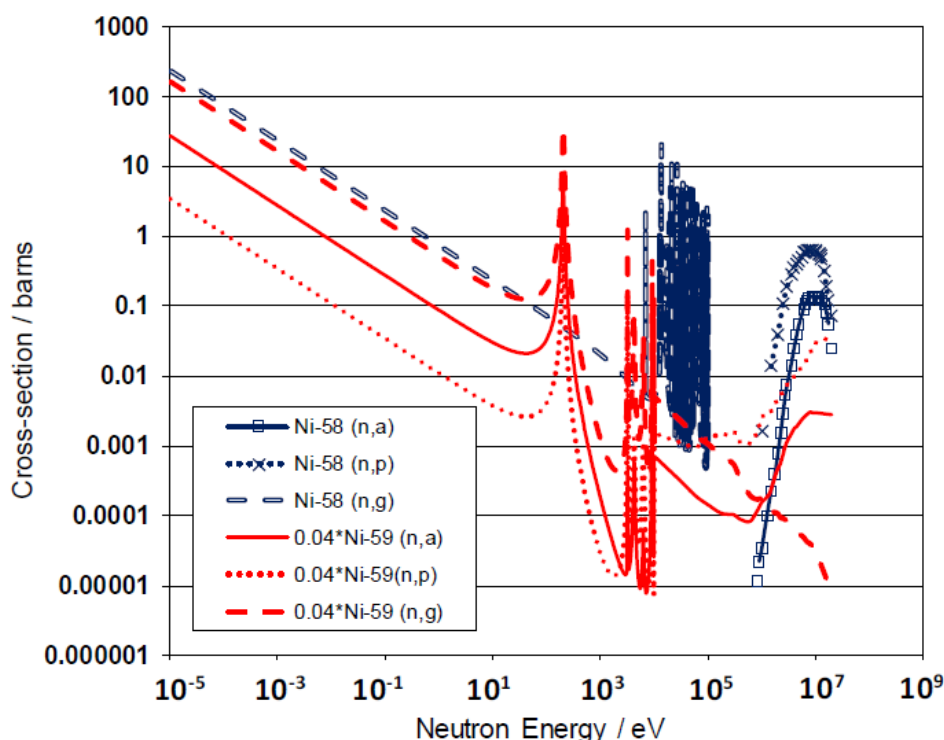
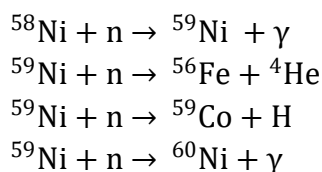


Figura 3. Sección eficaz de reacción de ^{59}Ni y ^{58}Ni (n, α), (n, p), y (n, γ) en función de la energía neutrónica. La sección eficaz de ^{59}Ni fue escalada a un factor de 0.04, que es el contenido de ^{59}Ni relativo a la cantidad de ^{58}Ni luego de 5 años de operación en el interno de un reactor CANDU [2].

El ^{59}Ni no se encuentra naturalmente en los componentes de un reactor, este se produce en presencia de un flujo neutrónico. En un reactor CANDU la concentración de ^{59}Ni alcanza un máximo de 4% de concentración luego de 5-10 años en servicio, dependiendo en que zona del

interno del reactor se encuentre. La fluencia de neutrones térmicos ($E < 0.5$ eV) necesaria para alcanzar dicho pico de concentración de ^{59}Ni es cerca de $4 \times 10^{22} \text{ n cm}^{-2}$. Las reacciones $^{59}\text{Ni} (n, p)$ y $^{59}\text{Ni} (n, \alpha)$ son importantes ya que se extienden a través de un amplio rango de energías. Todos los isótopos naturales de los elementos principales utilizados en aleaciones ingenieriles (Fe, Cr y Ni) tienen relativamente alta sección eficaz de reacción (n, p) y (n, α) , aunque solo significativa en flujos de neutrones de alta energía ($E > 1$ MeV). Generalmente, en reactores que utilizan agua pesada como moderador, la cantidad de neutrones de alta energía se ve reducida. Por otro lado, la sección eficaz de reacción (n, p) y (n, α) para ^{59}Ni es muy alta únicamente en flujos de neutrones térmicos ($E < 0.5$ eV). En la Figura 3 se comparan las secciones eficaces de las reacciones (n, p) , (n, α) y (n, γ) correspondientes al pico de concentración de ^{59}Ni en el interno de un reactor CANDU (≈ 4 at%) con las mismas secciones eficaces de reacción de ^{58}Ni . Para el ^{59}Ni , la sección eficaz se escala por un factor de 0.04 correspondiente a la concentración relativa respecto al ^{58}Ni [2,5].

2. MOTIVACIÓN

Como consecuencia de la irradiación neutrónica y la temperatura, los materiales de los internos del reactor sean aceros inoxidable, aleaciones base níquel, aleaciones de circonio o hafnio, todas experimentan determinada pérdida de ductilidad a la tracción y de la tenacidad a la fractura. Este fenómeno se debe fundamentalmente a la fragilización por irradiación. Las aleaciones base níquel pueden presentar principalmente fragilización por He debido al espectro preponderantemente térmico y su acción sobre el ^{58}Ni .

La tenacidad a la fractura o fractoténacidad es la energía límite de impacto que puede absorber un material que contiene una fisura. Debido al efecto de la irradiación neutrónica, la temperatura y el medio en el núcleo del reactor en la tenacidad a la fractura de internos del reactor, se debe evaluar si la pérdida de esta propiedad afecta al desempeño del componente ante los distintos estados de carga de la planta a fin de garantizar su funcionalidad.

En general, los internos de las CNA están fabricados a partir de aleaciones austeníticas, como pueden ser Inconel X-750, o aceros austeníticos SA347 y SA304. Todas las anteriores contienen una cantidad significativa de Ni y se encuentran bajo relativamente altos flujos de neutrones térmicos, por lo que son propensas a la fragilización por He.

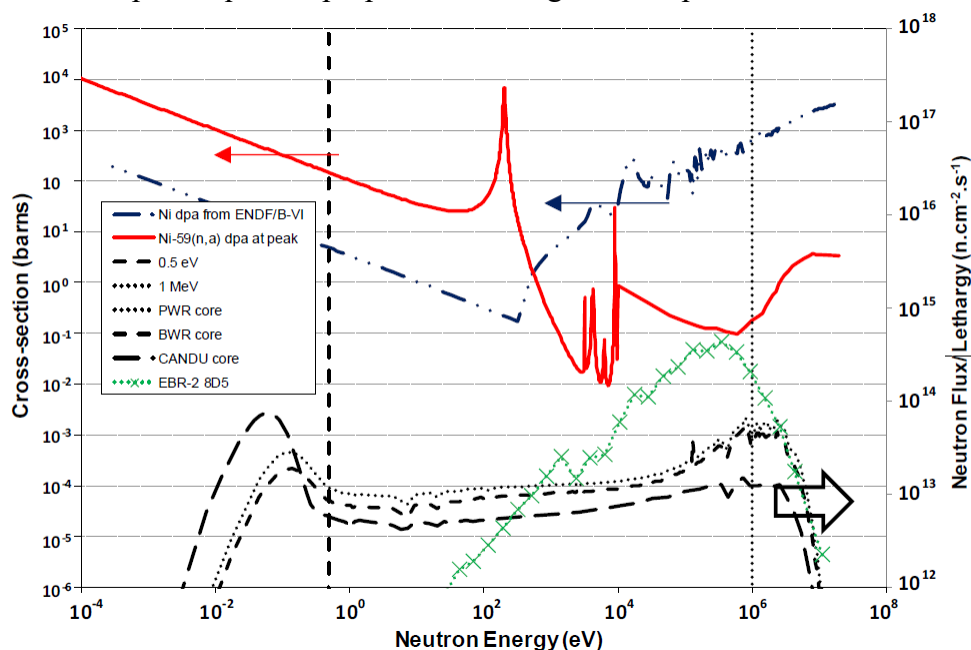


Figura 4. Sección eficaz de desplazamiento atómico para el Ni (escala a la izquierda), y espectro neutrónico para reactores PWR, BWR, CANDU, y EBR-II (escala a la derecha) [2].

En la Figura 4 se puede observar el flujo neutrónico al cual se encuentran sometido los internos de una central CANDU [2]. Debido a la similitud entre el espectro neutrónico en los internos de las CNA con las centrales tipo CANDU, en este trabajo realizaremos el estudio del daño por radiación en internos de Inconel X-750 en CNA a partir de resultados experimentales obtenidos de los anillos espaciadores de esa misma aleación utilizados en centrales CANDU [4].

3. MODELIZACIÓN

3.1. Métodos de modelado

Debido a las nuevas mejoras en el poder del cálculo digital, la metodología de simulación computacional se convirtió en una herramienta muy importante para el estudio de sistemas de muchas partículas. Para estudios teóricos de sólidos se utilizan comúnmente cálculos de estructura electrónica de primeros principios (*ab initio*), simulaciones clásicas de dinámica molecular (DM) o Monte Carlo (MC). Históricamente, cada uno de estos métodos ha sido utilizado principalmente en forma aislada, aunque en los últimos años los métodos *ab initio* están cobrando importancia en uso directo en DM y fundamentalmente como una manera de generar potenciales interatómicos para ser usados con los otros métodos de simulación con campos de fuerzas. Los recursos computacionales actualmente disponibles limitan el uso de las técnicas *ab initio*, que en principio son las más exactas y de mayor aplicabilidad a sistemas con celdas unitarias relativamente pequeñas. El cálculo de efectos térmicos a través del método anterior es tan exigente en requerimientos computacionales, que la mayor parte de los trabajos en los cuales se consideran temperaturas finitas, hacen uso de métodos basados en el empleo de potenciales clásicos (DM, MC) [6].

La idea básica de los métodos de DM y MC es seguir explícitamente la evolución de un sistema que involucre un gran número de grados de libertad. Si el sistema es construido apropiadamente, la trayectoria imaginada permitirá simular el comportamiento de un conjunto real de partículas, y el estudio estadístico del camino elegido permitirá realizar predicciones representativas de propiedades reales. Sin embargo, hay que considerar ciertas limitaciones: las computadoras poseen una capacidad acotada en tiempo de cómputo y en memoria, lo que implica que sólo se puede considerar un número limitado de partículas, y únicamente es posible seguir trayectorias de longitud finita. La restricción en el tiempo de cálculo influye en la calidad de la estadística que se puede obtener, y la limitación en la memoria disponible inhibe el estudio de sistemas grandes.

La técnica de dinámica molecular, que será la utilizada en este trabajo, considera un modelo de mecánica clásica para los átomos y moléculas, obteniéndose la trayectoria del sistema por integración de las ecuaciones movimiento de Newton. Como estos métodos incluyen el tiempo explícitamente, permiten calcular tanto información dinámica del sistema como propiedades estadísticas del sistema en equilibrio.

3.2. Dinámica molecular

En una simulación de DM se estudia la evolución en el tiempo de un sistema de N partículas interactuantes. Conociendo los potenciales de interacción $U(\vec{r})$ entre los átomos o moléculas del sistema, es posible obtener la fuerza que actúa sobre cada elemento [6]. Los potenciales de interacción Ni-He a utilizar en este trabajo son del tipo EAM (*Embedded Atom Model*), un método que aproxima la energía de interacción entre átomos [7]. La energía potencial de un átomo i (U_i) que se incluye en el *host*, donde este último es el sistema de átomos sin el átomo i :

$$U_i = F_i(\rho_{h_i}) + \frac{1}{2} \sum_{j \neq i}^N \phi_{ij}(\vec{r}_{ij}), \quad (3.1)$$

siendo F_i la energía de embebido del átomo i que es función de la densidad de electrones del *host* (ρ_{h_i}) en la posición $\vec{r}_i$; ϕ_{ij} es la energía de interacción entre los átomos j e i que es función de la posición relativa entre esos átomos ($\vec{r}_{ij}$). El segundo término representa la interacción que producen los núcleos de los átomos del *host* en el átomo i . Es posible simplificar:

$$\rho_{h_i} = \sum_{j \neq i}^N \rho_j^* (\vec{r}_{ij}), \quad (3.2)$$

donde ρ_j^* es la densidad de electrones de cada átomo j individualmente. Fijarse que ahora U_i es función únicamente de $\vec{r}_{ij}$. A partir de las ecuaciones (3.1) y (3.2) se puede calcular la energía de cohesión total del sistema:

$$U_T = \sum_i^N U_i = \sum_i^N \left[F_i \left(\sum_{j \neq i}^N \rho_j^* (\vec{r}_{ij}) \right) + \frac{1}{2} \sum_{j \neq i}^N \phi_{ij} (\vec{r}_{ij}) \right]. \quad (3.3)$$

La fuerza interactuante sobre cada átomo i se calcula derivando la energía total U_T con respecto a las coordenadas del átomo i :

$$\vec{f}_i = -\nabla \vec{U}_i. \quad (3.4)$$

A partir de esta ecuación es posible expresar las ecuaciones de movimiento de Newton, como:

$$\vec{f}_i = m_i \vec{a}_i. \quad (3.5)$$

En DM es posible calcular la trayectoria del sistema mediante el algoritmo de Verlet con velocidad [6]. Alrededor de un instante de tiempo t en una serie de Taylor:

$$r(t + \Delta t) = r(t) + \dot{r}(t)\Delta t + \frac{f(t)}{2m}\Delta t^2 + \ddot{r}(t)\Delta t^3 + O(\Delta t^4) \quad (3.6)$$

$$r(t - \Delta t) = r(t) - \dot{r}(t)\Delta t + \frac{f(t)}{2m}\Delta t^2 - \ddot{r}(t)\Delta t^3 + O(\Delta t^4) \quad (3.7)$$

Sumando (3.6) y (3.7) y despreciando los términos de orden 3 y superior:

$$r(t + \Delta t) \approx 2r(t) - r(t - \Delta t) + \frac{f(t)}{m}\Delta t^2 \quad (3.8)$$

La ecuación (3.8) es la utilizada para obtener la nueva posición de un átomo, la cual depende de la posición actual $r(t)$, la posición anterior $r(t - \Delta t)$, y de la fuerza aplicada en ese átomo $f(t)$, obtenida de derivar la energía total U_T , es decir, la ec. (3.4).

3.3. LAMMPS

Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator (LAMMPS) es un código de dinámica molecular creado por Sandia Nacional Laboratories. Permite modelar sistemas atómicos, poliméricos, biológicos, de estado sólido, granulares, o macroscópicos, utilizando una variedad de potenciales interatómicos y condiciones de borde. Puede trabajar sistemas en 2 o 3 dimensiones, y desde unas pocas partículas hasta billones. Puede ser utilizado en una laptop o máquina de escritorio, aunque está diseñada para computadoras que trabajan en paralelo. Es posible ejecutarlo en paralelo en máquinas que admitan MPI (*Message Passing Interface*), lo cual incluye servidores de múltiples CPU, clústeres, y supercomputadoras de memoria compartida [8].

3.4. OVITO

OVITO es un software que permite visualizar simulaciones de DM y MC. Con simulaciones por DM es posible predecir estructuras de materiales y su comportamiento a escala atómica. Este tipo de simulación computa la trayectoria tridimensional de cada una de las partículas del modelo, siendo la trayectoria de cada átomo en función del tiempo, los datos de entrada para esta herramienta de visualización. Observar en pantalla la estructura material puede ser extremadamente útil cuando los sistemas de átomos se tornan complejos. El software ofrece funciones básicas de visualización y análisis (bloques de construcción) que se pueden ensamblar en una secuencia de pasos de procesamiento (Figura 5) [9].

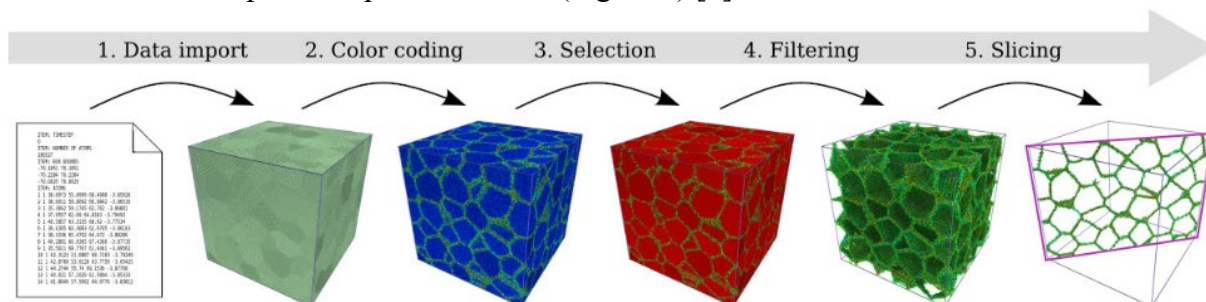


Figura 5. (1) Se importan los datos computados por DM a OVITO. (2) Se colorean átomos con distinto parámetro de centro de simetría. (3) Se seleccionan átomos con determinado parámetro de centro de simetría. (4) Se eliminan los átomos seleccionados. (5) Corte visual de la estructura material para observar en 2D la estructura de BG [9].

3.5. Red de Sitios Coincidentes

Si se pudiera prestar atención a las infinitas posibles orientaciones entre dos granos, se encontraría algunas orientaciones especiales. Esto es simple de ver al rotar una red sobre otra en 2 dimensiones. En el siguiente link se observa que ocurriría si rotamos una [red hexagonal](#) respecto a otra. Para ciertos ángulos de rotación de una red respecto a la otra, una determinada cantidad de puntos ambas redes, que no tienen por qué estar en el mismo plano, coinciden exactamente, formando una especie de superestructura denominada como red de sitios coincidentes (CSL).

La relación entre el número de puntos de red en la celda unitaria de la CSL y el número de puntos de red en la celda unitaria de la red original es denominada como Σ (Sigma). Este parámetro representa el volumen de la celda unitaria de la CSL en unidades del volumen de la celda unitaria de las celdas elementales del cristal [10].

En la Figura 6 se observa una proyección de un plano de una red cuadrada rotado respecto a otro idéntico [11]. En la figura se representan, con puntos blancos y violetas, dos redes cristalinas separadas, y con puntos los átomos que tienen sitios coincidentes. En este caso, la CSL tiene una relación $\Sigma 5$.

Ranganathan [12] propuso ecuaciones para encontrar una CSL entre dos redes cúbicas en un ángulo de desorientación Ψ alrededor de una dirección cristalográfica (hkl):

$$\tan\left(\frac{\Psi}{2}\right) = \sigma \frac{Y}{X}, \quad (3.9)$$

donde X e Y son enteros coprimos y

$$\sigma^2 = h^2 + k^2 + l^2 . \quad (3.10)$$

La densidad de la CSL, relativa a la red cúbica dada, es $1/\Sigma$, con

$$m \Sigma = X^2 + \sigma^2 Y^2 , \quad (3.11)$$

donde $m = 1$ si $X^2 + \sigma^2 Y^2$ es impar, y $m = 2$ o $m = 4$ si $X^2 + \sigma^2 Y^2$ es múltiplo de 2 o 4, respectivamente. Dichas relaciones son válidas para las redes cúbicas simple, fcc y bcc.

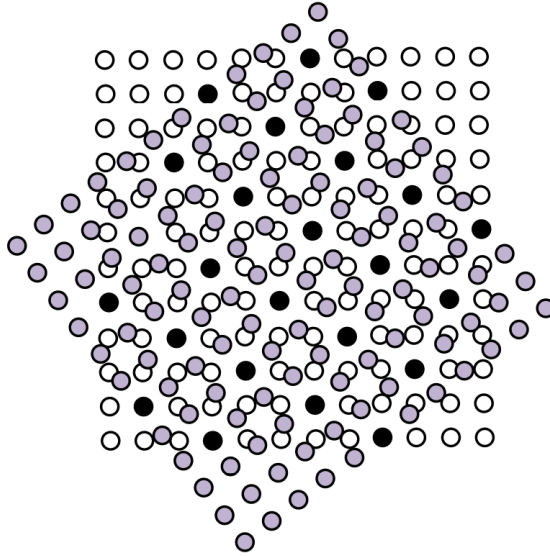


Figura 6. Red de sitios coincidentes con una relación $\Sigma 5$. Los puntos blancos y violetas representan redes cristalinas separadas, y los puntos negros son los sitios coincidentes entre ambas redes [11].

4. DESARROLLO COMPUTACIONAL

Hemos establecido anteriormente como objetivo comprender el estudio de M. Demkowicz [13], donde se realizan ensayos de tracción a través de simulaciones con DM para estimar cuál es el %GBCA umbral a partir del cual el material falla por fractura frágil intergranular debido a la presencia de burbujas de He, para luego calcular la tendencia del %GBCA umbral con mayores temperaturas. Para lograr esto, los pasos a seguir son: construir un bicristal con BG $\Sigma 9\{111\}/\{115\}$; estudiar cómo influye la tasa de deformación en nuestros ensayos de tracción; generar un algoritmo para lograr una distribución de burbujas de He y embeberla en el bicristal de Ni; obtener resultados de fractoténacidad similares a los obtenidos por M. Demkowicz para validar la metodología de cálculo; modificar la temperatura de ensayo a una mayor; finalmente analizar y discutir los resultados.

4.1. Construcción del borde de grano

Este primer desarrollo del trabajo consta de la construcción de un BG $\Sigma 9\{111\}/\{115\}$ en un bicristal de Ni puro. Para definir correctamente el BG debemos indicar 7 parámetros, los cuales estarán determinados por la orientación cristalográfica de cada cristal, por la posición relativa de desplazamiento de un cristal respecto al otro, y por la posición y orientación del plano del BG. El BG $\Sigma 9\{111\}/\{115\}$ es una CSL (ver **Error! No se encuentra el origen de la referencia.**), y es tipo tilt asimétrico. Es un BG estudiado extensamente tanto experimentalmente como por simulación computacional. Se decide trabajar con este ya que es el BG más representativo, es comúnmente encontrado en metales fcc. Se explica con más detalle al BG $\Sigma 9$ en la ref. [13].

4.1.1. Orientación de los cristales

Se comienza por la construcción de un bicristal definido por un BG específico: uno $\Sigma 9\{111\}/\{115\}$. Para ello, utilizaremos el código LAMMPS. Inicialmente en el programa se deben definir las condiciones de contorno, que en el caso de la construcción del BG, serán periódicas en todas las direcciones. Esto último nos permite trabajar con pocos átomos y obtener una buena precisión en los resultados. También se debe indicar cuál es el parámetro de red del elemento a analizar, y la energía de cohesión de cada átomo, para el Ni: $a_{\text{Ni}} = 3.52 \text{ \AA}$ y $E_{\text{coh}}^{\text{Ni}} = 4.45 \text{ eV}$, respectivamente.

Todos los átomos creados que formarán parte de la simulación en LAMMPS deberán estar contenidos en una celda de simulación que se debe generar previo a los átomos. Las dimensiones de la celda de simulación, cuyos lados serán perpendiculares a los ejes de coordenadas, deben ser conmensurables con la red de átomos. Si los lados de la celda no son conmensurables respecto a las dimensiones de las celdas unitarias, los átomos cuyo centro sobresalga de la celda automáticamente serán eliminados al correr el código. Esto último no es deseable cuando trabajamos con condiciones de contorno periódicas.

En la Figura 6 se observa un único cristal de Ni conformado por dos regiones idénticas, una región se encuentra en $z < 0$ y la otra en $z > 0$. Se desea construir al BG en el plano xy, en $z = 0$. Todos los átomos de la región superior (en rojo) forman un sistema el cual debe ser rotado de manera que su eje z pase a tener una dirección $\{115\}$ respecto la normal de la superficie del BG. El sistema inferior de átomos (en azul) deberá rotarse de manera que su eje z tenga una nueva dirección $\{111\}$ respecto la normal de la superficie del BG. Al rotar ambas regiones, estas

simularan dos cristales con distinta orientación. En la interfase entre ambos cristales se forma un BG.

Para poder rotar tanto la región superior como la inferior, debemos indicar en el código la nueva dirección de cada eje coordenado de cada región. Para ello obtenemos vectores ortogonales los cuales formen una terna derecha (LAMMPS no permite trabajar con terna izquierda).

Se rotan los ejes del cristal superior ($z > 0$) hacia las direcciones cristalográficas:

$$x = [5\ 5\ 2]$$

$$y = [\bar{1}\ 1\ 0]$$

$$z = [1\ 1\ 5]$$

y el cristal inferior ($z < 0$):

$$x = [1\ 1\ \bar{2}]$$

$$y = [\bar{1}\ 1\ 0]$$

$$z = [1\ 1\ 1]$$

En la Figura 7 puede observarse una interfaz entre las regiones rojo y azul debido a la distinta orientación de cada cristal. Esto fue solo un avance para obtener el BG $\Sigma 9 \{111\}/\{115\}$, se han establecido solo 5 de los 7 grados de libertad, siendo 2 los ángulos que definen la posición del eje de rotación de un cristal respecto el otro, 1 el ángulo que define cuanto se rota el cristal alrededor del eje de rotación, y otros 2 ángulos para definir la normal al plano del BG, que se determinan al forzar la existencia de un cristal solo en $z > 0$, y el otro cristal solo en $z < 0$. Todavía falta definir la traslación de un grano respecto el otro lo cual se trata en la siguiente subsección.

4.1.2. Superficie gamma

La superficie- γ es una herramienta útil para simplificar la obtención de las coordenadas donde se debe desplazar un cristal respecto a otro para definir un BG o CSL específico. Esta superficie se representa gráficamente. En ella puede observarse la energía superficial del BG (γ_{BG}) en función del desplazamiento rígido entre cristales. El BG se encuentra en el plano xy de nuestro sistema, por lo que se realiza un barrido de varios pasos en dicho plano. Luego de cada paso de barrido se ejecuta una minimización de energía la cual permite relajar la estructura. Finalmente se calcula γ_{BG} con los átomos en su nueva posición de equilibrio. Cuando se realiza la minimización de energía, los átomos únicamente deben relajar en la dirección z, ya que, si también relajan en x e y los átomos siempre desplazarían hacia el mínimo de energía más cercano y no podrían estimarse las

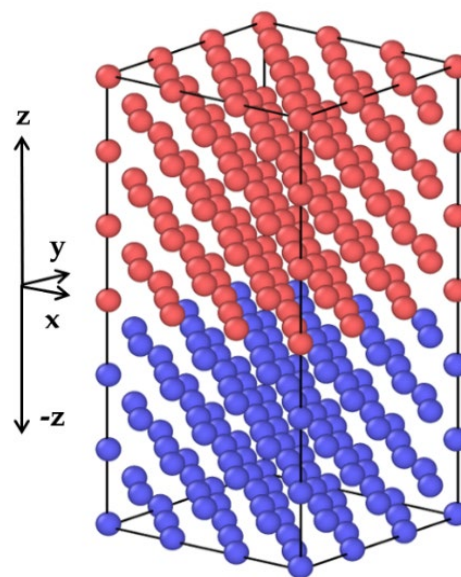


Figura 7. Estructura FCC de Ni creada con LAMMPS, imagen obtenida con OVITO. Se observan 2 cristales con las mismas estructuras orientadas en las mismas direcciones, es decir, conforman un único cristal sin BG.

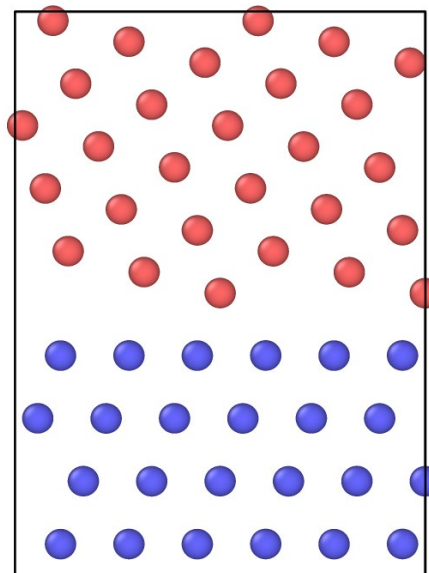


Figura 8. Vista frontal del bicristal una vez rotadas ambas regiones en distintas direcciones. Puede observarse la formación de un BG.

coordenadas exactas donde se encuentran los mínimos de energía. La minimización de energía se realiza con el método del gradiente conjugado de Polak-Ribière [14].

Si se establecen condiciones periódicas en todas las direcciones del sistema, y los cristales ocupan por completo la celda de simulación, las condiciones de contorno en la dirección z generarían un segundo BG de características similares al construido en $z = 0$. En este caso, la energía de BG estaría definida por la siguiente expresión:

$$\gamma_{BG} = \frac{E_{BG} - n_{BG} E_{coh}^{Ni}}{2 A_{BG}}, \quad (4.1)$$

donde E_{BG} y n_{BG} son la energía total y el número de átomos de la estructura con el BG, y A_{BG} es el área de la superficie del BG [15]. La energía total del sistema E_{BG} se calcula con la ecuación (3.3). El término negativo del numerador es la energía del sistema sin el BG. El factor 2 en el denominador se debe a que hay dos BG, consecuencia de las condiciones de contorno periódicas. Si se genera vacío en las regiones superior e inferior, tal como se puede observar en la Figura 8 a), se evita que las aristas que forman superficies perpendiculares a la normal del plano de BG se desplacen durante la minimización de energía debido al desplazamiento de los átomos en la dirección z . Al reducir la deformación de la celda de simulación también se reducen los costos computacionales de la simulación.

Generar vacío en la celda de simulación nos trae ciertas ventajas, aunque suma un problema: aumenta la velocidad de cálculo y también elimina al segundo BG, sin embargo, aparecen dos superficies entre cada cristal y el vacío adyacente. Ahora, para calcular la energía de BG, también se debe eliminar la energía correspondiente a esas superficies en las regiones superior (top) e inferior (bottom):

$$\gamma_{BG} = \frac{E_{BG} - n_{BG} E_{bulk} - E_{sup}^{top} - E_{sup}^{bot}}{A_{BG}}. \quad (4.2)$$

Para evitar el cálculo de las dos nuevas superficies, lo que se puede hacer con LAMMPS es seleccionar una región que no las incluya, siendo los átomos dentro de dicha región los únicos en consideración para el cálculo de γ_{BG} . Esta nueva región puede observarse (en amarillo) en la Figura 8 b). Así el cálculo de γ_{BG} se reduce a:

$$\gamma_{BG} = \frac{E_{BG} - n_{BG} E_{coh}^{Ni}}{A_{BG}}, \quad (4.3)$$

donde ahora E_{GB} es la energía de la nueva región seleccionada y n_{GB} es el número de átomos de dicha región.

Si se desplaza al cristal superior sobre el plano xy respecto al cristal inferior, se restringe la relajación de los átomos en las direcciones x e y , se realiza la minimización de energía, y se

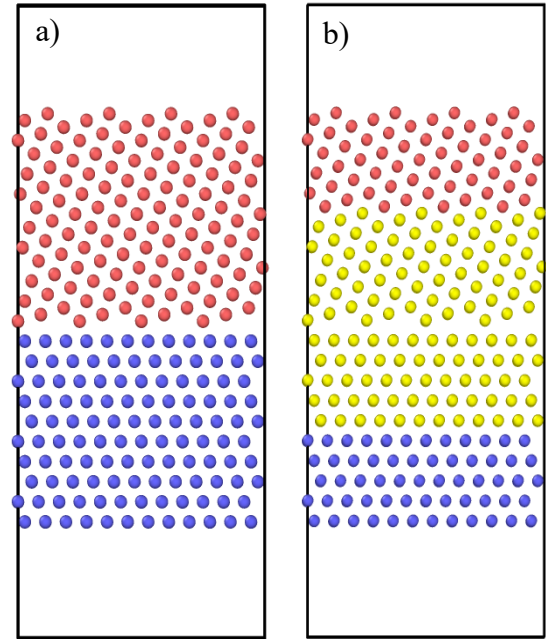


Figura 9. a) Modelización de red periódica con vacíos entre la superficie exterior de cada cristal y la celda de simulación. Esto evita la aparición de un segundo BG. b) En amarillo puede observarse la región donde se encuentran los átomos considerados para el cálculo de la energía de BG.

calcula γ_{BG} con la ecuación (4.3) (todo lo anterior para cada uno de los desplazamientos), se obtiene la superficie- γ correspondiente.

En la Figura 10 se puede observar la superficie- γ obtenida y sus respectivas curvas de nivel. Es posible distinguir un mínimo y un máximo que se repiten periódicamente, donde esa periodicidad indica que, por ejemplo, si partimos de un BG y desplazamos el grano superior respecto al inferior $\approx 4.5 \text{ \AA}$ solo en la dirección x, volveremos a formar ese mismo BG, y lo mismo ocurriría si lo desplazáramos $\approx 2.5 \text{ \AA}$ solo en la dirección y.

El valor del mínimo de energía obtenido en la Figura 10 (curvas de nivel azul) es aproximadamente 950 mJ/m^2 y no es el verdadero valor de γ_{BG} , ya que únicamente se les ha permitido a los átomos relajar en la dirección z. Para calcular γ_{BG} correctamente los átomos deben relajar en todas las direcciones.

Mediante la superficie- γ podemos deducir que, si desplazamos el grano superior respecto al inferior $\approx 1.2 \text{ \AA}$ en la dirección x desde su posición inicial y luego permitimos relajar todos los átomos de la estructura en todas las direcciones, al calcular la energía de BG con la ecuación (4.3) deberíamos encontrar que $\gamma_{BG} = 842 \text{ mJ/m}^2$, calculado por M. Demkowicz para un BG $\Sigma 9 \{111\}/\{115\}$ [13].

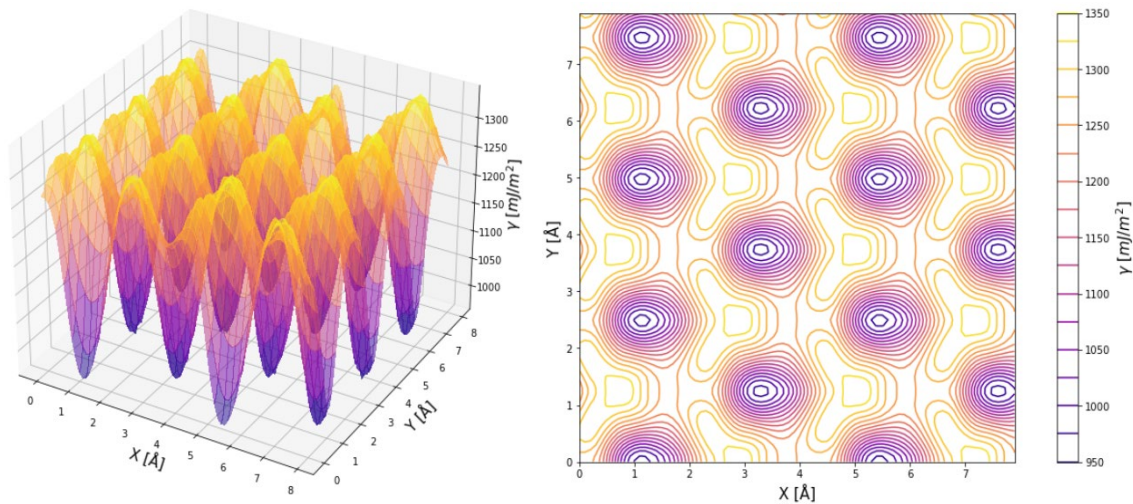


Figura 10. Superficie gamma donde se observa la energía de BG en función del desplazamiento del cristal superior en x e y respecto del cristal inferior.

Creamos un nuevo código donde no se genere un barrido en el plano xy, sino que solo se desplaza al grano superior respecto al inferior $1.2 \text{ \AA}$ en la dirección x desde su posición inicial, cerca de uno de los mínimos. Anteriormente, permitíamos a los átomos relajar únicamente en la dirección z. Esta última restricción debe eliminarse, permitiéndole a los átomos relajar en todas las direcciones, así calcular el verdadero valor de γ_{BG} . Una vez realizada la minimización de energía, se calcula γ_{BG} con la ecuación (4.3). El resultado obtenido es $\gamma_{BG} = 866 \text{ mJ/m}^2$. Esto era de esperar, según la ref. [13] durante el desplazamiento del cristal es posible caer en un mínimo de 866 mJ/m^2 , que sería un mínimo de energía local, o en otro de 842 mJ/m^2 , donde este último sería el mínimo absoluto. Ahora el problema es que en la superficie- γ no se observa otro mínimo. Uno podría suponer que se desarrolló la superficie- γ en vano, sin embargo, sigue facilitando la búsqueda del mínimo absoluto. Podemos suponer que este mínimo se encontrará en cualquiera de las áreas que se repiten periódicamente. Se prueban distintas coordenadas de desplazamiento dentro del área cercana al origen permitiendo relajar a los átomos en todas las direcciones. Resulta que en el intento de desplazar el cristal superior cerca de las coordenadas $(0.5 \hat{i} + 1.35 \hat{j}) \text{ \AA}$ se

obtiene que $\gamma_{BG} = 842 \text{ mJ/m}^2$. Una vez encontrado el mínimo de energía deseado, es posible obtener las coordenadas precisas hacia donde debemos desplazar el bloque superior para formar el BG $\Sigma 9\{111\}/\{115\}$.

4.1.3. Optimización del desplazamiento del cristal

Con el LAMMPS es posible obtener las coordenadas de cada uno de los átomos antes, durante, y luego de la minimización de energía. Una vez obtenidas las coordenadas de los átomos en cada paso, es posible analizarlas con el visualizador de imágenes OVITO (descripción del software en sección 3.4). En el siguiente [link](#) se puede observar una animación del desplazamiento de los átomos causado por la minimización. Este software también permite obtener el vector desplazamiento $\vec{d}$ de cualquier átomo de la estructura. En la Figura 11 se observan los vectores desplazamiento de cada uno de los átomos una vez finalizada la minimización de energía. Se puede notar que los átomos lejanos al BG, todos tienen un vector desplazamiento similar, esto debido al movimiento rígido de los cristales para conformar el BG. Esto último es lo que se quiere evitar. Si se logra que los cristales no desplacen durante la minimización significaría que la estructura elaborada ya es el BG $\Sigma 9\{111\}/\{115\}$. Los únicos átomos que inevitablemente van a relajar durante la minimización son los cercanos al BG.

Para evitar el desplazamiento de los cristales durante la minimización se realiza una corrección del desplazamiento realizado a partir de las coordenadas gracias a la superficie- γ , $\vec{d}_0 = (0.5 \hat{i} + 1.35 \hat{j}) \text{ \AA}$, sumándole el desplazamiento del cristal durante la minimización. Con OVITO se obtiene que el cristal superior y el cristal inferior desplazan:

$$\vec{d}_{\text{sup}} = (-0.2118 \hat{i} - 0.0525 \hat{j} - 0.1350 \hat{k}) \text{ \AA}$$

$$\vec{d}_{\text{inf}} = (0.2051 \hat{i} + 0.0530 \hat{j} + 0.1340 \hat{k}) \text{ \AA}$$

donde $\vec{d}_{\text{sup}}$ y $\vec{d}_{\text{inf}}$ son los desplazamientos del cristal superior e inferior, respectivamente.

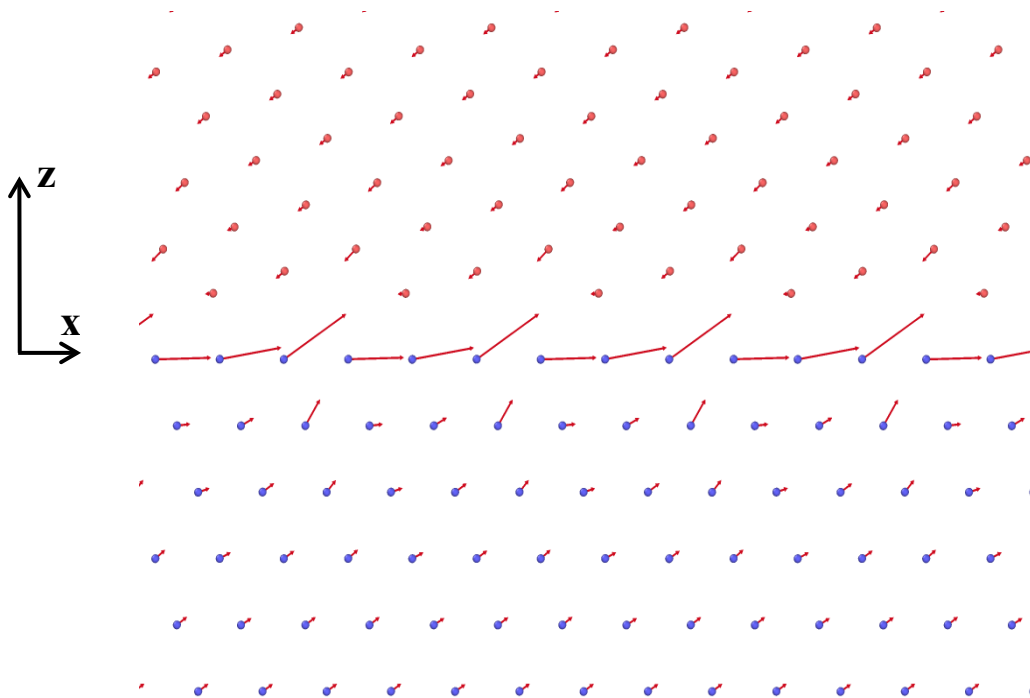


Figura 11. Vectores desplazamiento de cada átomo luego de la relajación para formar el BG $\Sigma 9\{111\} / \{115\}$ con $\gamma_{BG} = 842 \text{ mJ/mm}^2$.

Es lo mismo desplazar el cristal inferior en una dirección y sentido que desplazar el cristal superior en la misma dirección, pero en sentido opuesto, por lo que se puede considerar que el cristal inferior queda fijo, y únicamente se desplaza el superior de la siguiente manera:

$$\vec{d}'_{\text{sup}} = \vec{d}_{\text{sup}} - \vec{d}_{\text{inf}}, \quad (4.4)$$

$$\vec{d}'_{\text{sup}} = (-0.4169 \hat{i} - 0.1055 \hat{j} - 0.2690 \hat{k}) \text{\AA}.$$

La corrección que se debe hacer al desplazamiento inicial es:

$$\vec{d}'_0 = \vec{d}_0 + \vec{d}'_{\text{sup}}, \quad (4.5)$$

$$\vec{d}'_0 = (0.0831 \hat{i} + 1.2445 \hat{j} - 0.2690 \hat{k}) \text{\AA}.$$

Finalmente, el vector $\vec{d}'_0$ nos especifica las coordenadas hacia donde debemos desplazar el cristal superior respecto al inferior para partir de un BG $\Sigma 9 \{111\}/\{115\}$ antes de iniciar un ensayo de tracción.

Como resumen de esta parte, en la Figura 12 se observa un esquema simplificado del paso a paso para construir un BG. En general se requieren 7 parámetros para definir correctamente un BG: 2 ángulos que indican la orientación del eje de rotación de un cristal respecto al otro y 1 ángulo que representa cuanto gira un cristal respecto el eje de rotación (estos 3 ángulos se determinaron indirectamente al rotar ambos cristales por separado); 2 coordenadas para el desplazamiento entre de un cristal respecto al otro; 2 ángulos que determinan la dirección de la normal del plano del BG (determinados indirectamente al crear un cristal en $z > 0$ y el otro en $z < 0$).

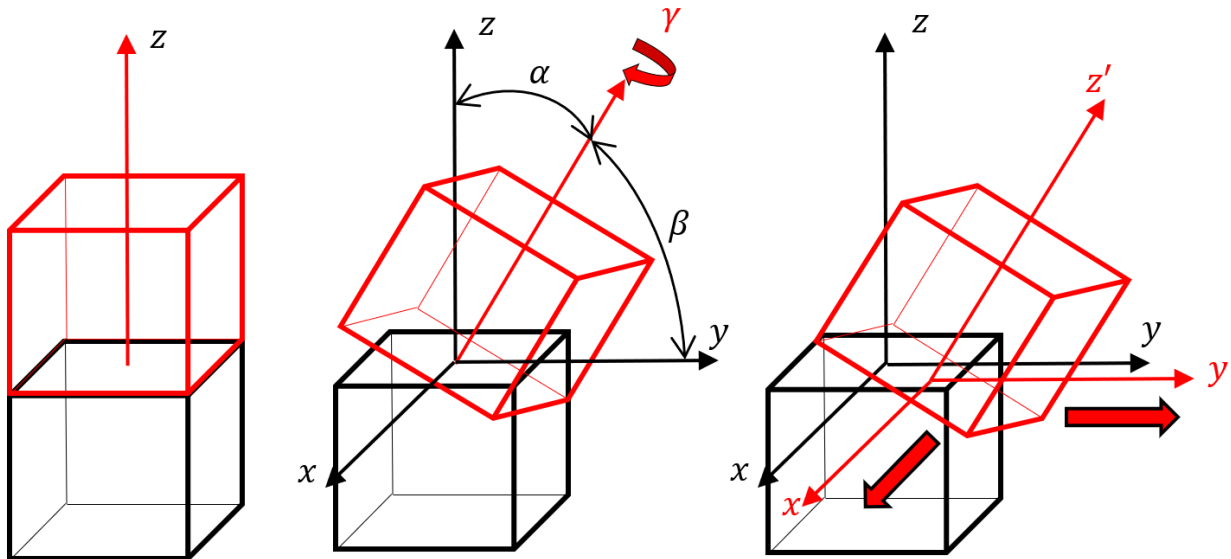


Figura 12. Esquema simplificado con los pasos necesarios para fabricar un BG definiendo 7 parámetros. Cada cubo representa un cristal. En la 1er imagen un cristal esta adyacente al otro con la misma dirección cristalográfica, donde uno está forzado a existir únicamente en $z > 0$, y el otro en $z < 0$, es decir, se definen los ángulos que determinan la posición de la normal del plano del BG; en la 2da imagen se rota el eje vertical del sistema de coordenadas del cristal superior donde la posición de dicho eje se define con 2 ángulos respecto a los ejes de coordenadas del cristal inferior. El 3er parámetro es el ángulo de rotación del cristal superior alrededor de su eje vertical; en la 3er imagen se observa cómo se desplaza un cristal respecto al otro sobre el plano xy, se establecen los últimos 2 parámetros que son las coordenadas x e y respecto al cristal inferior.

Al realizar la minimización de energía con el cristal desplazado a $\vec{d}'_0$ se calcula que $\gamma_{BG} = 842 \text{ mJ/m}^2$, y en OVITO al visualizar la minimización casi no se observa desplazamiento de los cristales, sí de los átomos cercanos al BG lo cual era de esperar.

Si realizamos una última corrección del desplazamiento del cristal, repitiendo los pasos explicados anteriormente, pero con un desplazamiento inicial $\vec{d}'_0$, se puede reducir todavía más el desplazamiento de los cristales. Con este último refinamiento de la posición del cristal, obtenemos finalmente:

$$\vec{d}''_0 = (0.0831 \hat{i} + 1.2446 \hat{j} - 0.2710 \hat{k}) \text{Å}$$

En la Figura 13 se observan puntos rojos en las posiciones del mínimo absoluto de energía (coordenadas x e y de $\vec{d}''_0$) superpuestos con las curvas de nivel de la superficie- γ . Como vimos en la Figura 11, durante la minimización los átomos se desplazan en la dirección x para alcanzar el mínimo absoluto de energía. Este mínimo no era posible de detectar en la superficie- γ debido a las restricciones aplicadas durante la minimización.

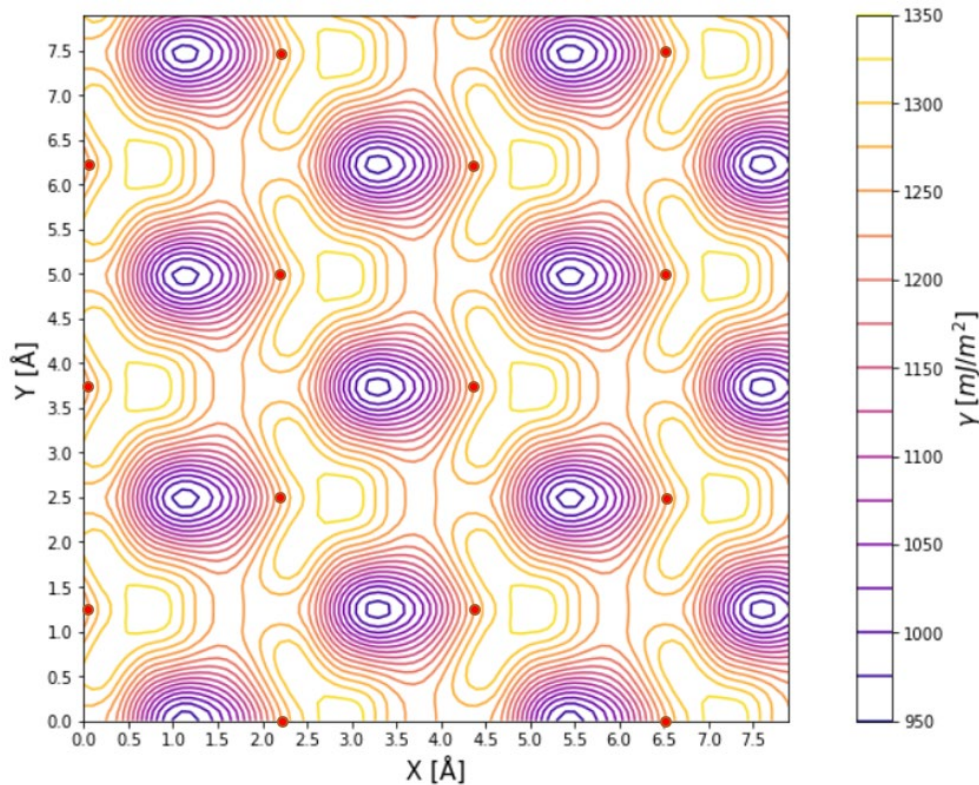


Figura 13. Curvas de nivel de la superficie- γ del BG $\{111\}/\{115\}$. En los puntos rojos se indican las posiciones donde se encuentra el mínimo absoluto de energía (842 mJ/mm^2).

4.2. Ensayo de tracción

La DM clásica nos da la posibilidad de reproducir ensayos mecánicos reales con cierta aproximación. Generalmente, cuanto más cercano a la realidad es lo que se intenta reproducir, mayor costo computacional tiene. Esto último nos trae ciertas limitaciones en la cantidad de átomos que tendrá nuestra probeta, y en la tasa de deformación (o tiempo de relajación). En esta sección se explica cómo realizamos un ensayo de tracción del bicristal de Ni con BG $\Sigma 9 \{111\}/\{115\}$.

4.2.1. Procedimiento

Para la elaboración de la probeta de tracción se parte de la microestructura obtenida en la sección 4.1, un bicristal de Ni con BG $\Sigma 9 \{111\}/\{115\}$. Una vez generada la estructura con el BG deseado (Figura 14a), se procede a realizar un nuevo código donde se desarrolla un ensayo de tracción. Los parámetros a establecer son la tasa de deformación ($\dot{\epsilon}$) y la temperatura (T). En todos los ensayos se realiza una termalización del modelo con reescalado de la temperatura, LAMMPS permite realizar pequeñas variaciones de temperatura respecto a una especificada para que el ensayo sea lo más realista posible.

La deformación total será producto de una serie de estiramientos equidistantes, donde luego de cada estiramiento se permitirá la relajación del sistema a través de pequeñas corridas de DM de duración ≈ 1 ps.

Si luego de cada estiramiento, durante la relajación del sistema, todos los átomos se encuentran sin restricciones, estos volverían a su posición inicial dejando a la probeta en un estado libre de tensiones. Para que esto no ocurra, se agregan nuevas superficies de átomos en los extremos de la probeta perpendiculares a la dirección de las tensiones de tracción (Figura 14 b); a estas superficies las denominaremos superficies de carga. Los átomos pertenecientes a las superficies de carga estarán restringidos de manera que el CM de cada una de estas superficies, luego de cada estiramiento, quede inmóvil. El desplazamiento de los átomos que no se encuentran en las superficies de carga no debe estar restringido, deben desplazarse libremente durante cada corrida de DM. Esto se logra estableciendo que:

- La velocidad del CM de cada superficie de carga, finalizado cada estiramiento, instantáneamente debe ser igual a cero.
- La fuerza resultante en el CM de cada superficie de carga, finalizado cada estiramiento, debe ser cero. Se obtiene, individualmente para cada superficie, la sumatoria de las fuerzas en cada átomo perteneciente a estas regiones, se divide por la cantidad total de átomos (fuerza promedio), y esta finalmente se le resta a cada átomo modificando su fuerza.

Debido a que las restricciones se aplican sobre el CM, evitamos que la superficie de carga se comporte como un rígido, de lo contrario habría una acumulación y apilamiento de dislocaciones en la interfaz con la superficie rígida, modificando el comportamiento a la fractura de la probeta. Las superficies de carga tendrán un espesor de 20 Å (aproximadamente cuatro veces el radio de corte del potencial EAM de Ni utilizado), suficiente para que no haya interacción entre las superficies libres en los extremos de la probeta y los átomos de la región central indicados, en rojo y azul en Figura 14b.

Se crea una entalla en el plano de BG (Figura 14c). Esto se logra indicándole al programa que elimine átomos en una determinada región. La entalla se agrega a modo de concentrador de tensiones, con el fin de inducir el avance de la fisura. Para el ensayo de tracción se establecen condiciones periódicas únicamente en la dirección perpendicular al avance del frente de fisura y paralela al plano de BG (eje y). Es de esperar que al realizar el ensayo de tracción haya emisión de dislocaciones desde la punta de la fisura.

Es importante, antes de comenzar con los estiramientos, realizar una minimización de energía, nuevamente mediante el método del GC, y también una corrida de dinámica molecular lo suficientemente larga (150 ps) para acercarnos a un estado de equilibrio libre de tensiones. El valor de deformación ϵ se calcula con la ecuación:

$$\varepsilon_i = \frac{\Delta l_i}{l_0} = \frac{l_i - l_0}{l_0} \quad (4.6)$$

donde l_0 y l_i son la longitud inicial entre los CM de cada superficie de carga y la longitud entre esos CM en el estiramiento i , respectivamente. Para calcular la tensión aplicada en el estiramiento i (σ_i), se realiza la sumatoria de las fuerzas aplicadas en cada uno de los N ($F_{i,1,2,\dots,N}$) átomos de las superficies de carga, y luego se divide por el área inicial (A_0) de la superficie donde se aplica tracción, se obtiene un diagrama σ - ε ingenieril. Es importante aclarar que las fuerzas necesarias para obtener σ_i deben calcularse antes de restar la fuerza promedio de las superficies de carga. Anteriormente se explicó que eso se realiza para que la fuerza aplicada en el CM sea nula. Se calcula σ_i :

$$\sigma_i = \frac{1}{A_0} \sum_{k=1}^N F_{ik} \quad (4.7)$$

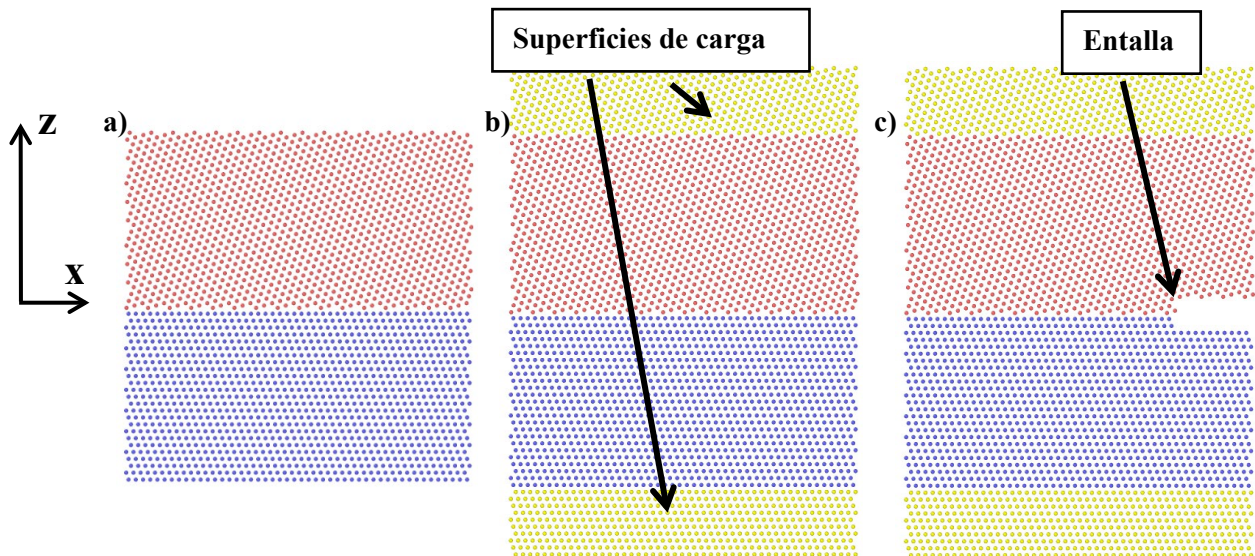


Figura 14. Simplificación esquemática de la construcción de la probeta para el ensayo de tracción simulado por DM. a) Bicristal con BG $\Sigma 9\{111\}/\{115\}$; b) se agregan las superficies de carga; c) se agrega la entalla en BG.

4.2.2. Tasa de deformación

Distintos autores han estudiado cómo el *strain rate* o tasa de deformación ($\dot{\varepsilon}$) afecta al comportamiento de los mecanismos de relajación de tensiones durante ensayos de tracción realizados mediante DM en nano-cables de Ni monocristalinos [16] y policristalinos [17]. La literatura explica que cuando disminuye $\dot{\varepsilon}$, también lo hacen el módulo de Young (E) y la tensión de fluencia (σ_y). Los resultados allí muestran que $\dot{\varepsilon}$ afecta levemente el módulo de Young del material, pero fuertemente a la tensión de fluencia [16,17]. Como nuestra microestructura es un bicristal, se ha optado por hacer pruebas a distintas $\dot{\varepsilon}$ para encontrar una donde los resultados se acerquen lo más posible a un ensayo de tracción cuasi-estático, y computacionalmente sea lo más económico posible, no es bueno utilizar velocidades de deformación muy bajas (o alta exigencia computacional) si no es necesario. Se realizaron ensayos con $\dot{\varepsilon}$ desde 50 ns^{-1} hasta 0.05 ns^{-1} . Las dimensiones de la probeta utilizada, únicamente para el estudio de $\dot{\varepsilon}$, son $\approx 20 \times 2.5 \times 20 \text{ nm}$. La tasa de deformación se calcula:

$$\dot{\epsilon} = \frac{\epsilon_T}{N_{est} \cdot t_{DM}} \quad (4.8)$$

donde ϵ_T es la deformación total alcanzada (0.1 para todos los ensayos de tracción de aquí en adelante), N_{est} la cantidad de estiramientos, y t_{DM} la duración de cada corrida de DM finalizado cada estiramiento. Para realizar ensayos con distinto $\dot{\epsilon}$ únicamente se modifica N_{est} , es decir, la magnitud de cada estiramiento también será una variable. A menor $\dot{\epsilon}$, mayor N_{est} y menor será la magnitud de cada estiramiento.

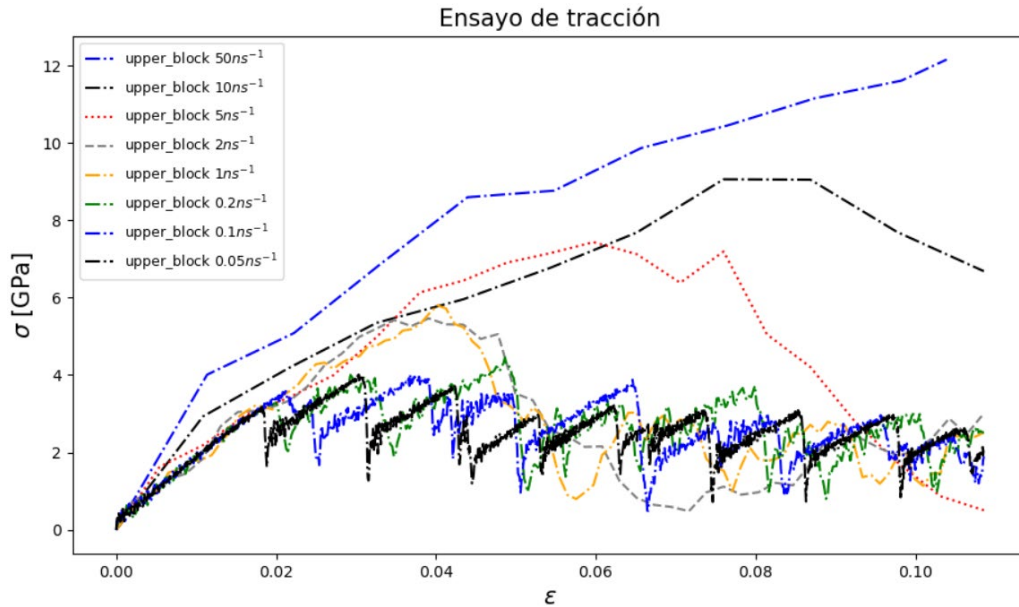


Figura 15. Diagrama de tensión vs. deformación para distintas tasas de deformación de un bicristal de Ni puro con un BG $\Sigma 9\{111\}/\{115\}$.

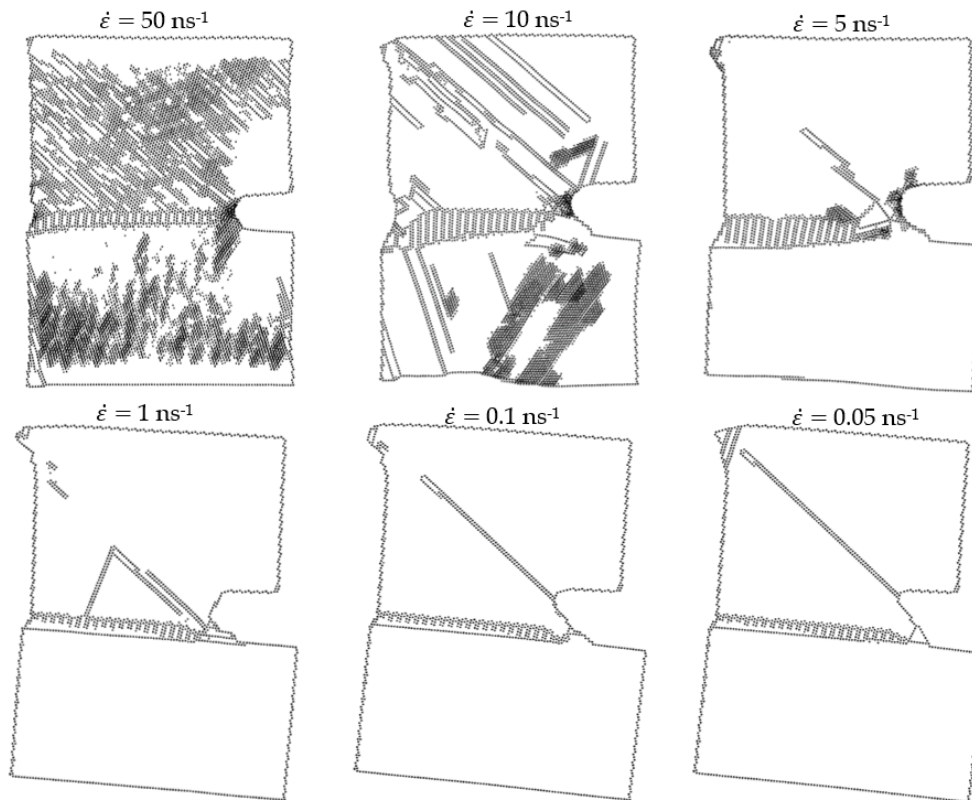


Figura 16. Visualización en OVITO de distintas probetas simuladas por DM, donde cada una fue deformada a una $\dot{\epsilon}$ diferente. En las imágenes cada probeta se encuentra a $\epsilon \approx 0.1$.

Los resultados obtenidos fueron coherentes con la literatura [16,17]. La σ_y disminuye fuertemente cuanto menor es $\dot{\epsilon}$. La rigidez del material también disminuye con menor $\dot{\epsilon}$, tendiendo a una constante (Figura 15).

En la Figura 16 es posible observar algunas de las probetas ensayadas a distintas tasas de deformación. En las imágenes todas las probetas alcanzaron $\epsilon \approx 0.1$. Se muestran únicamente los átomos de centrosimetría ≥ 4 . La centrosimetría es un parámetro que mide el desorden respecto a la red perfecta, es decir, cuanto mayor centrosimetría posee un átomo, más lejos se encuentra de su posición donde formaba una red fcc [18]. Para $\dot{\epsilon} \leq 1 \text{ ns}^{-1}$ la estructura mantiene su cristalinidad y las tensiones relajan debido a la emisión de dislocaciones a través de los planos de deslizamiento $\{111\}$; para $\dot{\epsilon}$ entre 10 ns^{-1} y 1 ns^{-1} la estructura cristalina relaja a través de la emisión de dislocaciones, y ocurren deformaciones localizadas en distintas regiones de la probeta; para $\dot{\epsilon} > 10 \text{ ns}^{-1}$ la deformación se distribuye uniformemente por toda la probeta, desconocemos aquí el mecanismo de deformación.

4.3. Algoritmo de distribución de burbujas de He

Siguiendo los lineamientos de M. Demkowicz [13] se ha desarrollado un algoritmo para generar distintas distribuciones de burbujas de He, tanto intergranulares como intragranulares, en el bicristal de Ni. Estas distribuciones generadas para validar las simulaciones se realizan en base a los resultados obtenidos experimentalmente por Judge y col. [4], donde obtuvieron distribuciones tanto para el diámetro de burbujas, como para la posición de las burbujas en la dirección perpendicular al BG. Han encontrado distintas distribuciones para el diámetro de las burbujas intergranulares e intragranulares. Lejos del BG, en el interior de los granos, hay una densidad uniforme de burbujas, pero en las cercanías del BG la densidad de ellas se ve reducida, se forma la denominada *bubble depleted zone* (BDZ). En este algoritmo se supone que todas las burbujas son esféricas.

La distribución de burbujas en función de la distancia respecto al plano del BG (z) sigue una distribución de Fermi:

$$f(z) = \frac{1}{e^{(w-dz)/t} + 1}, \quad (4.9)$$

donde dz es la distancia de la burbuja con respecto al plano del BG,

$$dz = z - z_{BG}, \quad (4.10)$$

y z_{BG} es la altura a la que se encuentra el BG; t es la longitud de la zona de transición entre la distribución uniforme de burbujas intragranulares y la distribución reducida dentro de la BDZ; w es el ancho de la BDZ.

La distribución de los diámetros de burbuja (d) se asemeja a una distribución Γ :

$$f(d) = \frac{d^{\alpha-1} e^{-d/\theta}}{\theta^\alpha \Gamma(\alpha)} \quad (4.11)$$

donde α y θ son parámetros de forma y escala, respectivamente, utilizados para hacer coincidir la función distribución con la obtenida en la referencia [4].

En el algoritmo de distribución de burbujas los datos de entrada son: las dimensiones de la probeta, los diámetros mínimos y máximos de burbujas observados experimentalmente, los parámetros w y t para la distribución de Fermi, α_g y θ_g para la distribución Γ de las burbujas

intragranulares, α_{BG} y θ_{BG} para la distribución Γ de burbujas intergranulares, la cantidad de burbujas por unidad de volumen dentro del grano, la cantidad de burbujas por unidad de superficie en el BG (o el %GBCA), la distancia superficial mínima entre burbujas, y la relación He/vacancia en las burbujas dentro los granos y en el BG.

Este algoritmo tiene como salida una lista maestra que contiene: un número de identificación correspondiente a cada burbuja generada, sus coordenadas en el espacio tridimensional, el diámetro, y la relación He/vacancias.

El algoritmo generador de burbujas de He inicialmente crea una primera burbuja intragranular, donde la coordenada z se obtiene con la distribución de Fermi y las coordenadas x e y utilizan una distribución uniforme; luego se le da un diámetro según la distribución Γ . Después de crear la primer burbuja, de manera similar se sigue generando el resto de ellas, pero con la condición de que la distancia superficial con todas las burbujas sea mayor a la mínima establecida. Si no cumple esa condición, se recrean aleatoriamente las coordenadas de la burbuja, sin modificarle el diámetro, sino se vería modificada la distribución de diámetros generada. Una vez alcanzada la densidad volumétrica intragranular de burbujas, se comienzan a generar burbujas en el plano de BG. Para generar burbujas intergranulares el procedimiento es similar al de las intragranulares, pero con la distribución Γ correspondiente y con coordenada z constante (en el plano del BG, $z_{BG} = 0$) hasta alcanzar la densidad superficial especificada. En la Figura 16 se observa un ejemplo de distribución de burbujas de He dentro de la probeta.

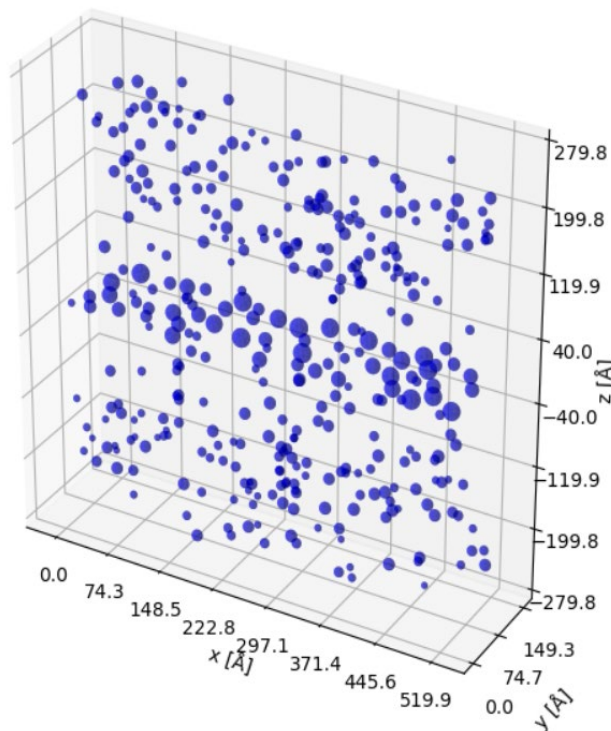


Figura 17. Visualización de las distribuciones de burbujas de He inter e intragranulares en una microprobeta.

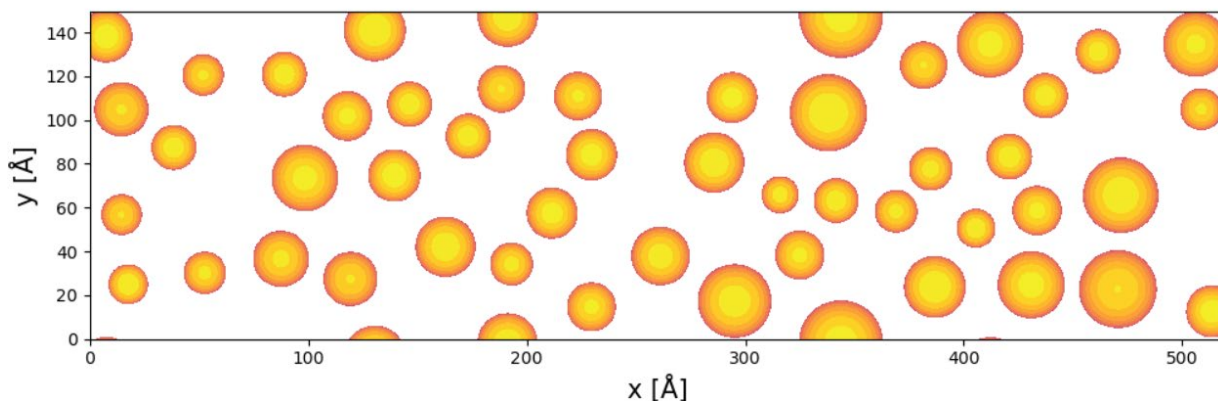


Figura 18. Corte del plano de BG de una microprobeta de Ni con burbujas de He. Se observan únicamente las burbujas intergranulares.

Anteriormente se explicó que se aplican condiciones de periodicidad únicamente en la dirección paralela al BG y perpendicular al avance de fisura (sección 4.2.1). La fisura avanza por el eje x . Entonces, también se aplica periodicidad en la dirección del eje y al algoritmo de

distribución de burbujas de He. La Figura 18 permite visualizar únicamente la distribución de burbujas intergranulares incluidas en el plano de BG. Se puede ver como las burbujas que sobresalen por los extremos del eje y se recrean desde la dirección opuesta.

Para embeber las burbujas de He en la microprobeta de Ni, mediante comandos de LAMMPS, se incluye la lista maestra con la información de cada una de las burbujas, y luego en las coordenadas de cada burbuja se selecciona una región esférica con su diámetro específico, y finalmente en cada región se transforma una fracción de los átomos de Ni contenidos en átomos de He, y el resto en vacancias (según la relación He/vacancias previamente determinada).

4.4. Fractotenacidad

Se calcula la fractotenacidad de cada probeta ensayada siguiendo los lineamientos de la ref. [13]. La fractotenacidad se calcula según la relación de Irwin:

$$K_{IC} = \sqrt{\frac{E G_C}{1 - \nu^2}} \quad (4.12)$$

donde E es el módulo de Young, ν el coeficiente de Poisson, y G_C la tasa crítica de liberación de energía.

La resistencia a la propagación de una fisura (γ_f) es la relación entre la energía disipada durante el crecimiento de la fisura y la nueva área generada de fisura:

$$\gamma_f = \frac{\text{energía disipada}}{\text{nueva área de fisura}} \quad (4.13)$$

La energía disipada por el material durante el ensayo de tracción es consecuencia de los mecanismos de relajación de tensiones, como pueden ser la emisión de dislocaciones o la ruptura de enlaces atómicos. Se utiliza γ_f para estimar la tasa crítica de liberación de energía G_C . La energía disipada se obtiene calculando el área bajo la curva tensión-deformación de los ensayos de tracción realizados:

$$\text{energía disipada} = V_0 \sum_{i=1}^{N-1} \frac{\sigma_{zz}(i) + \sigma_{zz}(i+1)}{2} [\varepsilon_{zz}(i+1) - \varepsilon_{zz}(i)] - V_0 \frac{\sigma_{zz}^2(N)}{2 E} \quad (4.14)$$

La ecuación (4.14) contiene en su primer término la suma del trabajo realizado en cada uno de los estiramientos del ensayo de tracción. Cada incremento de trabajo es el producto del promedio de las tensiones aplicadas en dos estiramientos sucesivos y el incremento de la deformación entre esos mismos estiramientos. Esta sumatoria considera las tensiones aplicadas en los N estiramientos, desde $i = 1$ hasta $i = N-1$, y abarca tanto la energía elástica almacenada como la energía disipada. Por otro lado, el segundo término elimina la energía elástica almacenada hasta el estiramiento N, asumiendo elasticidad lineal y utilizando el módulo de Young E. Ambos términos son multiplicados por el volumen inicial del modelo V_0 luego de haber relajado.

Se estima la nueva área de la fisura a partir de su geometría final. Se mide la nueva longitud de la cara superior l^t e inferior l^b de la fisura. Estas longitudes se toman desde el labio externo de la fisura hasta una vertical que se traza desde la punta de la fisura (Figura 20). Se calcula entonces:

$$\text{nueva área de fisura} = (l^t + l^b - 2 l_0) W, \quad (4.15)$$

donde l_0 es la longitud inicial de la fisura en la dirección perpendicular al frente de fisura, y W es el ancho de la probeta (dirección paralela al frente de fisura).

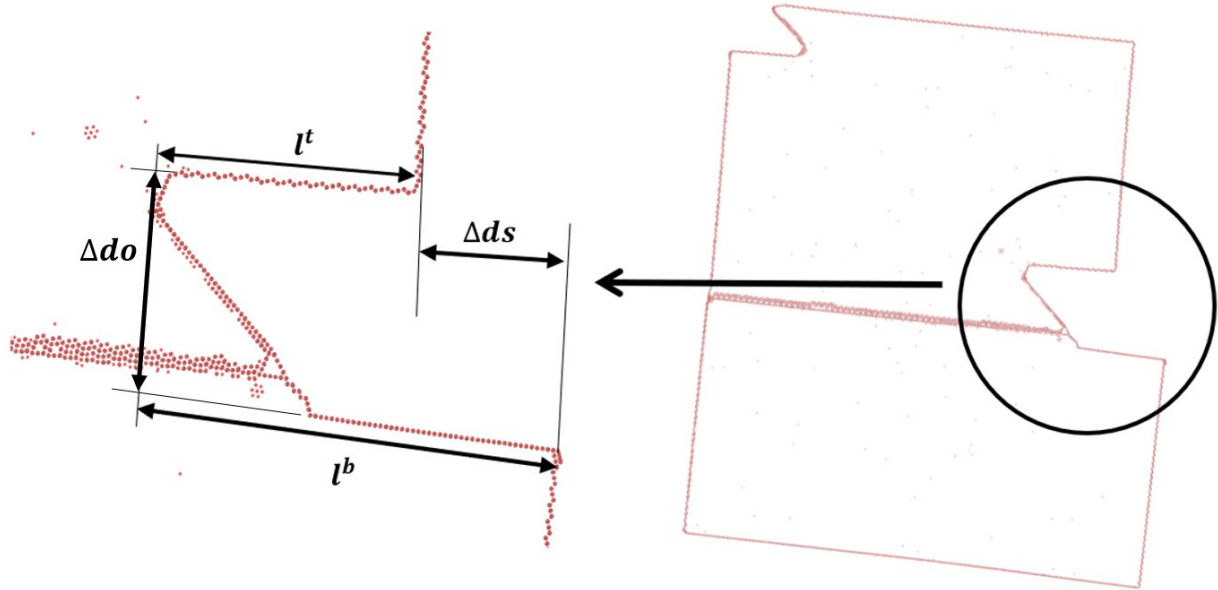


Figura 20. Probeta de Ni puro finalizado el ensayo de tracción. A la izquierda una imagen aumentada de la geometría de la fisura con las dimensiones a considerar para los cálculos de fractoténacidad.

Habrà una proporción del avance de la fisura que se generará debido al deslizamiento causado por la emisión de dislocaciones desde la punta de la fisura. Los parámetros necesarios para calcular esa proporción son, la apertura del frente de fisura Δd_o , el offset entre los labios de la fisura Δd_s , las direcciones principales de deslizamiento o vectores de Burgers para cada grano o cristal, y el número de dislocaciones emitidas a través de cada grano.

Para obtener los vectores de Burgers lo que hacemos es observar los planos compactos de cada uno de los cristales en OVITO. Como la estructura del Ni es fcc, la microprobeta debe rotarse la hasta visualizar una proyección plana con simetría hexagonal. Una vez ubicado el plano compacto, se obtienen las componentes de los vectores de Burgers para cada uno de los cristales. En la Figura 18 se observan los planos de deslizamiento considerados. En el grano superior el mayor factor de Schmid se encuentra en dos sistemas de deslizamiento, y ambos se encuentran en el mismo plano de deslizamiento, donde los vectores de Burgers resultan ser:

$$\vec{b}^{t1} = -1.68 \hat{i} - 1.24 \hat{j} + 1.35 \hat{k},$$

$$\vec{b}^{t2} = -1.68 \hat{i} + 1.24 \hat{j} + 1.35 \hat{k},$$

donde las componentes (en Å) a lo largo de la dirección de la tensión aplicada (eje z) y a lo

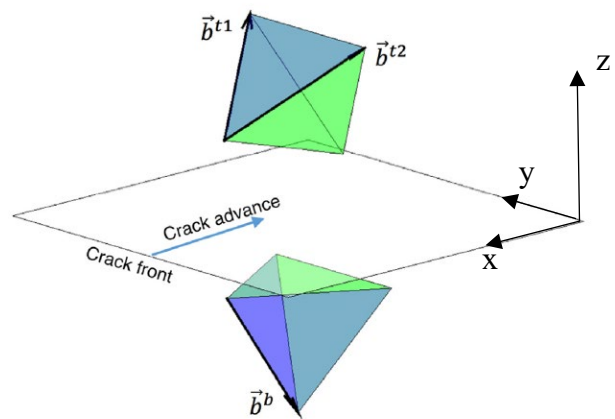


Figura 19. Sistemas de deslizamiento con máximo factor de Schmid bajo un estado de tensión uniaxial puro [13].

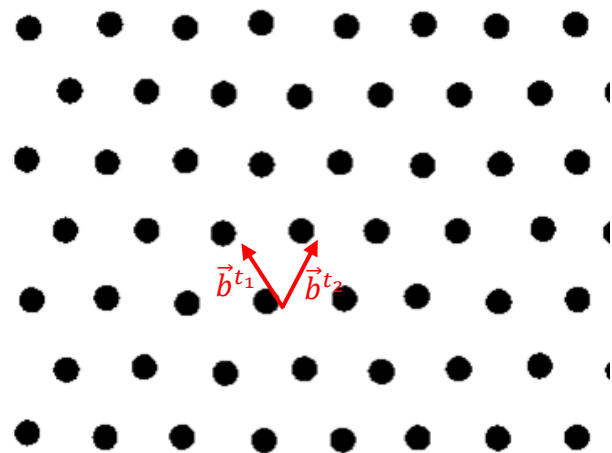


Figura 21. Plano de deslizamiento (111) en el cristal superior del bicristal de Ni. Se ubican los vectores de Burgers correspondientes.

largo de la dirección de avance de la fisura (eje x), son idénticas. La Figura 20 muestra los vectores de Burgers en el cristal superior, siendo la imagen una proyección del plano deslizamiento $\{111\}$ de la estructura fcc del Ni, es decir, un plano con simetría hexagonal. El mayor factor de Schmid en el cristal inferior se encuentra en dos sistemas de deslizamiento, ambos con idéntico vector de Burgers, pero diferentes planos de deslizamiento: $\vec{b}^b = -1.44 \hat{i} - 2.03 \hat{k}$.

La apertura de la fisura puede calcularse como:

$$\Delta d_0 = n^t b_z^t + n^b b_z^b \quad (4.16)$$

donde n^t y n^b son el número total de dislocaciones emitidas en los cristales superior e inferior, respectivamente; los parámetros b_z^t y b_z^b son las componentes de los vectores de Burgers en la dirección de la tensión uniaxial aplicada para los cristales superior e inferior, respectivamente. El offset entre los labios superior e inferior de la fisura se calcula:

$$\Delta d_s = n^t b_x^t - n^b b_x^b \quad (4.17)$$

En este caso b_x^t y b_x^b son las componentes de los vectores de Burgers en la dirección de propagación de la fisura. Con las ecuaciones (4.16) y (4.17) se constituye un sistema de ecuaciones donde n^t y n^b son los parámetros desconocidos. Las componentes de los vectores de Burgers se obtienen, como se explicó anteriormente en esta sección, realizando un análisis de la estructura de átomos con OVITO. Δd_s y Δd_0 se obtienen realizando mediciones en la geometría final de la fisura (Figura 20). Se resuelve el sistema de ecuaciones:

$$\begin{pmatrix} \Delta d_0 \\ \Delta d_s \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} b_z^t & b_z^b \\ b_x^t & b_x^b \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} n^t \\ n^b \end{pmatrix}, \quad (4.18)$$

obteniendo los valores n^t y n^b . Finalmente se calcula el incremento de área superficial de la fisura debido al deslizamiento causado por la emisión de dislocaciones:

$$\Delta A_{\text{slip}} = (n^t b_x^t + n^b b_x^b) w. \quad (4.19)$$

Calculando la relación entre las ecuaciones (4.19) y (4.15) se puede obtener qué porcentaje del avance de la fisura se debe a la emisión de dislocaciones desde la punta de la fisura.

4.5. Cálculo del área de cobertura real de borde de grano

El algoritmo que genera las distribuciones de burbujas de He permite visualizar cada una de las burbujas del plano de BG (Figura 18). Es de esperar que el volumen de las burbujas varíe durante la relajación de la probeta, ya que inicialmente estas fueron embebidas en una red de Ni con la ausencia de todas esas cavidades. Las cavidades, en función de la relación He/vacancias establecida, pueden contraerse o expandirse [13]. Al variar el volumen de las burbujas, también lo hará el %GBCA. Se ha sistematizado la medición del %GBCA real con una serie de pasos:

- 1) Si primero se embeben las burbujas y posteriormente se crea una entalla en plano de BG, las burbujas previamente creadas dentro del área de la entalla desaparecerán, y no ejercerán modificaciones en la fractoténacidad del material. Se calcula el %GBCA considerando únicamente las burbujas incluidas en el área remanente del plano de BG, es decir, donde

no existe la entalla de longitud inicial l_0 (área coloreada en la Figura 22). Se calcula el área cubierta por burbujas de He mediante el software ImageJ [19].

- 2) Con OVITO es posible observar el plano de BG, pero calcular el %GBCA real con este software no sería adecuado ya que los átomos visualmente figuran como esferas rígidas que ocupan un determinado volumen complejo de definir. De todas formas, utilizamos este software para obtener imágenes antes y después de la relajación de la probeta, únicamente para estimar el porcentaje de expansión o contracción.
- 3) Una vez obtenido el porcentaje de expansión o contracción de las burbujas, se aplica este en el %GBCA obtenido en el paso 1), finalmente calculando el %GBCA real.

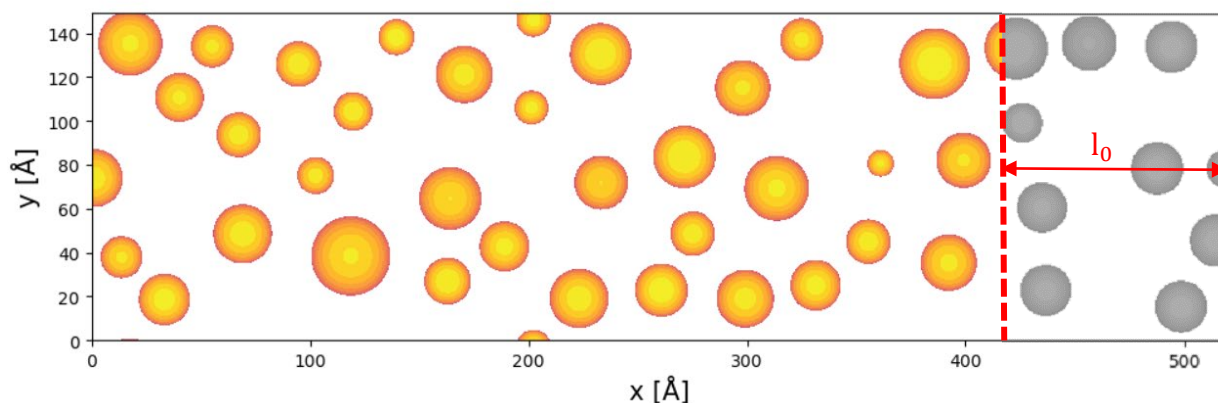


Figura 22. Proyección del plano de BG. En color las burbujas fuera del área donde se crea la entalla. En gris las burbujas que desaparecen al crearse la entalla.

5. RESULTADOS

Todos los ensayos de tracción de microprobetas de Ni se realizaron mediante el código LAMMPS. Para reducir los tiempos de simulación, los resultados fueron obtenidos con ayuda de los recursos del Centro de Cómputos de CCT-Rosario, miembro del Sistema Nacional de Computación de Alto Desempeño (SNCAD, MinCyT-Argentina). Los códigos LAMMPS fueron adaptados a un clúster, con el fin de realizar simulaciones en paralelo, donde algunas utilizaron 4 nodos de 16 núcleos cada uno, y otras simulaciones 2 nodos de 40 núcleos cada uno. Cada simulación tuvo una duración de aproximadamente 3 días y medio.

La tasa de deformación ($\dot{\epsilon}$) utilizada para todos los ensayos ha sido la misma, $66.7 \mu s^{-1}$. Las dimensiones de la probeta computacionalmente desarrollada:

$$519.91 \text{ \AA} \times 89.6 \text{ \AA} \times 519.56 \text{ \AA},$$

en las direcciones x, y, z, respectivamente. En las dimensiones se consideran las superficies de carga agregadas (se pueden encontrar en sección 4.2.1). Cada microprobeta tiene aproximadamente 3.6 millones de átomos.

Se llevaron a cabo dos etapas de ensayos distintas: la primer etapa consistió en utilizar parámetros similares a los implementados por M. Demkowicz [13], esto para comparar los resultados de fractoténacidad obtenidos y validar la metodología de cálculo de fractoténacidad; la segunda etapa consiste en realizar los ensayos y cálculos de manera similar, aunque a mayor temperatura para ver la tendencia de las propiedades mecánicas del material.

5.1. Validación de la metodología de cálculo

Se realizaron 5 ensayos de tracción con el objetivo de validar la metodología de cálculo de fractoténacidad. En todos se aplicó una temperatura de 473 K, con el fin de obtener resultados de fractoténacidad comparables con los de M. Demkowicz [13]. Las características microestructurales de los bicristales traccionados para la validación se ven en la Tabla 1, junto con los resultados obtenidos. En el

Figura 23 se pueden observar los resultados de resistencia a la propagación de fisuras en unidades de J/m^2 , en función del porcentaje de cobertura de BG (%GBCA). Si uno quisiera obtener los valores de fractoténacidad solo bastaría con utilizar la ecuación (4.12), reemplazando γ_f , el coeficiente de Poisson y el módulo de Young del Ni, $\nu = 0.29$ y $E = 200 \text{ GPa}$, respectivamente.

En estos primeros 5 ensayos se han intentado imitar algunas de las microestructuras desarrolladas por M. Demkowicz en su estudio de fragilización intergranular. Se utilizó la misma: distribución de diámetro de burbuja de He obtenida experimentalmente por Judge y col. [4]; relación He/V para burbujas intergranulares para cada probeta; %GBCA para cada probeta. Fijarse que las etiquetas utilizadas coinciden con las de la literatura [13].

De los ensayos realizados, uno solo fallo por fractura frágil intergranular, el único con %GBCA mayor al umbral indicado por Demkowicz, que es del 18% (para 473 K). El ensayo etiquetado como PN no contiene burbujas de Ni. En este caso no entra en juego la distribución aleatoria de burbujas de He, por lo que era de esperar que los resultados de fractoténacidad sean similares, y así fue, la resistencia a la propagación de fisuras solo se diferencia por unos pocos decimales con la obtenida por M. Demkowicz (36.3 J/m^2). Las probetas C3 y F2 dieron valores similares a los obtenidos por Demkowicz. Las probetas A1 y G3 dieron resistencias muy altas, al igual que algunos ensayos de Demkowicz con %GBCA bajo. Fijarse que cuanto más bajo es %GBCA mayor dispersión hay en los resultados. Esto se debe a la estocasticidad en la generación

de las burbujas, la distancia entre ellas, y la densidad de ellas cerca del frente de avance de fisura (se explica con más detalle en la próxima sección).

Etiqueta	Relación He/V (BG)	%GBCA	Tipo de fractura	Resistencia a la propagación de fisuras (γ_f) [J/m ²] (validación)	Resistencia a la propagación de fisuras (γ_f) [J/m ²] (Demkowicz)
PN	-	0	dúctil	36.52	36.30
A1	0.25	4.56	dúctil	207.23	34.4
G3	0.74	11.9	dúctil	198.541	86.6
C3	0.26	16.75	dúctil	27.528	21.9
F2	1.2	35.62	frágil	5.78	1.0

Tabla 1. Microestructuras obtenidas por M. Demkowicz [13], utilizadas para validar la metodología de cálculo de fractotenacidad de este trabajo. Se compara la resistencia a la propagación de fisuras calculada en este trabajo contra las obtenidas por Demkowicz.

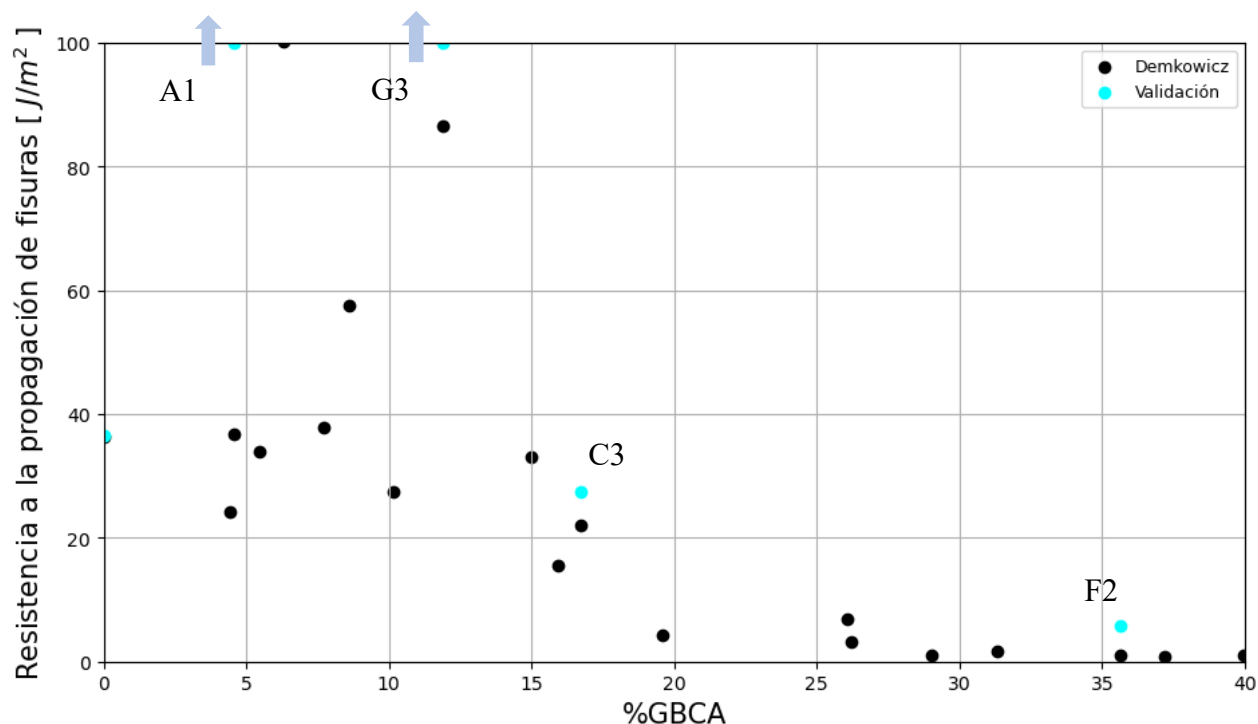


Figura 23. Resistencia a la propagación de fisuras en función del porcentaje de cobertura de BG (%GBCA). Se comparan los resultados obtenidos en este trabajo para la validación de la metodología de cálculo (puntos celestes) con los resultados de M. Demkowicz [13] (puntos negros).

5.2. Efecto del área de cobertura por burbujas de He en borde de grano

Los internos de las CNA se encuentran a mayores temperaturas que la estudiada en la subsección anterior (hasta $\approx 700\text{K}$). Estas temperaturas son alcanzadas debido a un fenómeno denominado calentamiento gamma, producto del proceso de fisión nuclear en los reactores de potencia. Se han obtenido distribuciones de burbujas de He en anillos espaciadores de Inconel X-750 [4] que aseguran haber estado en servicio a 573 K, por lo que utilizaremos esa misma distribución y temperatura para ver cómo afecta el aumento de esta última a la fractoténacidad de nuestras microprobetas de Ni.

En la subsección 4.3 se encuentran las ecuaciones utilizadas para generar las distribuciones de burbujas de He. Para la distribución de burbujas intragranulares a 573 K, los parámetros utilizados para la distribución de Fermi (4.9) fueron $t = 20 \text{ \AA}$, $w = 80 \text{ \AA}$, y $z_{BG} = 0$ (Figura 24). En la distribución Γ (4.11) los parámetros utilizados fueron $\alpha = 22 \text{ \AA}$, y $\theta = 0.1045$ (Figura 25). El algoritmo exige que la distancia entre superficies de burbujas no sea menor que 0.5 nm.

Se han simulado 12 microprobetas de Ni con distintos %GBCA (Tabla 2). Se fabricaron mayor cantidad de probetas con %GBCA en las cercanías de donde se esperaba encontrar el umbral para la fractura intergranular. A todas las burbujas intergranulares se les introdujo una relación He/vacancias igual a uno.

En la Figura 26 se observan las tensiones registradas durante los ensayos de tracción uniaxial de todas las microprobetas indicadas en la Tabla 2. Las caídas de tensión que se observan en las curvas luego de los picos proyectan la relajación del material debido a la emisión de dislocaciones. En algunos casos, por ejemplo, para 30.94%GBCA, comienza un descenso progresivo de la tensión y desaparecen los picos, lo cual indica que está ocurriendo fractura intergranular frágil y casi no hay emisión de dislocaciones.

N° Simulación	% GBCA
1	0
3	15.48
4	16.65
5	19.66
6	21.43
7	23.18
8	25.66
9	29.53
10	35.07
11	14.48
12	18.75
15	21.99

Tabla 2. Porcentaje de cobertura de BG para cada una de las 12 simulaciones de ensayo de tracción realizada.

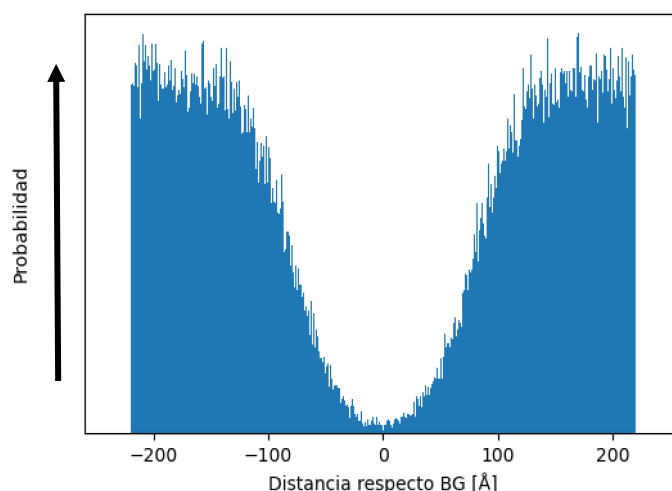


Figura 24. Distribución de Fermi-Dirac. Se observa la probabilidad de encontrar una burbuja en función de la distancia al plano de BG. La distribución se encuentra espejada respecto a z_{BG} .

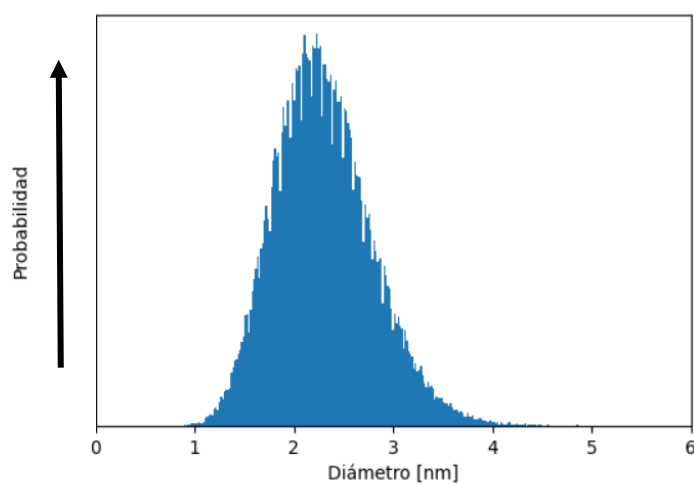
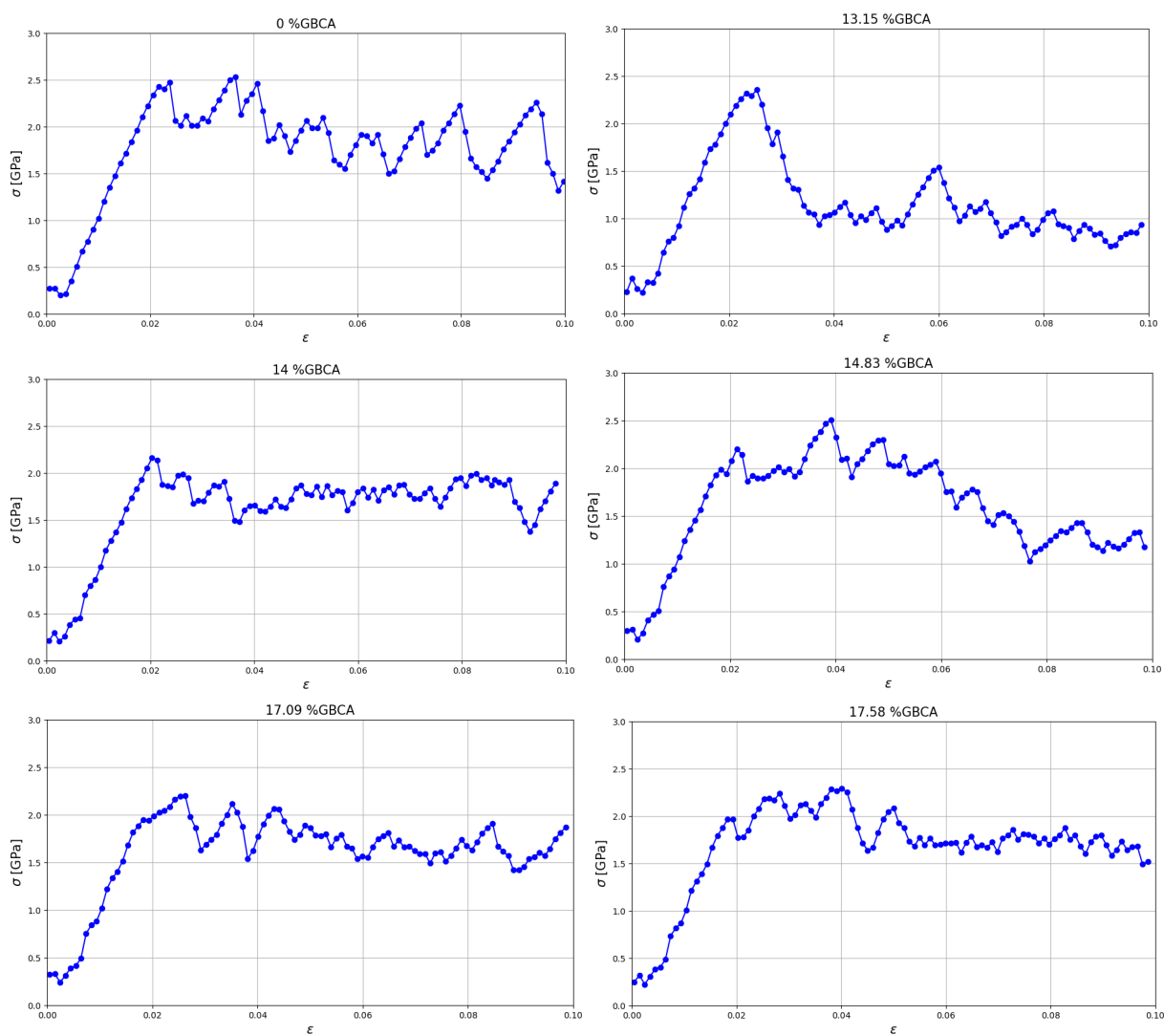


Figura 25. Distribución Γ . Probabilidad de encontrar una burbuja con un determinado diámetro.



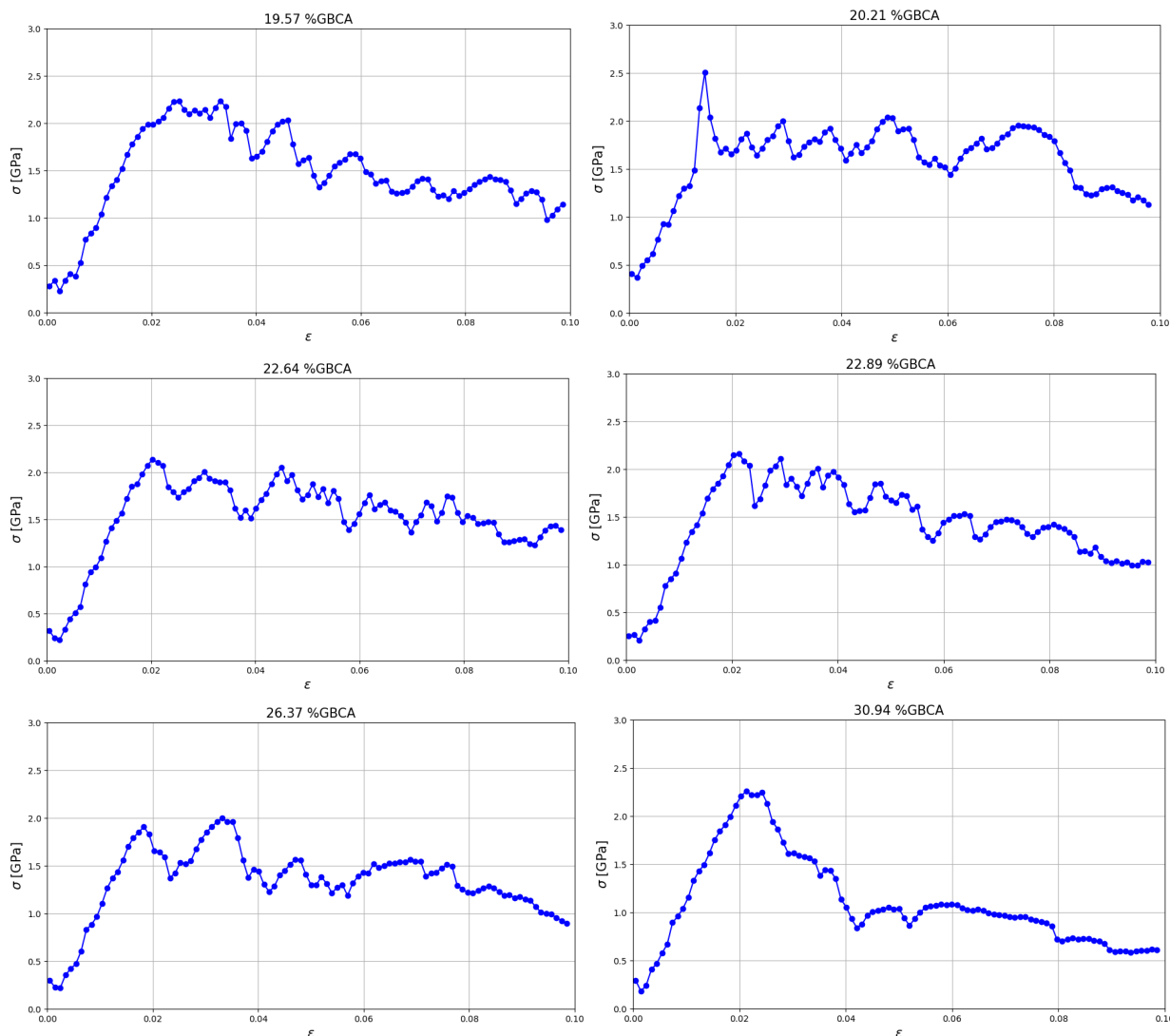


Figura 26. Diagramas tensión deformación de cada microprobeta de Ni ensayada con distinto %GBCA.

Podemos observar mediante OVITO el detalle de la estructura atómica de cada probeta. En el análisis de la probeta de Ni puro, sin burbujas de He, no se observa fractura intergranular frágil, únicamente deformación debido a la emisión de dislocaciones que viajan a través del plano principal $\{111\}$ de la estructura fcc (Figura 27). En la Figura 28 podemos diferenciar en una imagen un aumento de la superficie de la fisura debido a deformación plástica, y en otra un aumento debido a la ruptura de enlaces, siendo el último el caso de fractura frágil intergranular. Si prestamos atención a la ecuación (4.13), fácilmente se puede notar que a mayor %GBCA la resistencia a la propagación de fisura será menor, debido a que los resultados muestran que el área bajo la curva σ - ϵ de los ensayos de tracción es menor, y que el aumento de área de la fisura es mayor. También se puede predecir que Δd_s y Δd_o serán valores pequeños en los casos de fractura intergranular frágil respecto a los que deforman plásticamente, por lo que el incremento de área superficial debido a deslizamiento dará más bajo.

Siguiendo el procedimiento de la subsección 4.5 para calcular el %GBCA real, se encontró que las burbujas con una relación He/vacancia = 1 contraen su volumen durante la relajación. Los %GBCA de todas las probetas se vieron reducidos en promedio $\approx 10\%$.

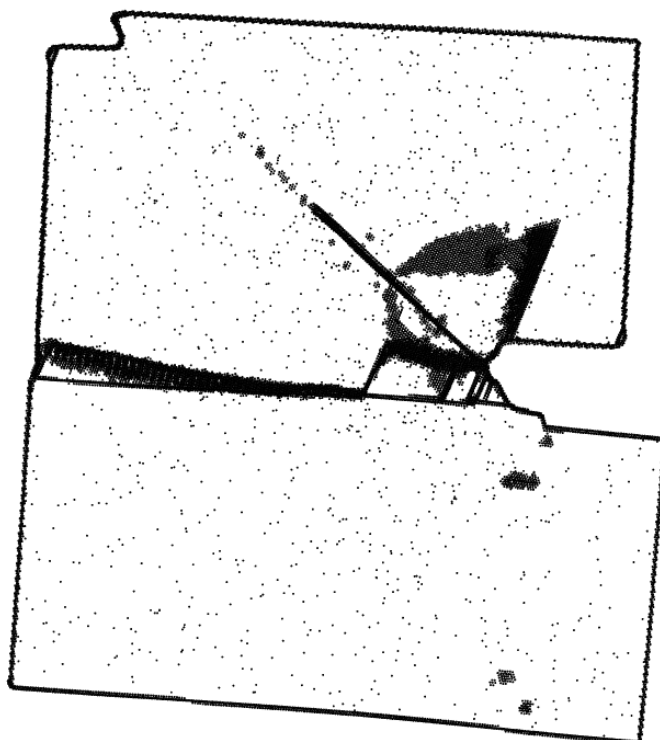


Figura 27. Probeta de Ni puro deformada mediante ensayo de tracción. Se puede observar una dislocación emitida debido a la concentración de tensiones en el vértice de la entalla. La dislocación se transporta a través del plano principal $\{111\}$ de la estructura fcc.

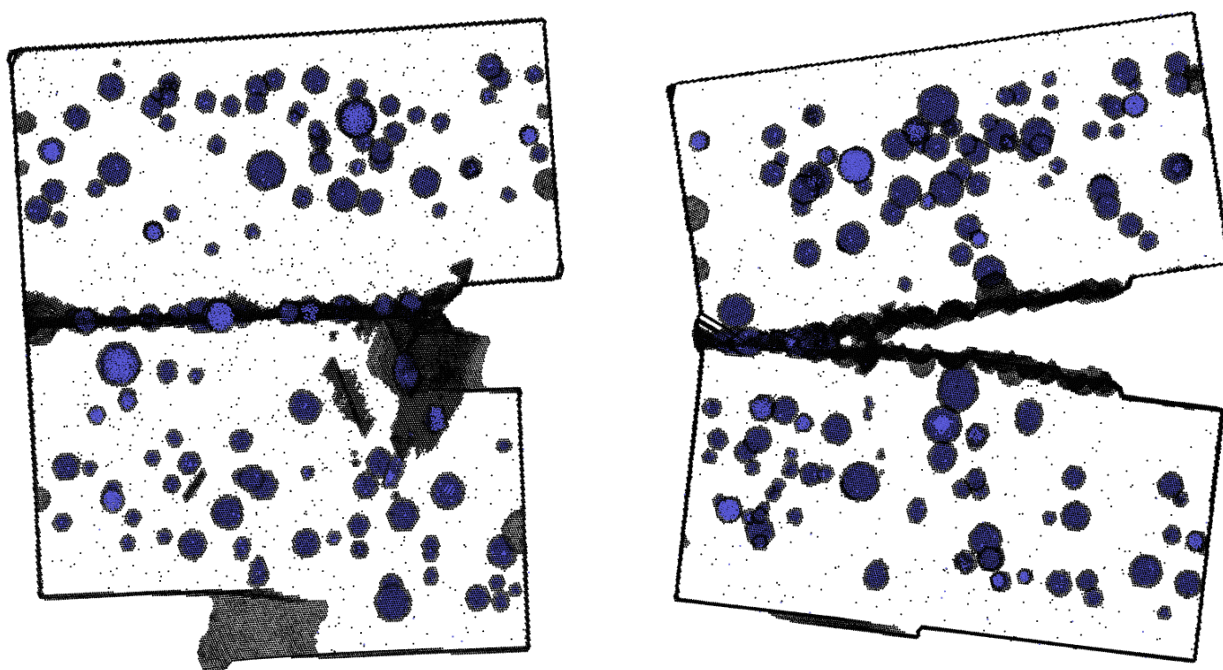


Figura 28. a) Probeta con 14.00%GBCA, el área de la fisura aumenta por deformación plástica. b) Probeta con 30.94%GBCA, el área de la fisura aumenta por ruptura de enlaces (fractura frágil intergranular).

En la Tabla 3 se vuelcan los resultados para cada una de las simulaciones: cuánto contraen las burbujas, el %GBCA final, el tipo de fractura, la resistencia a la propagación de fisuras, y cuánto avanzó la fisura debido al deslizamiento de planos cristalinos.

Nº Simulación	% GBCA	He/V (BG)	% Relajación	Tipo de falla	GBCA (real)	γ_f (J/m ²)	% de avance debido a deslizamiento
1	0	1	-	dúctil	0	29.39	39.41
11	14.48	1	9.2043682	dúctil	13.14720749	39.48	59.61
3	15.48	1	9.5323741	dúctil	14.00438849	31.27	31.06
4	16.65	1	10.916725	frágil	14.83236529	17.95	3.16
12	18.75	1	8.8538838	dúctil	17.0898968	20.02	11.31
5	19.66	1	10.602799	dúctil	17.57548977	51.55	33.19
15	21.99	1	10.961848	dúctil/frágil	19.57948952	14.15	7.13
6	21.43	1	5.6896552	dúctil/frágil	20.2107069	11.61	9.3
7	23.18	1	9.8396904	dúctil	20.89915976	34.74	32.8
8	25.66	1	10.769957	frágil	22.89642891	12.34	6.93
9	29.53	1	10.669291	frágil	26.37935827	8.22	5.39
10	35.07	1	11.756711	frágil	30.94692151	4.957	1.54

Tabla 3. Resultados de las simulaciones realizadas en el presente trabajo. Se muestran los porcentajes %GBCA ideal y real, la relación He/vacancias en las burbujas intergranulares, el porcentaje de relajación de las burbujas, el tipo de fractura, la resistencia a la propagación de la fisura y el porcentaje de avance de esta debido a la emisión de dislocaciones.

En la Tabla 3 se clasifican los tipos de falla cómo: dúctil, dúctil-frágil, y frágil. A la probeta N°4 se le realizó un análisis adicional, ya que tuvo una falla parcialmente intergranular frágil con bajo %GBCA. Se recalculó el %GBCA real, pero únicamente en el área que cubre la longitud hasta la que se propagó la fisura durante el ensayo de tracción (Figura 29). La probeta N°4 en todo el área de BG tiene 14.8%GBCA, pero en el área de rotura frágil, cerca del frente de fisura, se encuentra distribuida una mayor densidad de burbujas, que resultó ser $\approx 20.4\%$ GBCA. Esta localización de burbujas es causada por la estocasticidad del algoritmo de burbujas de He. Es de esperar que a menor %GBCA haya menor uniformidad en la distribución de burbujas de He. Esto último explica la diferencia entre los resultados obtenidos en este trabajo para validar la metodología de cálculo (sección 5.1) y los resultados obtenidos por M. Demkowicz [13] para bajos %GBCA. Para visualizar mejor el efecto del %GBCA en la fractoténacidad del material se presenta la Figura 30. Se puede ver la tendencia del bicristal a fallar por fractura intergranular frágil (menor fractoténacidad) a medida que aumenta el área de cobertura.

Nuestros ensayos muestran que las probetas no fallan completamente por fractura intergranular frágil cuando están por debajo de $\approx 20\%$ GBCA. Si comparamos con los resultados de la ref. [13], a mayor temperatura aumenta el %GBCA umbral para que ocurra fractura frágil intergranular en las microprobetas de Ni. Con un aumento de 100°C , el umbral aumento $\approx 2\%$.

Los resultados también muestran una proporcionalidad entre la resistencia a la propagación de fisuras y el porcentaje de avance de fisura por emisión de dislocaciones, donde este último representa la plasticidad del frente de fisura (Figura 31).

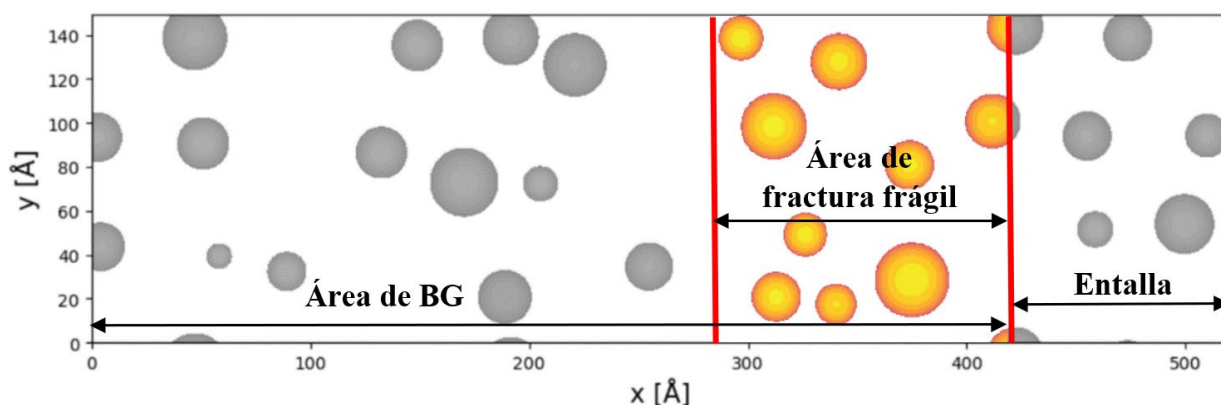


Figura 29. Plano de BG de simulación N°4. El área color representa la zona por donde se propaga la fisura durante el ensayo de tracción.

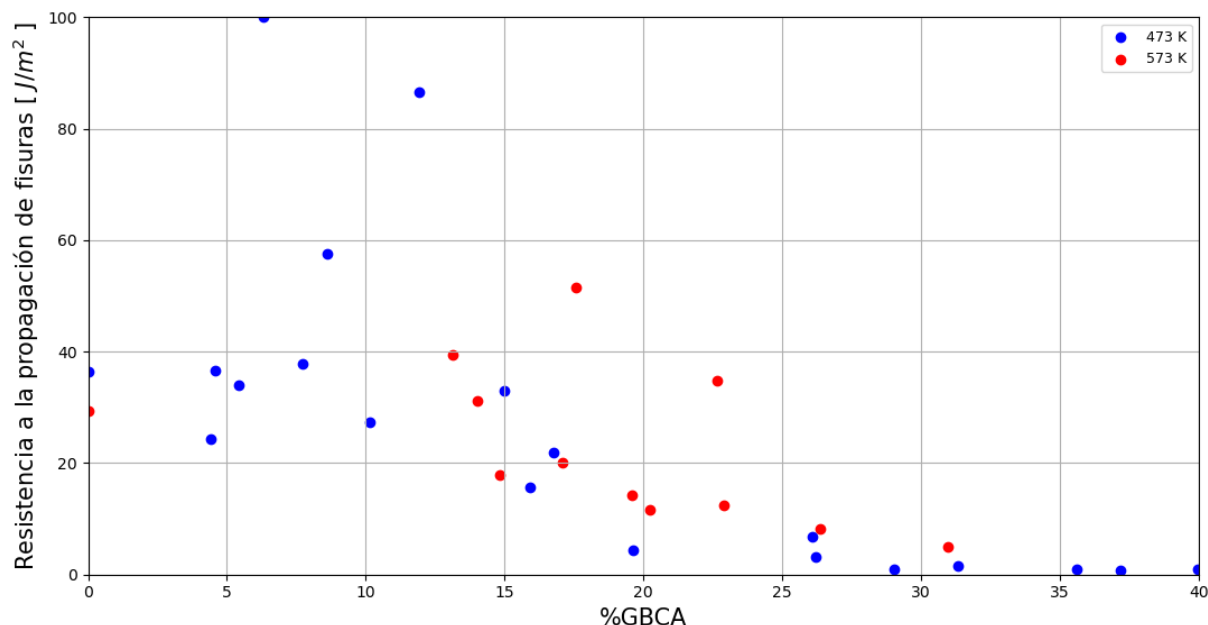


Figura 30. Resistencia a la propagación de fisuras en función del área de cobertura de burbujas de He en borde de grano. Se comparan los resultados obtenidos en este trabajo (573 K) con los obtenidos por M. Demkowicz [13].

Otro efecto que puede producir la estocasticidad de las burbujas de He es el avance no uniforme del frente de fisura. Si la distribución cerca del frente de fisura forma una mayor concentración de burbujas en una menor fracción del ancho de BG, este último puede avanzar como se observa en la Figura 32, donde se pueden observar las áreas de BG de las simulaciones N°5 y N°12 antes y después de ser traccionadas. El avance de fisura no uniforme se debe a la coalescencia de las burbujas concentradas en una menor fracción del ancho de BG. Una solución a este problema podría ser aumentar el ancho del BG. El problema de ello es que el tiempo de simulación es proporcional al volumen de la probeta, por lo que habría mayor costo computacional.

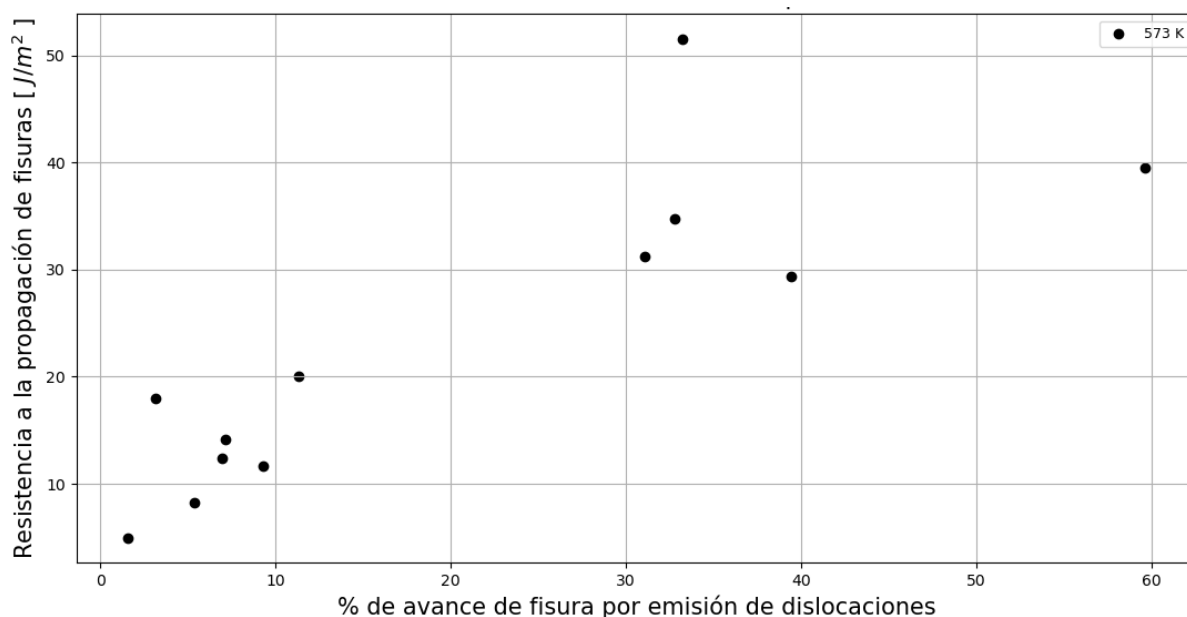


Figura 31. Resistencia a la propagación de fisuras contra la plasticidad del frente de fisura. Se observa una proporcionalidad en los resultados.

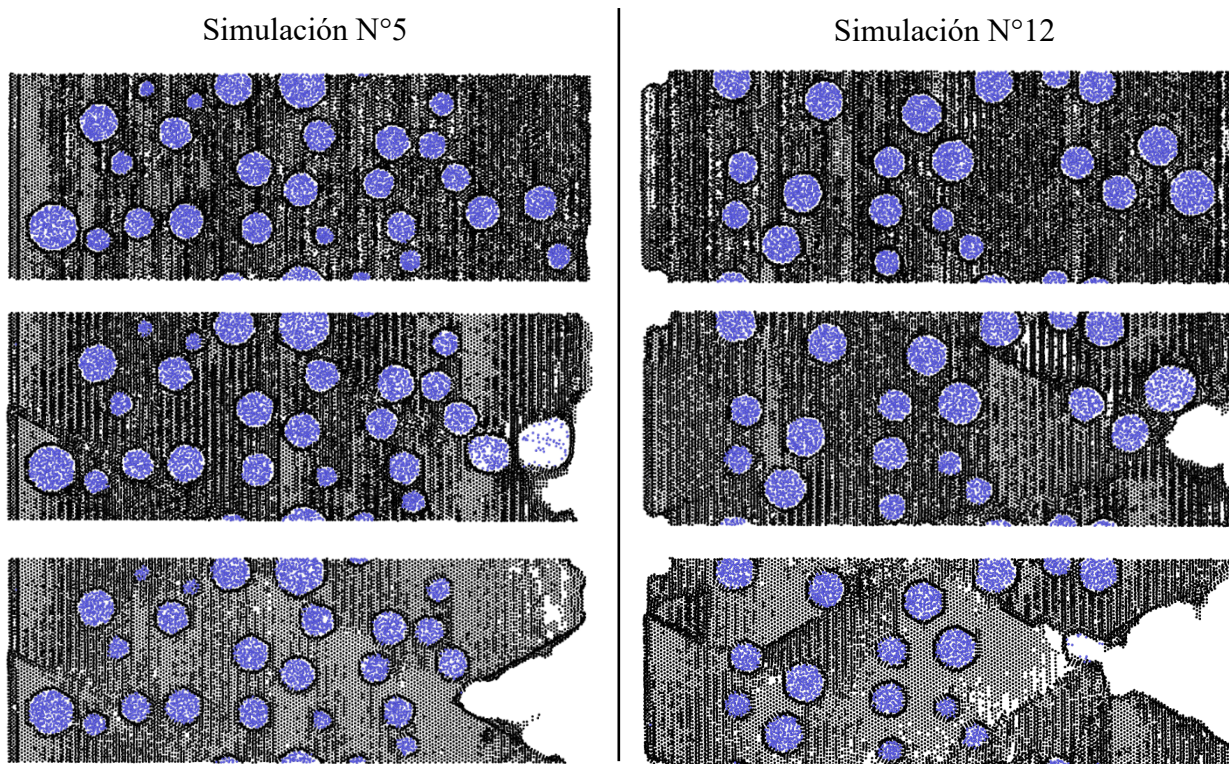


Figura 32. Visualización del plano de BG de las simulaciones N°5 y N°12. Se observa un espesor del plano xy desde $z = -4\text{\AA}$ hasta $z = 4\text{\AA}$ con OVITO. De arriba hacia abajo se observa como progresa el avance de fisura durante el ensayo de tracción, comienza a desaparecer área de BG debido a la ruptura de enlaces y el posterior desplazamiento de los átomos fuera del espesor dentro de $z = \pm 4\text{\AA}$.

6. CONCLUSIONES

En el presente trabajo se han desarrollado distintos códigos de simulación para observar la fractura frágil intergranular de un bicristal de Ni con distintas distribuciones de burbujas de He embebidas, y finalmente obtener la tendencia de la tenacidad a la fractura frente a un aumento de temperatura.

Construimos satisfactoriamente un borde de grano $\Sigma 9\{111\}/\{115\}$ cuya energía superficial fue coincidente con la encontrada en la literatura [13]. Implementar la superficie y para el cálculo de la energía de borde de grano fue de gran ayuda para la construcción del BG.

La tasa de deformación, para un ensayo de tracción realizado a través de cálculos de dinámica molecular, debió ser seleccionada cautelosamente. Realizar ensayos a distintas tasas de deformación ha permitido comprobar que ésta afecta a los mecanismos de relajación. A mayor tasa de deformación, mayor módulo de rigidez (se aleja del real), mayor tensión de fluencia, y deja de ser visible la emisión de dislocaciones desde el frente de fisura.

A pesar de haber tenido instalaciones con buenas capacidades computacionales y lograr paralelizar nuestras simulaciones en 64 procesadores, los ensayos de tracción de este trabajo se han realizado a tasas de deformación muy altas, $66.7 \mu\text{s}^{-1}$, velocidades que en la realidad se verían explosivas. La tasa de deformación elegida se definió haciendo un balance entre la obtención de resultados realistas y el tiempo de simulación de cada ensayo. Zhihao Jiang y col. [20] observaron micromaclado y deslizamiento de dislocaciones como principales mecanismos de deformación en Ni nanocristalino a tasas de deformación de hasta $1 \mu\text{s}^{-1}$, dándole cierta confiabilidad a nuestros resultados.

Se lograron reproducir dos distribuciones de burbujas de He encontradas en los anillos espaciadores utilizados en centrales tipo CANDU [4]. Debido a este trabajo, ahora se tiene un algoritmo capaz de embeber cualquier distribución de burbujas obtenido experimentalmente en un bicristal desarrollado por simulación computacional.

Mediante técnicas de dinámica molecular y análisis de imagen se ha validado una metodología de cálculo de resistencia a la propagación de fisuras o tenacidad a la fractura de un bicristal con entalla. Gran parte de esta metodología está basada en la ref. [13], con ella comparamos nuestros resultados para la validación y fueron coherentes.

Las burbujas de relación He/vacancias = 1, luego de relajar la probeta hasta alcanzar el equilibrio, contrajeron y redujeron en promedio 10% al GBCA. Esta relajación se debe a que los átomos de He y las vacancias se insertan en la posición donde se encontraban los átomos de Ni. El He y las vacancias inicialmente forman la fcc del Ni, pero luego de relajar se acomodan en función del potencial interatómico modificando el volumen de las burbujas.

Durante los ensayos de tracción, en las etapas donde ocurre rotura frágil intergranular, no se registran los picos que representan la emisión de dislocaciones en los diagramas σ - ϵ . También, las probetas que fallaron parcial o completamente en modo frágil mostraron un bajo porcentaje de avance de fisura debido a deslizamiento. El aumento del %GBCA afectó significativamente a la fractoténacidad, disminuyéndola. A mayor %GBCA, menor es el área remanente en BG, en esta área remanente también se encuentran las burbujas que actúan como concentradores de tensiones. Es así como le resulta más fácil a la ruptura de enlaces actuar como mecanismo de relajación de tensión antes que a la emisión de dislocaciones. A medida que aumenta la carga aplicada, coalescen más burbujas, contribuyendo así al avance de la fisura.

Cuando el %GBCA es bajo hay emisión de dislocaciones desde el frente de fisura y este se redondea, avanzando en la dirección del plano principal al cual se emiten las dislocaciones.

La estocasticidad del algoritmo generador de distribuciones de burbujas de He produce mayor dispersión en los resultados de la tenacidad a la fractura cuanto menor es el %GBCA. A alto %GBCA la distribución de burbujas tiene mayor uniformidad, ya que se intenta ocupar todo el área de BG, pero a bajo %GBCA las burbujas pueden acumularse en distintas zonas, como en el frente de fisura. Esto último genera fallas parcialmente frágiles a bajos %GBCA. La acumulación de burbujas en el frente de fisura, al hacerlo en una pequeña fracción del ancho, puede inducir al avance no uniforme del frente de fisura. La solución a este problema es aumentar el ancho de BG, pero esto implica mayor costo computacional.

Para mejorar los inconvenientes de costo computacional que traen las técnicas de dinámica molecular en los estudios de la fractoténacidad de materiales, se podría aplicar la solución de Wastergaard para fisuras [21], concentrando el poder de cómputo únicamente en las cercanías de la fisura, lo que permitiría reducir el volumen de la probeta.

Finalmente, establecemos que a 573 K el umbral para que ocurra fractura frágil intergranular es 20%GBCA, ya que a valores más bajos no se encontraron probetas que fallen completamente de ese modo. Al aumentar 100°C el umbral aumento $\approx 2\%$.

7. BIBLIOGRAFÍA

- [1] J Barón and B Bastianelli, "Modelado de una secuencia de blackout en Atucha I con el código March 3," *Ente Nacional Regulador Nuclear (ENREN)*.
- [2] Malcolm Griffiths and Robin Boothby, "Radiation Effects in Nickel-Based Alloys," *Comprehensive Nuclear Materials*, pp. 123-150, Sept 2019.
- [3] Grant Bickel, Stephen Douglas, and Malcolm Griffiths, "Irradiation-Induced Embrittlement of Inconel 600 Flux," *Journal of Energy and Power Engineering* 6, pp. 188-194, 2012.
- [4] Colin D. Judge and Nicolas Gauquelin, "Intergranular fracture in irradiated Inconel X-750 containing very high concentrations of helium and hydrogen," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 457, pp. 165-172, Feb 2015.
- [5] Malcolm Griffiths, "Assesment of the Proposed Methodology to be Employed in the CNA-Unit1 TLAA," *Advanced Nuclear Technology International*, Nov. 2019.
- [6] Esteban José Pablo Isoardi, "Métodos de modelado y simulación de metales y aleaciones," Facultad de Ciencias Exactas. Universidad de Buenos Aires., Tesis de Doctorado. 2003.
- [7] M. I. Baskes and Murray S. Daw, "Embedded-atom method: Derivation and application to impurities, surfaces, and other defects in metals," *Phys. Rev. B*, vol. 29, pp. 6443-6453, Oct. 1983.
- [8] Sandia National Laboratories. (2010, October) LAMMPS Molecular Dynamics Simulator. [Online]. https://docs.lammps.org/Intro_overview.html
- [9] Alexander Stukowski. (2020) OVITO GmbH. [Online]. <https://www.ovito.org/about/>
- [10] Helmut Föll. (2019, Oct) Defects in Crystals. [Online]. https://www.tf.uni-kiel.de/matwis/amat/def_en/
- [11] Joseph C. Tucker, "Synthetic Microestructure-Based Lifting of Ni-Based Superalloys," Carnegie Mellon University, Pensilvania, Tesis de Doctorado Dic 2013.
- [12] S. Ranganathan, "On the Geometry of Coincidence-Site Lattice," *Acta Cryst.*, vol. 21, pp. 197-199, Oct. 1964.
- [13] Michael J. Demkowicz, "A threshold density of helium bubbles induces a ductile-to-brittle transition at a grain boundary in nickel," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 533, May 2020.
- [14] Jonathan R. Shewchuk, *An Introduction to the Conjugated Gradient Method Without the Agonizing Pain*. School of Computer Science; Carnegie Mellon University; Pittsburgh, 1994.
- [15] Hui Zheng et al., "Grain boundary properties of elemental metals," *Acta Materialia*, vol. 186, pp. 40-49, March 2020.
- [16] Wen Yu-Hua and Zhu Zi-Zhong, "Molecular dynamics study of the mechanical behavior of nickel nanowire: Strain rate effects," *Computational Materials Science*, vol. 41, pp. 553-560, Feb. 2007.
- [17] Zhigang Ruan, "Effects of Strain Rate, Temperature and Grain Size on the Mechanical Properties and Microstructure Evolutions of Polycrystalline Nickel Nanowires: A Molecular Dynamics Simulation," *Wuhan University. Journal of Natural Science*, 2017.
- [18] Cynthia L. Kelchner, S. J. Plimpton, and J. C. Hamilton, "Dislocation nucleation and defect structure during surface indentation," *Phys. Rev. B*, vol. 58, pp. 11085-11088, Nov 1998.
- [19] Wayne Rasband. (1997) ImageJ. [Online]. <https://imagej.nih.gov/ij/docs/intro.html>

- [20] Zhihao Jiang et al., "The deformation mechanism of nanocrystalline nickel under high strain rate," *Materials Letters*, vol. 305, Diciembre 2021.
- [21] H. M. Westergaard, "Bearing Pressures and Cracks," *Journal of Applied Mechanics*, , vol. 6, pp. A49-53, 1939.