

**“ANÁLISIS DE LA EXISTENCIA DE  
PRECIPITADOS TARDÍOS (LATE  
BLOOMING PHASE) EN EL ACERO DEL  
RPV DE CNA-I”**

**CARRERA: “ESPECIALIZACIÓN EN REACTORES  
NUCLEARES Y SU CICLO DE COMBUSTIBLE”**

Alumno: Federico José Carlin Llorente

Directora: Adriana Politi

Mes y Año: Noviembre, 2013



**UNSAM**  
UNIVERSIDAD  
NACIONAL DE  
SAN MARTÍN

# Índice

Lista de abreviaturas.....	3
1. Resumen.....	5
2. Conceptos generales.....	5
2.1 Estructura cristalina.....	5
2.2 Enlace metálico.....	8
2.3 Imperfecciones en el arreglo atómico.....	9
3. Daño por radiación neutrónica.....	12
3.1 Interacción de los neutrones con la materia.....	12
3.2 Fenomenología de la cascada de colisiones.....	15
3.3 Tipos de defectos producidos en el material y su distribución espacial.....	19
3.4 Degradación de las propiedades mecánicas.....	20
3.4.1 Endurecimiento y fragilización por irradiación neutrónica.....	20
3.5 Influencia de las distintas variables dominantes sobre el daño neutrónico....	23
3.6 Indexación del daño neutrónico – dpa.....	28
4. Análisis de la existencia del Late Blooming Phase en el acero del RPV de CNA-I.....	28
4.1 Mecanismo de endurecimiento y fragilización inducido por Late Blooming Phase.....	28
4.2 Caso de estudio: material base del RPV de CNA-I.....	34
4.2.1 Descripción del RPV de CNA-I.....	34
4.2.2 Análisis de la existencia de Late Blooming Phase.....	36
5. Extensión de vida de Centrales Nucleares.....	40
5.1 Antecedentes.....	40
5.2 Correlaciones para predecir el $\Delta RT_{NDT}$ .....	41
5.3 Aplicación de las correlaciones para el $\Delta RT_{NDT}$ en el material base del RPV de CNA-I.....	45
5.4 Análisis de los resultados obtenidos por las correlaciones.....	51

6. Conclusión.....	54
7. Agradecimientos.....	55
8. Referencias.....	56

## Lista de abreviaturas

APP	A Plena Potencia
ART <sub>NDT</sub>	Adjusted Reference Temperature (Nil Ductility Temperature)
ASTM	American Society for Testing and Materials
BCC	Body Centered Cubic
BM	Base Material
BR-2	Belgian Reactor 2
CANDU	CANada Deuterium Uranium
CF	Chemistry Factor
CNA-I	Central Nuclear Atucha-I
CNA-II	Central Nuclear Atucha-II
CRPs	Copper Rich Precipitations
DBTT	Ductile to Brittle Transition Temperature
Dpa	Desplazamiento por átomo
EoL	End of Life
EONY	Eason, Odette, Nanstad & Yamamoto
eV	Electron Volt
FMDs	Freely Mignating Defects
ISI	In Service Inspection
K-MC	Kinetic Monte Carlo
LBP	Late Blooming Phase
MD	Molecular Dynamics/ Matrix Damage
MNPs	Manganese Nickel Precipitations
NA-SA	Nucleoeléctrica Argentina Sociedad Anónima
NRT	Norgett, Robinson & Torrens
PAS	Positron Annihilation Spectroscopy
PHWR	Pressurized Heavy Water Reactor
PKA	Primary Knock-on Atom
PTS	Pressurized Thermal Shock

PWR	Pressurized Water Reactor
RG 1.99 rev.2	Regulatory Guide revision 2
RPV	Reactor Pressured Vessel
RT <sub>NDT</sub>	Reference Temperature (Nil Ductility Temperature)
RT <sub>PTS</sub>	Reference Temperature (Pressurized Thermal Shock)
SCK·CEN	STUDIECENTRUM VOOR KERNENERGIE CENTRE D'ÉTUDE DE L'ÉNERGIE NUCLÉARE
SIA <sub>s</sub>	Self Interstitial Atoms
SMD	Stable Matrix Damage
VAK	VERSUCHSATOMKRAFTWERK KAHL

## 1. Resumen

En el presente trabajo se estudian los mecanismos de formación de los Late Blooming Phase (LBP) que generan un endurecimiento y fragilización adicional a los conocidos precipitados ricos en Cu, inducidos por la radiación neutrónica. Estos se hacen relevantes a fluencias más allá de la vida por diseño de un reactor nuclear. Finalmente se realiza un análisis de su posible existencia en el material base del RPV de la Central Nuclear Atucha I, debido a su probable extensión de vida. También se han aplicado distintas correlaciones que permiten estimar el corrimiento de la temperatura de transición dúctil-frágil del material y se ha determinado cual es la que mejor ajusta a los valores reales.

## 2. Conceptos generales

### 2.1 Estructura cristalina

La estructura de un material se puede describir en cuatro niveles, ver figura 1.

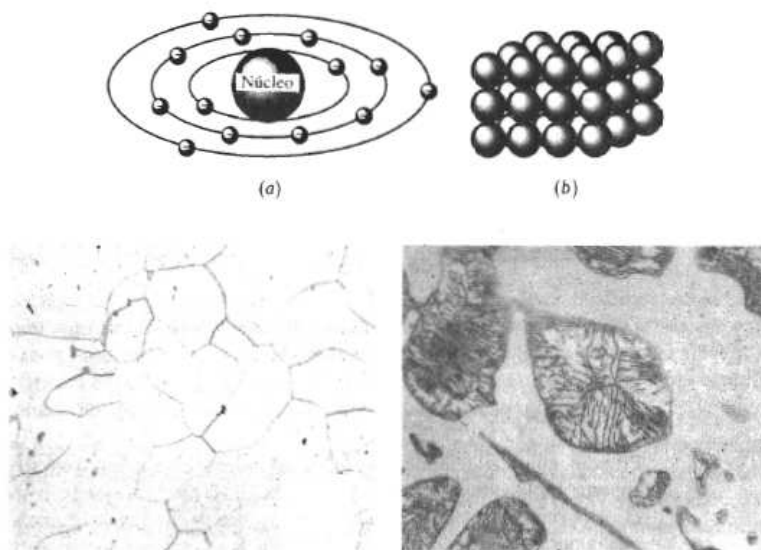


Figura 1 – Cuatro niveles de estructura en un material: (a) estructura atómica, (b) estructura cristalina, (c) estructura granular y (d) estructura multifásica en el hierro.

Las características de la estructura en cada uno de los niveles determinan las propiedades del material. La disposición de los electrones que rodean al núcleo de los átomos individuales determina el comportamiento eléctrico, magnético, térmico y óptico del material. Además, la configuración electrónica influye en la forma en que los átomos se unen entre sí.

Los metales, semiconductores, muchos cerámicos y algunos polímeros tienen una organización de átomos muy regular, es decir una **estructura cristalina**. Otros materiales cerámicos y muchos polímeros no tienen una organización atómica ordenada.

Estos materiales se llaman *amorfo* o *vítreo* y se comportan de manera muy distinta a los materiales cristalinos. Por ejemplo el polietileno vítreo es transparente, en tanto que el polietileno cristalino es traslúcido. Se puede controlar las imperfecciones en la organización atómica a fin de producir cambios profundos en las propiedades.

En la mayor parte de los metales, de los cerámicos y semiconductores se encuentra una estructura granular. El tamaño y forma de los granos influye en el comportamiento del material.

Finalmente, en la mayor parte de los materiales se presenta más de una *fase* (sistema o parte de un sistema de composición química y estructura física homogénea, es decir, presenta propiedades intensivas uniformes en todos sus puntos, ej: T de fusión y T de ebullición) teniendo cada una de ella su arreglo atómico y propiedades únicas. El control del tipo, tamaño, distribución y cantidad de estas fases dentro del material es otra de las principales formas de controlar las propiedades.

Para aquellos materiales sólidos cristalinos, se define la *celda unitaria* es la subdivisión de la red cristalina que sigue conservando las características generales de toda la red. Al aplicar celdas unitarias idénticas, se puede construir toda la red. Ver figura 2.



Figura 2 - Celda unitaria.

Se identifican 14 tipos de celdas unitarias o *redes de Bravais* agrupadas en siete sistemas cristalinos (ver figura 3 y tabla 1). Los *parámetros de la red*, que describen el tamaño y la forma de la celda unitaria, incluyen las dimensiones de los costados de la celda unitaria y los ángulos entre sus costados.

**Número de átomos por celda unitaria.** Cada una de las celdas unitarias está definida por un número específico de puntos de la red.

**Número de coordinación.** El número de átomos que tocan a otro en particular, es decir, el número de vecinos más cercanos, es el número de coordinación y es una indicación de que tan estrecha y eficazmente están empaquetados los átomos [1].

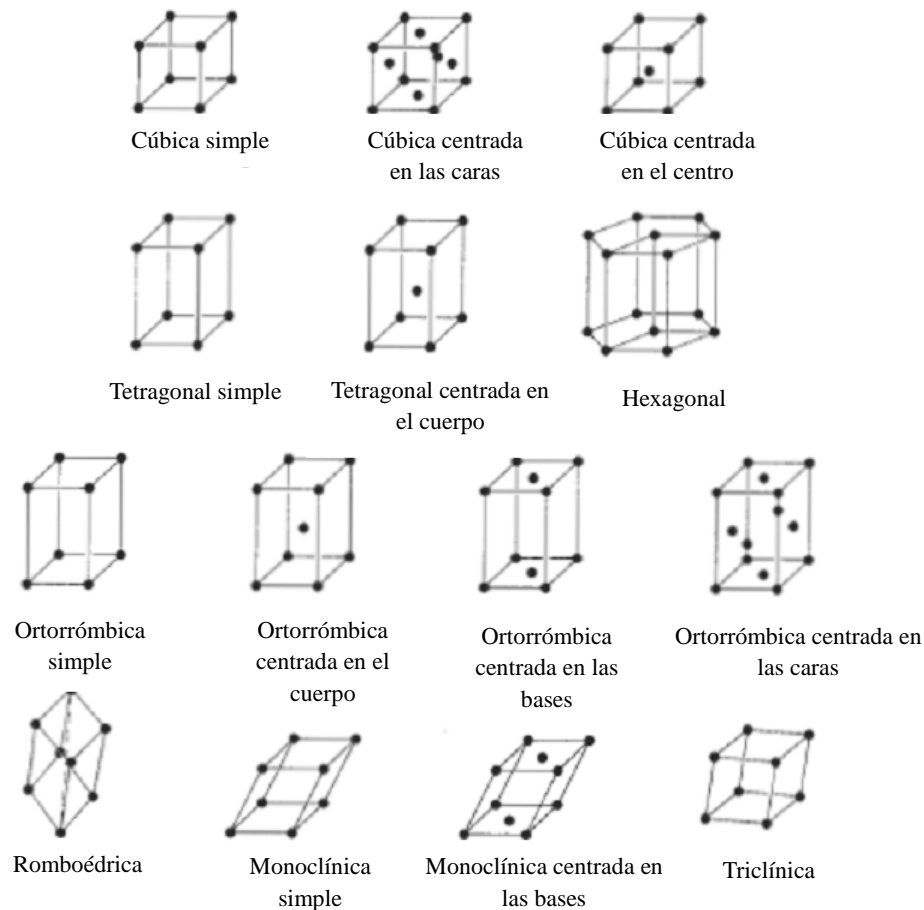
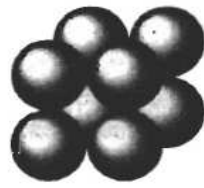


Figura 3 – Los catorce tipos de celdas unitarias, o redes de Bravais, agrupados en siete sistemas cristalinos. Las características de los sistemas cristalinos se resumen en la tabla 1.

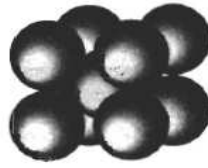
Estructura	Ejes	Ángulos entre ejes
Cúbica	$a = b = c$	Todos los ángulos de $90^\circ$
Tetragonal	$a = b \neq c$	Todos los ángulos de $90^\circ$
Ortorrómbica	$a \neq b \neq c$	Todos los ángulos de $90^\circ$
Hexagonal	$a = b \neq c$	Dos ángulos de $90^\circ$ , un ángulo de $120^\circ$
Romboédrica	$a = b = c$	Todos los ángulos son iguales y ninguno es de $90^\circ$
Monoclínica	$a \neq b \neq c$	Dos ángulos de $90^\circ$ , un ángulo ( $\beta$ ) $\neq 90^\circ$
Triclínica	$a \neq b \neq c$	Todos los ángulos son distintos y ninguno es de $90^\circ$

Tabla 1 - Características de los sistemas cristalinos.

## Modelos de celdas unitarias



Cúbica simple



Cúbica centrada  
en el cuerpo



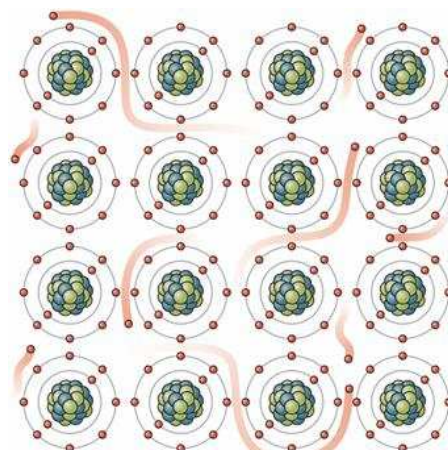
Cúbica centrada  
en las caras

## 2.2 Enlace metálico

Es el tipo de enlace que se produce cuando se combinan entre sí los elementos metálicos; es decir, elementos de electronegatividades bajas. Habitualmente, las sustancias metálicas están formadas por átomos de un solo elemento aunque también se obtienen por combinaciones de elementos (aleaciones).

La formación del enlace metálico se explica a través del modelo de la nube de electrones, el cual postula:

- Los átomos metálicos ceden sus electrones de la capa más externa a la “nube electrónica” que engloba a todos los átomos de la red. Así, el enlace metálico resulta de las atracciones electrostáticas entre los restos positivos y los electrones móviles que pertenecen en su conjunto a la red metálica. Ver figura 4.
- En el enlace metálico, los electrones no pertenecen a ningún átomo determinado. Además, es un enlace no dirigido, porque la nube electrónica es común a todos los restos atómicos que forman la red.



Copyright © 2006 Pearson Prentice Hall, Inc.

Figura 4 - En el enlace metálico, los electrones de la capa más externa se encuentran deslocalizados, y los núcleos se encuentran como iones positivos unidos por los electrones deslocalizados. Aun así, a los elementos metálicos se los representa de manera no iónica en la simbología química y en la nomenclatura.

- Hay que aclarar que los átomos cuando han cedido los electrones a la nube común, no son realmente iones, ya que los electrones quedan dentro de la red, perteneciendo a todos los "restos positivos".
- Este modelo es muy simple y sirve para interpretar muchas de las propiedades de los metales; aunque tiene ciertas limitaciones, principalmente en la explicación de la diferente conductividad de algunos metales.

## **Propiedades de los metales**

Las propiedades que se dan en los metales son consecuencia del tipo de enlace que se da entre sus átomos. Algunas de estas propiedades son:

- A excepción del mercurio, los metales puros son sólidos a temperatura ambiente. No obstante, sus puntos de fusión son muy variables, aunque generalmente altos.
- Son buenos conductores de la electricidad y del calor, debido al movimiento de los electrones. Se les llama conductores. Al aumentar la temperatura disminuye la conductividad por incrementarse el rozamiento entre los electrones.
- Presentan brillo característico.
- Presentan el llamado "efecto fotoeléctrico"; es decir, cuando son sometidos a una radiación de determinada energía, emiten electrones.
- Se suelen disolver unos en otros formando disoluciones que reciben el nombre de aleaciones.
- Son dúctiles y maleables. Esto es debido a la no direccionalidad del enlace metálico y a que los "restos positivos" son todos similares, con lo que cualquier tracción no modifica la estructura de la red metálica, no apareciendo repulsiones internas.

## **2.3 Imperfecciones en el arreglo atómico**

En todos los materiales el arreglo de los átomos contiene imperfecciones que tienen un efecto profundo sobre el comportamiento de los materiales. Mediante el control de las imperfecciones reticulares, creamos metales y aleaciones más resistentes, imanes más poderosos, vidrios y cristales de colores extraordinarios y muchos otros materiales de importancia práctica.

Presentaremos los tres tipos básicos de imperfecciones de red:

1. Defectos puntuales
2. Defectos lineales o dislocaciones
3. Defectos de superficie

Sin embargo, que estas imperfecciones solo representan defectos en relación con el arreglo atómico perfecto, y no con el material mismo. De hecho, estos “defectos” pudieron haber sido agregados de manera intencional, a fin de producir un conjunto deseado de propiedades mecánicas y físicas.

### 1) Defectos puntuales

Un defecto puntual es en donde un átomo falta o se encuentra en un lugar irregular en la estructura cristalina, ver figura 5. Estos pueden ser:

- Átomos autointersticiales (SIAs)
- Átomos de impurezas intersticiales
- Átomos sustitucionales
- Vacancias

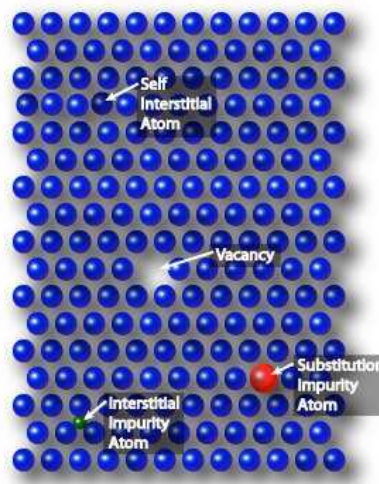


Figura 5 – Defectos puntuales en una red cristalina.

### 2) Defectos lineales o dislocaciones

Son defectos de la red cristalina de dimensión uno, es decir que afectan a una fila de puntos (falta una línea de átomos). Son función de la estructura cristalina, el grado de trabajado mecánico que sufrió el material durante su conformado, la temperatura de trabajo, etc., por lo tanto se producen durante la solidificación y la deformación del material. Son defectos lineales metaestables.

Por tratamientos térmicos puede disminuirse la cantidad de dislocaciones.

Existen dos tipos de dislocaciones:

- **Dislocaciones de borde:** pueden ser fácilmente visualizadas como un plano adicional de átomos en medio de la red. Existe una interacción fuerte entre estas dislocaciones, entonces pueden llegar a aniquilarse.
- **Dislocaciones de hélice:** forman una superficie espiralada formada por los planos atómicos alrededor de la línea de dislocación y se genera al aplicar un esfuerzo.

En la figura 6 se esquematizan los tipos de dislocaciones.

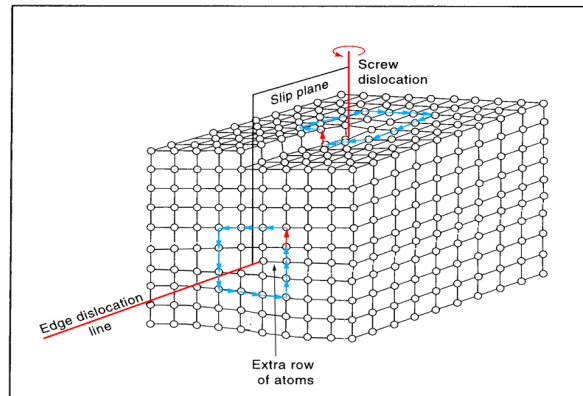


Figura 6 – Dislocaciones en una red cristalina.

La existencia de estas dislocaciones hace posible la deformación plástica de los metales, debido a su movimiento o deslizamiento. En la figura siguiente, se representa de forma esquemática, este movimiento.

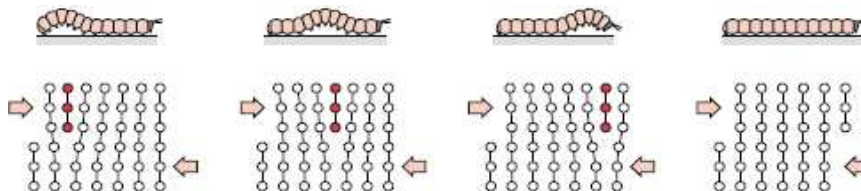


Figura 7 – Representación del movimiento de las dislocaciones en la red.

### 3) Defectos de superficie

Son las fronteras o planos que separan un material en regiones de la misma estructura cristalina pero con orientaciones cristalográficas distintas.

Se puede distinguir en:

**Superficie del Material:** en las superficies externas del material la red termina de manera abrupta. Cada átomo de la superficie ya no tiene el mismo número de coordinación y se altera el enlace atómico. Asimismo, la superficie puede ser muy áspera, contener pequeñas muescas y quizás ser mucho más reactiva que el interior del material.

**Borde de grano o Frontera de grano:** La microestructura de la mayor parte de los materiales está formada por muchos granos. Un grano es una porción del material dentro del cual el arreglo atómico es idéntico. Sin embargo, la orientación del arreglo atómico, o de la estructura cristalina, es distinta para cada grano. En la figura 8 se muestran de manera esquemática tres granos: la red de cada uno de ellos es idéntica pero están orientados de manera distinta. El *borde de grano*, es una zona estrecha en la cual los átomos no están correctamente espaciados [1].

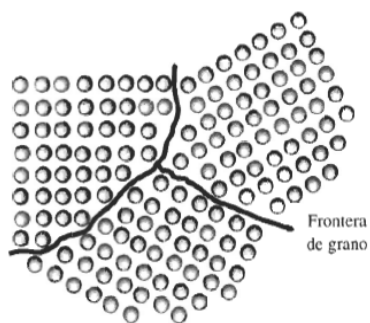


Figura 8 – Representación de tres granos, con sus respectivas fronteras de grano o también llamadas borde de grano.

### 3. Daño por radiación neutrónica en aceros

#### 3.1 Interacción de los neutrones con la materia

Los neutrones son partículas sin carga que pueden penetrar la nube electrónica de un átomo e interactuar con el núcleo. Su carga neutra hace necesario plantear potenciales de interacción diferentes de los que se usan para las partículas cargadas.

Al existir neutrones de variadas energías, es necesario realizar una clasificación, la cual es la siguiente:

- **Térmicos:** están en equilibrio con el medio que los rodea, no habiendo en promedio un intercambio neto de energía entre neutrones y átomos.  $E < 0.5$  eV.
- **Intermedios o epitérmicos:** abarcan energías desde 0,5 eV hasta aproximadamente  $10^4$  eV. El valor de 0,5 eV como límite inferior está tomado de la capacidad del cadmio para absorber neutrones de bajas energías ( $\sigma$  alcanza 57000 barns para neutrones de 0.025 eV).
- **Rápidos:** energías están comprendidas entre  $10^4$  eV y  $10^7$  eV (10 MeV). Por lo general todos los neutrones al nacer están comprendidos en esta región energética, pasando luego a energías menores por colisiones sucesivas.
- **Relativistas:** son aquellos cuyas energías cinéticas son superiores a los 10 MeV, en cuyo caso esta energía es una fracción apreciable del total (energía cinética más energía en reposo) por lo que se deben aplicar correcciones relativistas en el tratamiento de los mecanismos de interacción.

Si el neutrón posee suficiente energía, puede colisionar con un núcleo y arrancarlo de su posición en la red y crear así un defecto.

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

- **Dispersión:** la colisión del neutrón con un núcleo durante la cual le transfiere una energía mayor que un cierto umbral y, sin embargo el núcleo no cambia de naturaleza. Estas colisiones pueden ser tanto elásticas (colisiones clásicas de esferas duras), o inelásticas. Para que ocurra el neutrón debe tener una  $E_n > 100$  eV. La energía umbral para los desplazamientos,  $T_d$ , depende del núcleo blanco y de la dirección de colisión, pero, en principio es de unas decenas de eV.
- **Absorción:** el neutrón es capturado por el núcleo produciendo un núcleo compuesto excitado con masa  $M_2 + 1$  que es inestable y que decae en unos  $10^{-16}$  s con la emisión de neutrones, protones y radiación y/o productos de fisión. El "rebote" conectado con la emisión de productos de decaimiento puede conducir a un átomo desplazado. La captura puede ocurrir tanto para los neutrones de muy baja energía (0,01 eV) como para neutrones rápidos con energías por arriba de 2 MeV.

La energía del átomo de retroceso en una reacción  $(n,\gamma)$  es  $T = E_\gamma^2 / 2M_2C^2$ , donde  $E_\gamma$  es la energía del fotón emitido. La energía total de los fotones emitidos corresponde a la energía de ligadura del neutrón en el núcleo (aprox. 8 MeV). Los valores medios de T son del orden de 100 eV, luego pueden producir desplazamientos.

Sin embargo la contribución de la reacción  $(n,\gamma)$  a la producción de desplazamientos se puede despreciar frente a otras reacciones, ya que, por ejemplo, en un choque elástico neutrón-blanco, este último sale con energías del orden de los KeV.

La energía transferida en las colisiones neutrón-núcleo se deduce de consideraciones de conservación de impulso y energía:

$$T_p = \Lambda E_n \sin^2(\phi/2) \quad \text{con} \quad \Lambda = 4M_n M_p / (M_n + M_p)^2$$

Donde  $\phi$  es el ángulo de dispersión en el centro de masa y depende del potencial de interacción y del parámetro de impacto;  $M_n$  y  $M_p$  son las masas respectivas del neutrón y del átomo blanco. En general la dispersión es isotrópica hasta energías neutrónicas de 2 MeV y las colisiones se asemejan a las que se producen entre esferas rígidas, donde todas las energías de retroceso del átomo chocado son igualmente probables.

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

$T_p^m \sim (4/A) \cdot E_n$  donde A es la masa atómica del átomo colisionado.

Si la dispersión es isotrópica, entonces, la energía transferida promedio es

$$\bar{T} = T_p^m / 2.$$

A cada tipo de interacción corresponde una **sección eficaz microscópica** ( $\sigma$ ). Al ser esta, una función de la energía, es conveniente especificar intervalos de energía en los cuales las interacciones varían de un modo regular. Las distintas secciones eficaces se designan de la siguiente forma:

$\sigma_s$  : dispersión elástica  
 $\sigma_i$  : dispersión inelástica  
 $\sigma_a$  : absorción

Donde la total es entonces:  $\sigma_t = \sigma_s + \sigma_i + \sigma_a$

En la siguiente tabla, se muestran las secciones eficaces microscópicas para materiales de interés desde el punto de vista nuclear.

	$\sigma_s$ = sección eficaz microscópica de dispersión elástica (barn = $1.10^{-24} \text{ cm}^2$ )	$\sigma_a$ = sección eficaz microscópica de absorción = (barn = $1.10^{-24} \text{ cm}^2$ )
B	4	750
C (grafito)	4,8	0,0034
D <sub>2</sub> O (agua pesada)	7	0,0005
H <sub>2</sub> O (agua liviana)	38 - 100	0,33
Zr	8	0,185
Zry-4		0,22
Fe	11	2,56
Hf		104
Ni		4,5
Acero inox. austenítico		3,1

Tabla 2 - Secciones eficaces microscópicas para neutrones de baja energía (  $\sim 0,03015 \text{ eV}$ ) para distintos materiales.

Además teniendo en cuenta las interacciones, se puede definir:

- **Sección eficaz macroscópica** ( $\Sigma$ ): donde se interpreta como la probabilidad de que interactúe el neutrón por alguno de los procesos, por unidad de camino recorrido.

$$\Sigma = N \cdot \sigma \quad [1/\text{cm}]$$

N: es el número de átomos por unidad de volumen

- **Camino libre medio ( $\lambda$ ):** el cual corresponde a la distancia promedio que recorre el neutrón entre dos colisiones sucesivas. Se demuestra que es igual a la inversa de la sección eficaz macroscópica total:

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

Entonces el camino libre medio para producir desplazamientos se puede expresar:

$$\lambda_d = 1/ N \cdot \sigma_d \quad \sigma_d: \text{sección eficaz microscópica de desplazamiento}$$

En la tabla 3 se dan algunos valores de camino libre medio entre desplazamientos para algunos metales y para energías neutrónicas típicas.

	$E_n$ [MeV]	$\sigma_d$ [barn]	$N$ [ $\times 10^{23} \text{ cm}^{-3}$ ]	$\lambda_d$ [cm]
Zn	1	3,4	0,64	4,6
	0,2	5,7		2,7
Cu	1	3,2	0,83	3,75
	0,2	5,5		2,2
Zr	1	2,46	0,43	9,4

Tabla 3 – Caminos libres medios para algunos metales.

### 3.2 Fenomenología de la cascada de colisiones

La formación del primer átomo chocado y desplazado (PKA, primary knock-on atom) es equivalente a la formación de un par intersticial-vacancia, llamado **par de Frenkel**, y constituye la estructura básica del daño. Si la energía cinética del PKA es del orden de las decenas de eV o más, puede seguir moviéndose por el cristal produciendo colisiones con otros átomos para formar átomos desplazados secundarios, terciarios, etc. Ver figura 9.

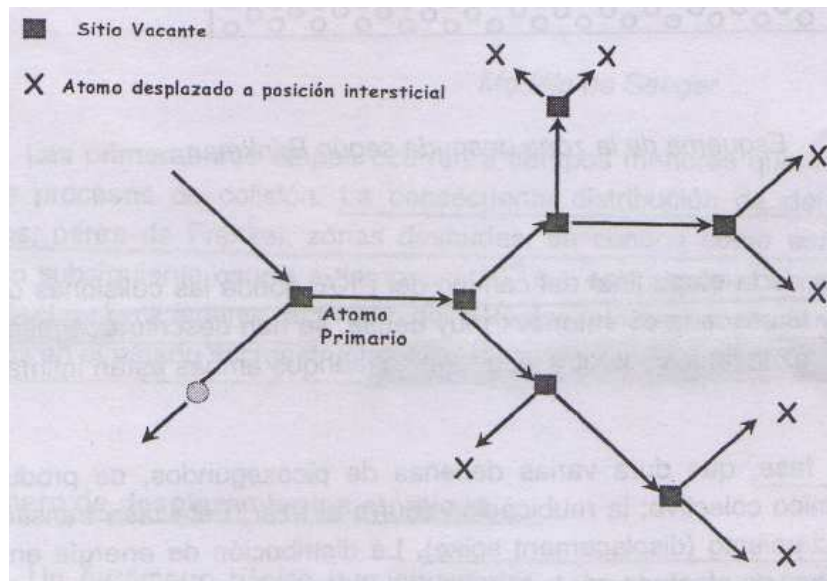


Figura 9 - Comienzo de la cascada de colisiones.

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

En la primera parte de la cascada de colisiones, cuando la energía del PKA es todavía alta, las colisiones individuales están relativamente lejos unas de las otras y el movimiento se puede expresar a través de colisiones binarias individuales. A medida que la energía de los átomos decrece la distancia entre colisiones también baja hasta que se hace comparable a las distancias interatómicas.

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

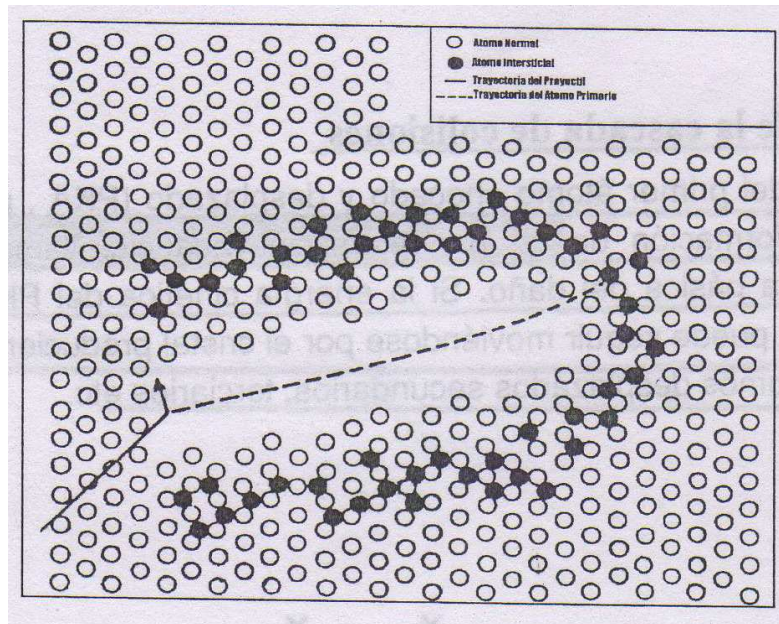


Figura 10 - Esquema de la zona desnuda según Brinkman

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

4. En la primera fase, que dura varias decenas de picosegundos, se produce un movimiento atómico dinámico colectivo; la reubicación ocurre al azar. Esta fase transitoria se denomina pico desplazamiento (displacement spike).
5. Cuando la energía entre átomos durante las colisiones decrece debajo de la energía umbral para producir un desplazamiento,  $T_d$ , se disipa como un incremento de las vibraciones atómicas. El correspondiente pulso de calor se denomina pico térmico. La temperatura correspondiente al cambio local en la intensidad de las vibraciones atómicas de los átomos de la red puede alcanzar el punto de fusión después de cierto período de tiempo. Es gradualmente dispersada a través de colisiones con los electrones.

El posterior desarrollo en la cascada suele llamarse *fase de relajación* y sigue después que el pico de desplazamiento llega al equilibrio térmico y a la formación de una cuasi-distribución de defectos en la región dañada. En la fase final ocurre el colapso de la cascada, resultado de un cierto número de mecanismos, entre ellos el termotransporte (movimiento de vacancias contra el gradiente térmico de la periferia al centro de la cascada) y el movimiento de intersticiales a lo largo de los gradientes de temperatura y concentración. Entonces el desarrollo completo de la cascada de colisiones se puede separar esquemáticamente en varias etapas, lo que se resume en la figura 11.

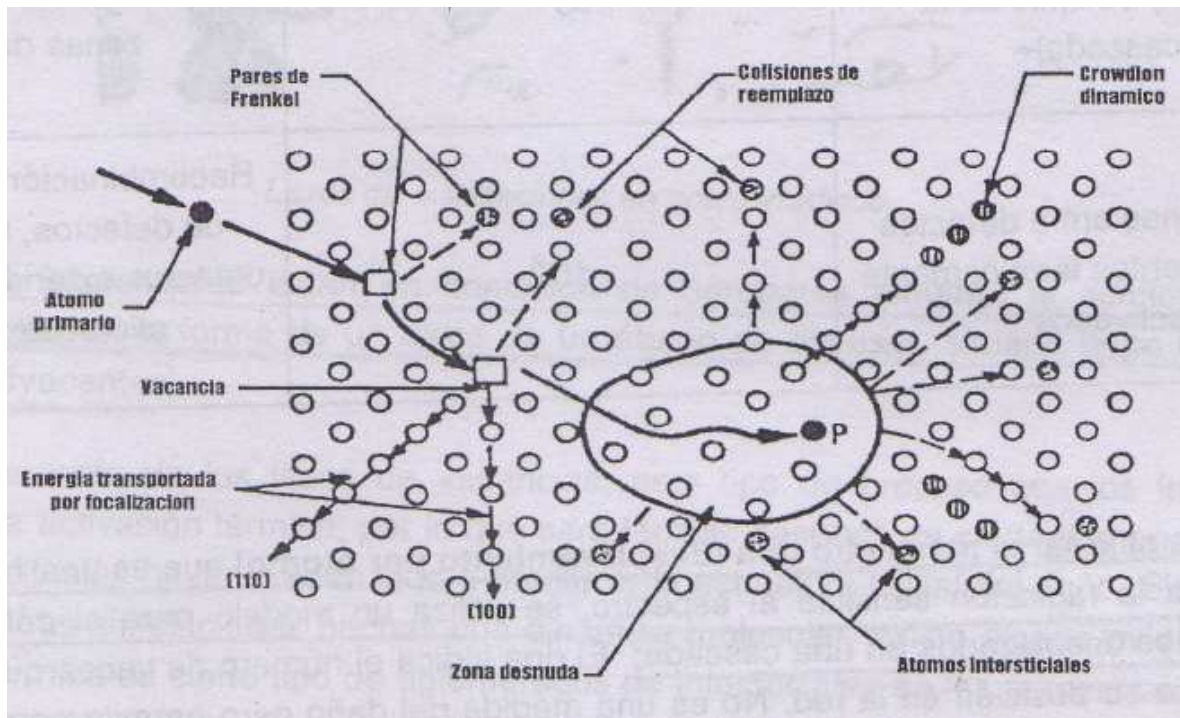


Figura 11 – Modelo Seeger

Las primeras tres etapas ocurren a tiempos menores que  $10^{-11}$  s y están determinadas por los procesos de colisión. La consecuente distribución de defectos formados: defectos aislados, pares de Frenkel, zonas desnudas, se conoce como estado de daño primario. El proceso subsiguiente ocurre a tiempos  $> 10^{-8}$  s y está controlado por procesos de difusión; el movimiento térmicamente activado de defectos puntuales elementales da como resultado cambios en el estado microestructural del material irradiado, ver tabla 4.

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

Tabla 4 – Etapas y evolución de la cascada de desplazamiento y su resultado macroscópico.

### 3.3 Tipos de defectos producidos en el material y su distribución espacial

A continuación, se enumeran los defectos generados en un material debido a la irradiación neutrónica.

- Defectos puntuales
- Átomos de impurezas (productos de transmutación)
- Pequeños aglomerados de vacancias (zonas desnudas)
- Líneas de dislocaciones
- Lazos de dislocaciones
- Cavidades (voids y burbujas de He)
- Aglomerados de solutos

En la siguiente imagen, se puede observar el alineamiento de los lazos de dislocaciones.

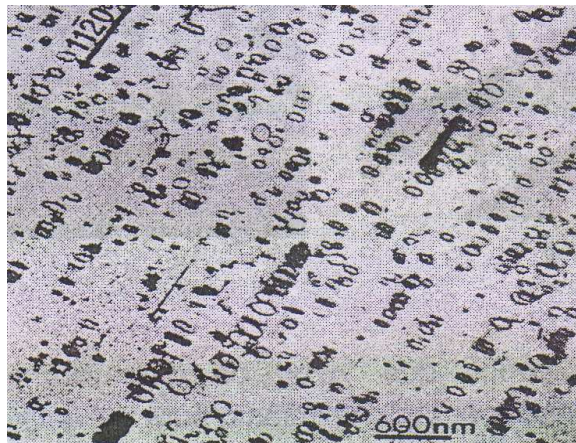


Figura 12 - Alineamiento de lazos de dislocaciones en Zr puro irradiado a 668K a una fluencia de  $6,4 \cdot 10^{19} \text{ n.cm}^{-2}$

Para un amplio rango de energías existe la posibilidad de producir colisiones colectivas, además de pares de Frenkel aislados.

Siguiendo el modelo de Seeger, en cada colisión colectiva se generan aglomerados de vacancias, éstos son comprimidos hasta formar discos que son transformados luego en **lazos de dislocaciones**, ver figura 13.

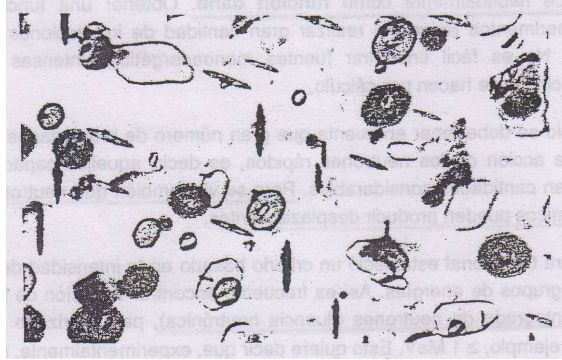


Figura 13 - Lazos de dislocaciones en acero irradiado

Procesos posteriores de difusión permiten el crecimiento de los lazos por llegada de vacancias e intersticiales que los toman como sumideros preferenciales, estos últimos son mecanismos térmicamente activados que influirán decisivamente en la modificación de alguna de las propiedades de los materiales irradiados.

### 3.4 Degradación de las propiedades mecánicas

#### 3.4.1 Endurecimiento y fragilización por irradiación neutrónica

El mecanismo primario de fragilización es el endurecimiento producido por defectos nanométricos en la estructura, que se desarrollan en la mayor parte del material debido a la irradiación. Está aceptado que hay dos clases de cambios nanoestructurales que son los principales contribuyentes a la fragilización de los aceros de los RPV:

1. aglomerados de átomos de soluto tales como Cu que generalmente se los cataloga como *precipitados*.
2. el llamado *daño en la matriz* que son aglomerados de defectos puntuales (vacancias y autointersticiales (SIAs), que en aleaciones de Fe forman desde pequeños aglomerados a huecos y lazos de dislocaciones).

Por lo tanto, el corrimiento de la temperatura dúctil-frágil se puede poner como función de dos componentes:

$$\Delta T = \Delta T_{\text{smf}} + \Delta T_{\text{crp}}$$

$\Delta T_{\text{smf}}$ : el correspondiente debido al *daño en la matriz*.

$\Delta T_{\text{crp}}$ : el correspondiente debido a los *precipitados ricos en Cu* (CRPs).

Además existen procesos microquímicos tales como la *segregación de P* a borde de grano que puede promover la fractura intergranular y por lo tanto causar fragilización sin endurecimiento. A continuación se hará un detalle de las características más relevantes de dicho proceso:

- La segregación de fósforo a los bordes de grano promueve un cambio en el modo de fractura frágil de transgranular a intergranular, y una degradación de las propiedades mecánicas.
- La radiación puede mejorar la segregación de P en función de la historia de la fabricación de RPV, composición química y condiciones de irradiación.
- El P también desempeña un papel en el endurecimiento, debido a los precipitados de P y también se encuentra segregado en dislocaciones.
- La segregación de P de impurezas en los bordes de grano afecta a la tensión de fractura por las interacciones P- Carbón.

Los aglomerados en forma de lazos intervienen formando obstáculos al movimiento de las dislocaciones, endureciendo al material y disminuyendo su ductilidad. Cuanto más baja es la temperatura de irradiación la agitación térmica colabora menos con el trepado de dislocaciones, provocando un endurecimiento mayor.

En el ejemplo siguiente se ve el comportamiento de un acero bajo irradiación neutrónica, cuya estructura cristalina es cúbica, ver figura 14.

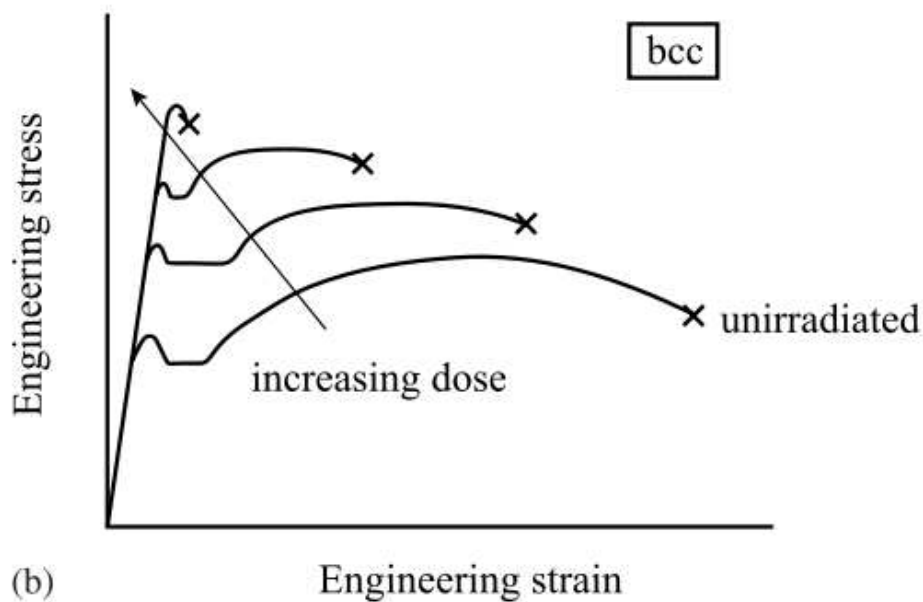


Figura 14 – Comportamiento de aceros bajo irradiación neutrónica.

Del gráfico se observa que el efecto macroscópico que la radiación neutrónica produce, es aumentar su tensión de fluencia ( $\sigma_{ys}$ ) y la resistencia a la tracción (el punto máximo de la curva) con una disminución en la deformación, lo cual es a expensas de bajar su ductilidad y tenacidad.

Desde el punto de vista de la seguridad nuclear, este incremento en la tensión de fluencia y resistencia a la tracción parecerían ser favorables a primera vista, ya que

generaría en el material una ampliación de la zona elástica y soportaría mayores cargas pero al bajar su tenacidad se está reduciendo la resistencia a la propagación de una fisura de forma frágil (el material se fractura de forma rápida). Lo que se busca, es que la fisura se desarrolle de forma dúctil para que suministre tiempo para ser detectada, por ejemplo: por la fisura hay liberación de tritio, el cual es detectado y se pueden tomar las acciones correspondientes para que no evolucione en un accidente severo.

En un principio de la irradiación las cascadas de colisiones ocurren en puntos del material bien aislados de modo que no hay interacción entre ellas, es lo que se llama estado de barreras dispersas. A medida que la irradiación prosigue, las cascadas pueden llegar a superponerse y defectos formados en unas interfieren en otras provocando un cambio en los mecanismos de endurecimiento. En las primeras etapas la tensión de fluencia se incrementa linealmente con la raíz cuadrada de la fluencia:

$$\sigma \propto (\Phi \cdot t)^{1/2}$$

Posteriormente hay un apartamiento de esta ley producido por la superposición de cascadas.

Según los materiales la fragilización tienen dos componentes: la fragilización de bajas temperaturas y la difusión acelerada de especies fragilizantes, por ejemplo la difusión del Cu en los aceros ferríticos de los recipientes de presión.

La fragilización por inhomogeneidad aparece a dosis que son alcanzadas por los componentes de un reactor durante su vida útil. Puede aparecer tan pronto como a una fluencia de  $\sim 10^{17}$  n/cm<sup>2</sup>.

Sin embargo la temperatura de trabajo de los componentes en los reactores está dentro o es superior a la de la etapa de recuperación del daño. Por ejemplo en el Fe no se observa inhomogeneidad en la deformación por encima de 250°C.

Los recipientes de presión (RPV) de los reactores operan a temperaturas relativamente bajas (150°C – 300°C) y reciben flujos neutrónicos bajos (típicamente  $10^9$  –  $10^{11}$  n/cm<sup>2</sup>.s). Pero se debe asegurar la integridad del RPV a lo largo de 30 o 40 años de servicio. Existe la probabilidad de una fractura inestable. La menor temperatura y el menor flujo neutrónico permiten el uso de aceros más baratos. Tanto en los reactores rápidos como en los térmicos se usan aleaciones de acero ferrítico y se plaquea con una capa de acero inoxidable, que va soldada al acero del cuerpo del RPV. Así no se necesita la resistencia a la corrosión de los inoxidables y es mucho más barato. Es necesario conocer la magnitud del endurecimiento por radiación y el grado de fragilización de esos aceros.

En la figura 15 está representado el comportamiento de un típico acero de recipiente de presión de centrales nucleares. El comportamiento de estos materiales en cuanto a su endurecimiento y fragilización por irradiación es de enorme importancia tecnológica.

Uno de los ensayos mecánicos más usados es el impacto de probetas con entalla en V de las cápsulas de vigilancia de los RPV, de donde se obtiene la temperatura de transición dúctil-frágil y la energía máxima absorbida por el material. La irradiación puede correr la temperatura de transición dúctil-frágil (DBTT) en más de 100°C, lo que coloca a los aceros de recipiente de presión en una situación comprometida,

fundamentalmente en los casos de parada brusca con enfriamiento, en caso de algún incidente de criticidad o en la simple operación de parada del reactor [1] y [2].

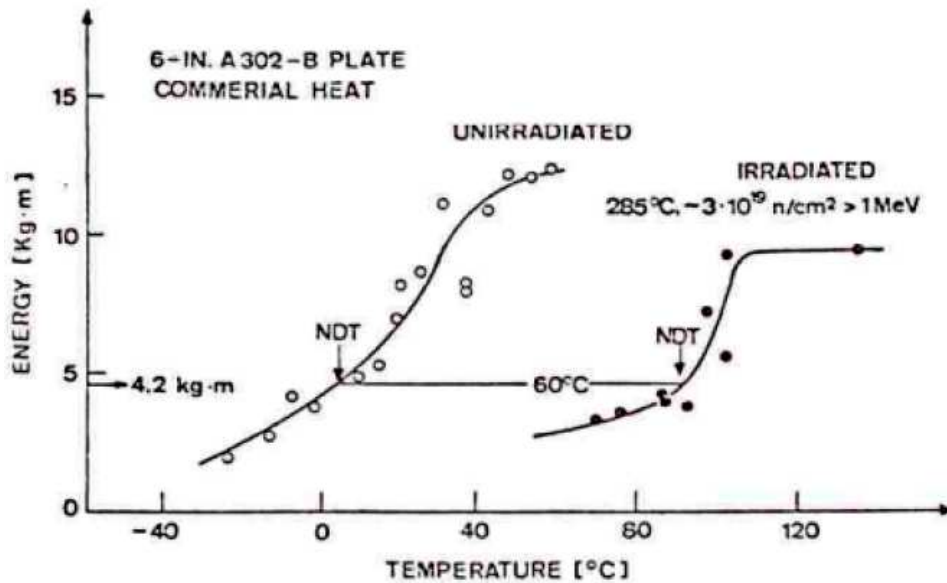


Figura 15 – Ensayo de Charpy en aceros ferríticos.

### 3.5 Influencia de las distintas variables dominantes sobre el daño neutrónico

En base a lo estudiado, se pueden identificar cuáles son las variables que determinan el daño por radiación neutrónica. Este daño microscópico generado en el material se ve como un cambio macroscópico en las propiedades mecánicas del mismo, como un aumento de la tensión de fluencia y resistencia a la rotura pero a expensas de la disminución de su ductilidad y tenacidad, como anteriormente se ha explicado.

VARIABLES QUE LO AFECTAN:

- **Energía de los neutrones:** Efecto de los neutrones rápidos  
Efecto de los neutrones térmicos
- **Espectro neutrónico**
- **Composición química:** concentración de Cu - Precipitados Ricos en Cu (CRP)
- **Flujo neutrónico (Tasa de Dosis) – Fluencia (Dosis)**
- **Temperatura**

## Energía de los neutrones

### **Efecto de los neutrones rápidos:**

Los neutrones rápidos, al poseer una elevada energía, generan muchos átomos desplazados de su posición de la red cristalina (PKA), con suficiente energía para seguir desplazando otros átomos, produciendo numerosas cascadas de colisiones. Debido a esto, los defectos generados en la red cristalina, no son definitivos, ya que estos poseen suficiente energía para seguir moviéndose, generando más desplazamientos como también poder acomodarse nuevamente en posiciones de la red. Un ejemplo, una fuente de neutrones de 14 MeV, genera una gran cantidad de átomos desplazados pero el número de defectos encontrados al final de la cascada es 3 veces menor [3].

### **Efecto de los neutrones térmicos:**

Los neutrones térmicos generan átomos desplazados (PKA) de baja energía y estos conducen a cascadas de colisiones también de poca energía. Por lo tanto, el daño que producen es más definitivo, ya que le transfiere poca energía al átomo de la red, si es suficiente para sacarlo de la misma pero no alcanza para seguir moviéndose y poder acomodarse nuevamente en la red.

Para realizar predicciones del daño, es necesario conocer el número de defectos que pueden migrar libremente (FMDs), que son aquellos que logran escapar a la recombinación durante la cascada de colisiones. Este número es fuertemente dependiente de la naturaleza de la cascada. Entonces se puede definir la eficiencia de producción de FMD ( $\eta$ ) como:

$$\eta = \text{FMD} / \text{NRT}$$

NRT: es el número predicho por la fórmula NRT (The Norgett-Robinson-Torrens (1975)) de daño en términos de dpa.

$$\eta = \begin{cases} 1 & : \text{energía de PKA bajas} \\ \sim 0,3 & : \text{energía de PKA} > 20 \text{ KeV} \end{cases}$$

Simulaciones recientes de molecular dynamics (MD) muestran que la dependencia con la energía de la fracción  $\eta$  de defectos que sobreviven, puede ser aproximada para energías menores que 30 KeV por:

$$\eta = 0,5608 \cdot T_{\text{dam}}^{-0,3029} + 3,227 \cdot 10^{-3} \cdot T_{\text{dam}}$$

$T_{\text{dam}}$  = es la energía disponible para producir átomos de retroceso.

$$T_{\text{dam}} = T / (1 + k \cdot g(\epsilon))$$

Donde los átomos de retroceso y los de la red son iguales.

$$k = (0,0793 \cdot 2^{3/4} \cdot Z^{2/3}) / A^{1/2}$$

$$g(\epsilon) = \epsilon + 0,40244 \cdot \epsilon^{3/4} + 3,4008 \cdot \epsilon^{1/6}$$

$$\epsilon = T_{(\text{KeV})} / 0,0869 \cdot Z^{7/3}$$

$T$  = es la energía del átomo de retroceso.

La fracción de defectos que sobreviven es una función decreciente del átomo de retroceso.

En los reactores de fisión, la mayoría de los retrocesos tienen energías  $T < 100$  KeV y  $T_{\text{dam}}$  puede ser aproximada por una función lineal.

Los datos en conjunto de MD y kinetic Monte Carlo (K-MC) proporcionan un valor preciso de  $\eta$  para los modelos de materiales.

Un ejemplo: estudios recientes de Fe- $\alpha$  muestran que la relación de escape (la contribución a la  $\eta$  calculada por la etapa K-MC), es mayor que el 80% para átomos desplazados de energía  $< 1$  KeV y disminuye al 65% para energías  $\sim 20$  KeV.

Mientras las regulaciones nucleares todavía se basan en el uso de la fluencia rápida ( $\Phi \cdot t_{(E > 1 \text{ MeV})}$ ) o dpa como parámetro de exposición neutrónica, el conocimiento empírico ha demostrado ser insatisfactorio en los casos de extremas desviaciones en el espectro neutrónico [3].

### **Espectro neutrónico**

Cuando se desea realizar una comparación entre irradiaciones es importante tener presente bajo que espectro neutrónico han sido sometidas. Ya que es distinto el efecto que produce un neutrón rápido que uno térmico, como se explicó anteriormente y por lo tanto es fundamental saber la distribución que hay de cada tipo de ellos. Ver figura 16.

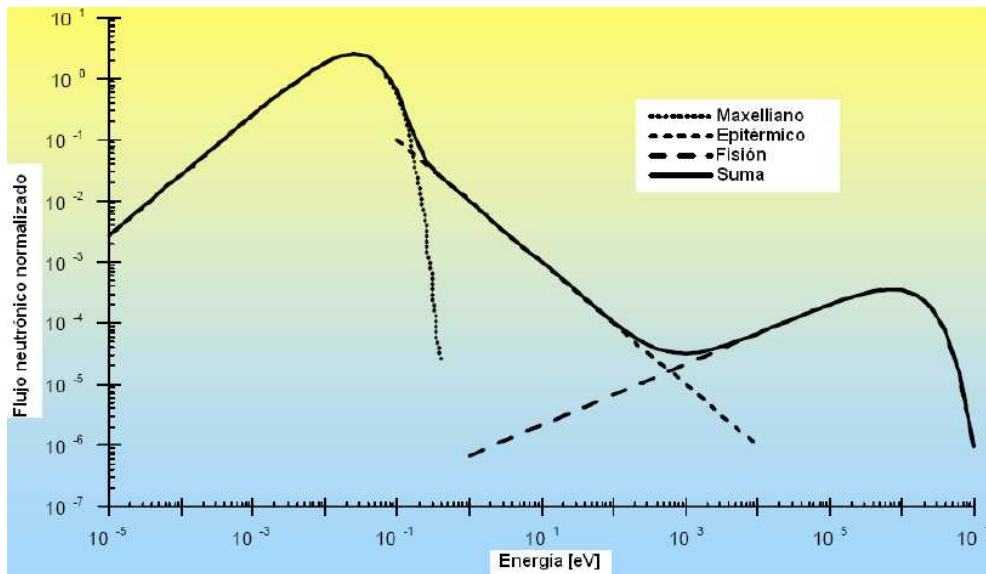


Figura 16 – Esquema del espectro neutrónico característico de un reactor térmico, considerando una división genérica en tres grupos de energía.

**Composición química:** concentración de Cu (CRP) y Ni.

Los aglomerados ricos en Cu o precipitados, son formados por complejos de vacancias-Cu o por la nucleación normal a causa de la alta sobresaturación del Cu en solución. La contribución de los CRP al  $\Delta T$  depende de la cantidad de Cu y Ni del acero y de su fuerte interacción Cu-Ni. El efecto de la presencia de Ni en el fragilización por CRP crece con el aumento de Cu. El daño por CRP se satura a fluencias altas, alcanzando un valor meseta, como se puede observar en la figura 17 [4] y [5].

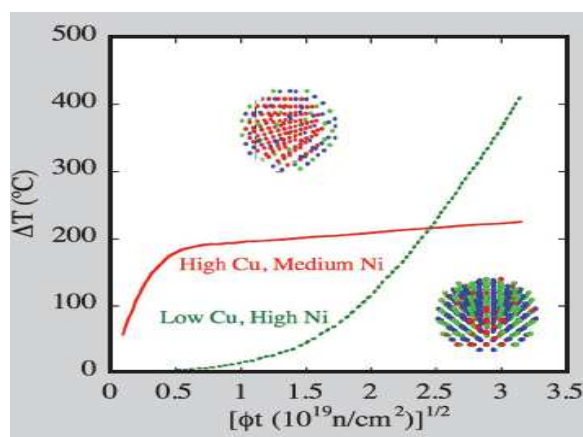


Figura 17 - Efecto de saturación de los CRPs.

Según la bibliografía investigada la concentración de Cu para que los CRP se hagan presentes es de aprox.  $\geq 0,05$  % en peso [5], [6], [7], [8], [9] y [10].

### **Flujo neutrónico (Tasa de Dosis) – Fluencia (Dosis)**

De acuerdo con el estado actual del conocimiento, el efecto de la tasa de dosis dependerá del tipo de la misma, donde se define el flujo rápido como  $\text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  ( $E > 1 \text{ MeV}$ ).

Tres regiones pueden ser identificadas:

1. nivel bajo de flujo rápido
2. nivel intermedio de flujo rápido
3. nivel alto de flujo rápido

**1) Nivel bajo de flujo rápido:** El incremento del daño por CRPs con la dosis (o fluencia) es conocido por ser dependiente del tiempo de irradiación de bajo flujo rápido. La dosis para lograr la contribución de pico de precipitados de Cu es una función de la tasa de dosis.

**2) Nivel intermedio de flujo rápido:** El efecto del flujo se espera que sea pequeño en el régimen entre  $10^{10} - 10^{11} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ . A estos niveles de flujo la dosis para lograr el pico de endurecimiento se vuelve independiente del flujo neutrónico. Esta es la región de funcionamiento de la mayoría de los PWR. Es importante tener en cuenta que el flujo en la línea de cintura (beltline) del RPV del CNA-I es similar a la de PWR  $\sim 10^{10} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ .

**3) Nivel alto de flujo rápido:** Los experimentos muestran que a niveles de flujo mayores que  $\sim 10^{12} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ , el endurecimiento y la fragilización pueden aumentar o disminuir con el flujo, en función de la combinación de Cu y Ni, temperatura de irradiación y otras variables. Este efecto es mediado por defectos térmicamente inestables de la matriz, que actúan tanto como sumideros de defectos puntuales, retardando la evolución de CRPs y como débiles características de endurecimiento. A altas tasas de dosis, el tiempo (fluencia) necesario para conseguir un pico de endurecimiento por CRPs aumenta. La región de alto flujo ( $\Phi > 10^{12} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ) corresponde a datos de reactores de investigación. Muestras de aceros irradiados en estos reactores, por lo general, muestran menos fragilización que aquellos realizados en valores de flujo menores. Por lo tanto las irradiaciones aceleradas a flujo  $> 5 \cdot 10^{12} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  podrían generar resultados de fragilización que no son conservativos, en decir inferiores a los de la pared del RPV [4].

### **Temperatura:**

Cuanto más baja es la temperatura de irradiación la agitación térmica colabora menos con el trepado de las dislocaciones, provocando un endurecimiento mayor [2]. Entonces es importante que la temperatura de irradiación de los especímenes de vigilancia sea la misma que la temperatura de operación del recipiente de presión.

### 3.6 Indexación del daño neutrónico - dpa

La sigla dpa significa desplazamiento por átomo y se ha desarrollado para permitir la comparación del daño entre dos reactores distintos, sin importar que sus espectros neutrónicos seas diferentes.

A continuación, se desarrolla un modelo para determinar el número de átomos desplazados por un PKA de energía T. Para cuantificar el daño por radiación, se requiere dar solución a la ecuación de velocidad del daño:

$$R_d = N \int_{\tilde{E}}^{\hat{E}} \phi(E_i) \sigma_D(E_i) dE_i$$

donde N es la densidad de átomos de la red,  $\phi(E_i)$  es el flujo de partículas en función de la energía y  $\sigma_D(E_i)$  es la sección eficaz de desplazamiento en función de la energía. Dicha sección eficaz es una probabilidad para el desplazamiento de átomos de la red por las partículas incidentes:

$$\sigma_D(E_i) = \int_{\tilde{T}}^{\hat{T}} \sigma(E_i, T) v(T) dT$$

donde  $\sigma(E_i, t)$  es la probabilidad de que una partícula de energía  $E_i$  impartirá una energía de retroceso T a un átomo de la red golpeado, y  $v(T)$  es el número de átomos desplazados resultantes de tal colisión [1].

## 4. Análisis de la existencia de Late Blooming Phase en el acero del RPV de la Central Nuclear Atucha-I

### 4.1 Mecanismo de endurecimiento y fragilización inducido por late blooming phase

En base a lo investigado de las actuales publicaciones internacionales sobre el tema de fragilización inducida por radiación neutrónica en los aceros de RPV, se encontró que para fluencias más allá del fin de vida de un reactor nuclear, ciertos elementos químicos como el Mn y el Ni proporcionan una fragilización adicional a la de los conocidos Precipitados Ricos en Cu (CRPs). Se los ha denominado Precipitados Tardíos (Late Blooming Phase – LBP) debido a que su rol se vuelve preponderante a altas fluencias, cuando el efecto del Cu se ha saturado.

Conocer el comportamiento de estas fases es de suma importancia al momento de tomar la decisión de llevar a cabo la extensión de vida de una central nuclear, debido

a que debe garantizarse la integridad del RPV durante el período de operación adicional a la vida útil por diseño original. Durante esta etapa las propiedades del material deben ser las adecuadas para poder soportar las condiciones de carga debidas a los arranques y paradas, variaciones de potencia, paradas bruscas y condiciones de posibles accidentes como el Choque Térmico Presurizado (PTS).

En el presente trabajo se analiza si estos Precipitados Tardíos, pueden limitar la vida útil del acero del RPV de la Central Nuclear Atucha I (CNA-I). Se encontró que las variables que afectan a la formación de estos precipitados son la composición química y la fluencia. Según las publicaciones consultadas, se puede definir el rango de las mismas.

- **Composición química:** concentración de Ni y Mn.

En la siguiente tabla se muestran los valores umbrales para cada elemento.

Elemento	Valor umbral en % en peso
Mn	0,8 <sup>(a)</sup> – 1,6 <sup>(b)</sup>
Ni	0,65 <sup>(c)</sup> – 1,6 <sup>(d)</sup>

Tabla 5 – Valores umbrales del Mn y Ni para que se presente el fenómeno de LBP. (a): corresponde a la referencia [5]; (b): corresponde a la referencia [11]; (c): corresponde a la referencia [6]; (d): corresponde a las referencias [5] y [11].

Los modelos termodinámicos predicen la formación de fases Mn-Ni aún en ausencia de Cu pero la tasa de nucleación es tan baja comparada con la de los CRPs, que resulta necesario fluencias altas para lograr la incubación [5].

Los modelos también muestran que pequeñas concentraciones de cobre pueden actuar como un catalizador para las LBP [5].

- **Fluencia:** Se encontró que en los ensayos realizados, para comprender el mecanismo de formación de las LBP, el rango estudiado de fluencia fue entre  $1 \cdot 10^{19(e)}$  –  $10 \cdot 10^{19(f)}$  n/cm<sup>2</sup>.  
(e): corresponde a la referencia [6]; (f): corresponde a las referencias [6] y [12].

En la búsqueda de publicaciones para poder comprender la formación y evolución de estas LBP, se encontraron dos de suma importancia para nuestro trabajo.

La [13] trata sobre unos ensayos de irradiación a diferentes aleaciones, para poder dilucidar la influencia de los distintos elementos químicos. Los mismos fueron realizados en el reactor de investigación BR-2 del SCK·CEN de Bélgica. Esta publicación posee una importancia especial debido a que este mismo instituto en marzo de 2006 realizó un análisis del material del RPV de CNA-I [4] considerando los resultados de distintos programas de irradiación en otros reactores, como también las irradiaciones realizadas en el BR-2 hasta distintas fluencias. Entonces ya que ambos

ensayos de irradiación fueron realizadas en el mismo reactor, podemos utilizar las correlaciones de dureza obtenidas por el SCK·CEN para el material del RPV del CNA-I y ubicar los puntos en el gráfico de dureza que se presenta en la [13], ver figura 15, para determinar su comportamiento esperable. Más adelante se tratará en detalle este tema.

A continuación se hará un resumen de los temas principales de la misma.

La temperatura y la presión se mantuvieron constantes durante toda la irradiación entre 290°C y 295°C a 150 bar. Se irradió hasta una fluencia de  $\sim 7 \times 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup> (0,1 dpa) a un flujo de  $8,6 \pm 0,5 \times 10^{13}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> (E > 1 MeV).

El objetivo fue revelar el efecto de cada elemento químico sobre el desarrollo de la matriz de daño y su influencia sobre el endurecimiento. Para lo cual, se obtuvo un gráfico de dureza en función de la fluencia para las distintas aleaciones, como se puede observar en la figura 18.

En la tabla siguiente se muestra la composición química de las diferentes aleaciones estudiadas:

Material	Composition in wt%							
	N	C	Cu	Mn	Ni	P	Si	S
Pure Fe	<0.001	<0.005	<0.005	0.010	<0.005	<0.005	<0.005	<0.005
Fe-C	0.0021	<0.005	0.015	0.015	<0.005	0.007	0.006	<0.005
Fe+0.1% Cu	-	<0.005	0.11	0.007	<0.005	<0.005	<0.005	<0.005
Fe+0.3% Cu	-	<0.005	0.315	0.010	<0.005	<0.005	0.012	<0.005
Fe-Mn-Ni	<0.001	<0.005	<0.005	1.09	0.75	0.005	<0.005	<0.005
Fe-Cu-Mn-Ni	<0.001	<0.005	0.105	1.08	0.72	<0.005	<0.005	<0.005
RPV steel	0.07	0.14	0.064	1.30	0.75	0.007	0.195	0.006

Tabla 6 – Composición química de las distintas aleaciones estudiadas en [13].

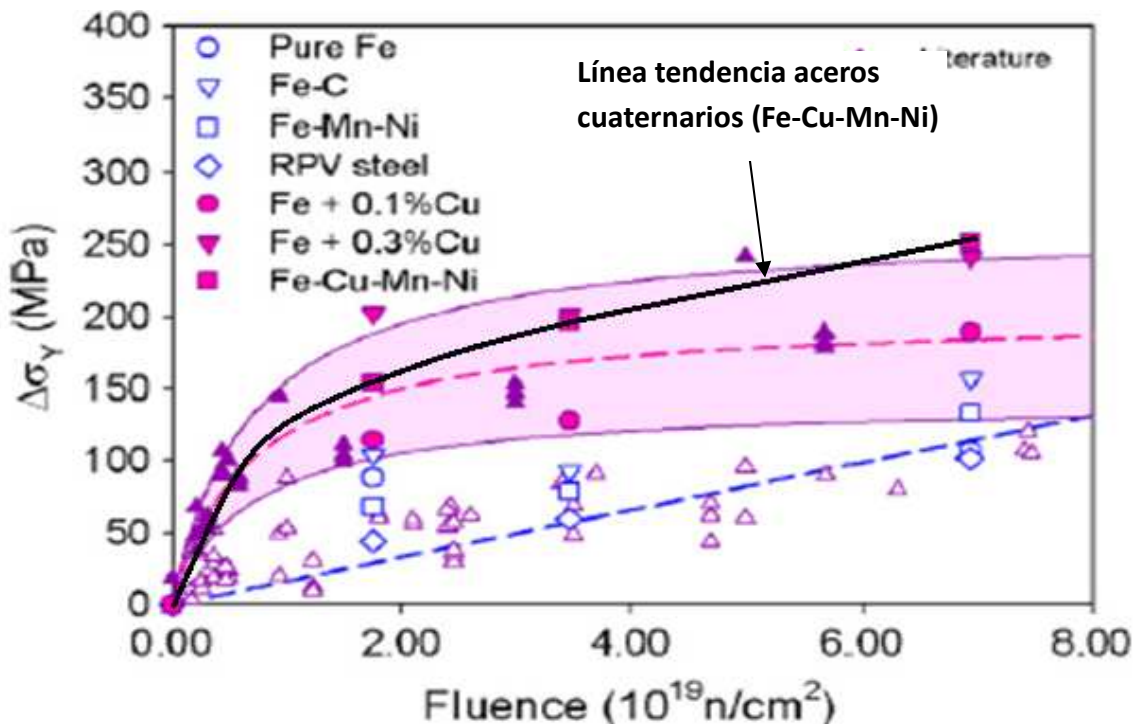


Figura 18 – Dureza en función de la fluencia para las distintas aleaciones.

Puede verse que el endurecimiento inducido por irradiación depende en gran medida de la composición química. La tendencia de los aceros de alto contenido en Cu (símbolos llenos) es que se saturan después de una cierta dosis, la cual es diferente de la tendencia de los aceros de bajo Cu (símbolos vacíos). Estos últimos presentan una dependencia lineal con la dosis de irradiación.

Las aleaciones con alto Cu muestran un claro endurecimiento que incrementa con la concentración de Cu. Este gran aumento del endurecimiento después de la irradiación se debe a la formación de precipitados de Cu. Se ve, que a la fluencia más alta alcanzada por el ensayo, la formación de precipitados ricos en Cu se completó y el endurecimiento se satura.

El gráfico muestra que cuando se agrega Mn y Ni a la aleación, el comportamiento es bastante diferente.

Para las aleaciones que tienen Cu más Mn y Ni el endurecimiento incrementa drásticamente, sin embargo este no se satura como en el caso de los aceros con solamente alto Cu. Se aprecia que después de un endurecimiento inicial causado por los precipitados ricos en Cu, el endurecimiento inducido por irradiación sigue una tendencia paralela de los aceros de bajo Cu. Por lo que se cree que el mecanismo de endurecimiento asociado con la presencia de Cu es independiente del mecanismo correspondiente al Mn y Ni.

Se sabe que a muy bajas dosis, algunos precipitados ricos en Cu se han formado. Estos obstaculizan el movimiento de dislocaciones, causando endurecimiento. Una vez que estos precipitados se forman, la contribución de los mismos al endurecimiento se satura relativamente rápido. Altas concentraciones de Cu conducen a mayor formación de estos precipitados y por consiguiente a una componente más alta de endurecimiento pero la tendencia a la saturación con la dosis se mantiene sin cambios. Se ha sugerido que los átomos de Cu son arrastrados por vacancias para formar complejos vacancia-Cu. Esto es una consecuencia de la relativa alta energía de enlace entre un átomo de Cu y una vacancia. Esto no solo proporciona un mecanismo para la migración conjunta de las dos especies, sino que también es la fuerza impulsora para la nucleación y crecimiento de los complejos Cu-vacancia.

Para las aleaciones que contienen Mn y Ni un segundo mecanismo para el endurecimiento por irradiación es propuesto, el cual es independiente del mecanismo del Cu. La información sobre este segundo mecanismo puede ser solo obtenida de forma indirecta y aquí es donde el uso de modelos hechos por computadora es de gran utilidad.

Para explicar el endurecimiento complementario, visto en las aleaciones que contienen Mn y Ni se debe recurrir a la existencia de una característica de endurecimiento adicional, la cual debe ser diferente de la forma de endurecimiento de los precipitados ricos en Cu y también que no esté relacionada con los defectos tipo vacancias, ya que las dislocaciones se moverán a través de estos defectos sin mayor problemas. El Mn está fuertemente ligado a los SIAs, por lo tanto, se puede especular que el Mn rodea a los lazos de SIAs y al disminuir su energía, reduce drásticamente la movilidad de estos lazos. El Ni también puede terminar rodeando estos pequeños y prácticamente inmóviles lazos, arrastrado por las vacancias que se aniquilan con alguno de los SIAs presentes.

Otra posibilidad podría ser que los pares vacancia-Mn y/o vacancia-Ni a pesar de su mutua repulsión entre átomos de Mn y Ni, tenga éxito el transporte de estos solutos, hasta que se aglomeran (de la misma manera como se ha visto para el complejo vacancia-Cu) formando eventualmente precipitados de Mn y Ni, suponiendo que estas fases son estables o meta estables en una estructura BCC de Fe. Utilizando la técnica de Espectroscopía de Aniquilación de Positrones (PAS) se ha demostrado que estos precipitados no contienen gran cantidad de vacancias. Debido a la baja energía de enlace intermetálica, la nucleación de estas fases ocurrirá a una tasa mucho menor que para los precipitados de Cu y por lo tanto, se harán visibles luego de dosis de irradiación más altas.

- Cualquiera sea su naturaleza y origen, se ha observado que esta segunda componente de endurecimiento, causada por la presencia de Mn, se vuelve predominante a dosis más altas.
- Este endurecimiento adicional únicamente puede ser explicado en términos del efecto del llamado Daño en la Matriz. La naturaleza de este daño, generalmente descrito por huecos y lazos de SIAs, hasta ahora es ambiguo. Se ve aquí que está fuertemente afectado por la presencia de Mn y Ni. A diferencia de las aleaciones que no contienen estos dos elementos, la contribución del daño en la matriz al endurecimiento sigue creciendo con la dosis [13].

En la [14] se analizaron los resultados obtenidos por una simulación para tres aleaciones: una binaria (Fe-Cu), otra ternaria (Fe-MnNi) y una cuaternaria (Fe-CuMnNi).

En la figura siguiente se presentan los resultados, con el fin de comprender la cinética de formación de los aglomerados.

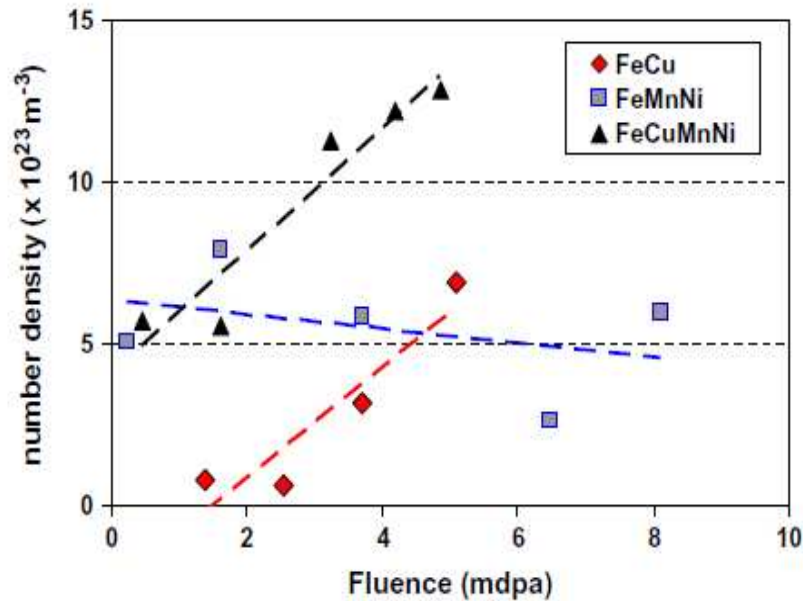


Figura 19 – Densidad de aglomerados de solutos en función de la dosis para diferentes aleaciones.

La cinética de formación de los aglomerados es significativamente diferente en presencia de Cu. Se muestra además que existen dos cinéticas distintas para la formación de los aglomerados, una para los precipitados ricos en Mn y Ni (MNPs) y otra para los precipitados ricos en Cu (CRPs). Los primeros inician su nucleación inmediatamente (a través de un mecanismo rápido impulsado por autointersticiales) pero después su densidad crece lentamente con la dosis (aleaciones ternarias). Los segundos (CRPs) requieren una cierta dosis de incubación para nuclearse (a través de un mecanismo más lento impulsado por vacancias) pero luego mantiene un constante aumento con la dosis (aleaciones binarias). En las aleaciones cuaternarias, estas dos cinéticas están superpuestas: los aglomerados aparecen tempranamente (aglomerados de Mn y Ni) y siguen creciendo firmemente (aglomerados de Cu), al menos en el rango de dosis en que fue realizada la simulación.

A partir de estos resultados, se puede proponer una explicación tentativa para el mecanismo de aparición de los LBP. Para la etapa temprana de irradiación (< 2 mdpa) los aglomerados de Mn-Ni se forman y son de hecho los primeros que se nuclean, sin embargo el crecimiento de la densidad de estos es lenta y pronto los aglomerados de Cu comienzan a formarse y así su densidad aumenta de manera constante con la dosis, ayudado por la fuerza impulsora termodinámica de la precipitación del Cu en Fe. Por lo tanto, la población de CRPs domina sobre los MNPs para bajas dosis [14].

Comparando la figura 18 (dureza vs fluencia) y figura 19 (aglomerados vs fluencia) podemos observar que los resultados conseguidos por la simulación se corresponden con los valores de dureza de los ensayos de irradiación.

Para la aleación ternaria (Fe-MnNi) se observa una baja tasa de formación de aglomerados con la fluencia y se ve que de las tres aleaciones es la que posee también una tasa de endurecimiento menor, aunque siempre creciente sin presentar saturación.

La aleación binaria (Fe-Cu) exhibe una alta tasa de formación de aglomerados y se observa una tasa de endurecimiento mayor que para la aleación ternaria (Fe-MnNi) pero presenta un efecto de saturación para valores altos de fluencia.

Finalmente para la aleación cuaternaria (Fe-CuMnNi) se ve la mayor tasa de formación de aglomerados y es la que muestra el mayor endurecimiento y tasa siempre creciente a todas las fluencias, además no presenta efecto de saturación.

## 4.2 Caso de estudio: Material del RPV de CNA-I

### 4.2.1 Descripción del RPV de CNA-I

Se hará solamente la descripción del área del núcleo de la vasija de presión debido a que sus materiales son los que sufren el mayor daño por radiación neutrónica.

El área del núcleo de la vasija consta de dos anillos cilíndricos de de acero 22NiMoCr37 con un espesor de pared de 220 mm, soldadas entre sí por una soldadura circunferencial. Cada anillo se compone de tres placas forjadas y dobladas, identificadas respectivamente BM 31 (arriba) y BM 41 (abajo), soldadas entre sí por tres soldaduras longitudinales. La superficie interna del RPV está cubierta de un revestimiento de acero inoxidable resistente a la corrosión de niobio-estabilizado 24Cr12Ni. La estructura de la vasija de presión de la CNA-I se muestra en la Figura 20.

A continuación se especifica la identificación de los materiales:

- Tres placas forjadas de la cubierta superior, designadas **31.1, 31.2 y 31.3**
- Tres placas forjadas de la cubierta inferior, denominadas **41.1, 41.2 y 41.3**
- La soldadura circunferencial se denominan: **C2**
- Las soldaduras longitudinales se denominan: **V1, V2, V3, V4, V5 y V6.**

#### Parte superior del RPV:

de V3 a V1: **31.1**

de V1 a V2: **31.2**

de V2 a V3: **31.3**

#### Parte inferior del RPV:

de V6 a V4: **41.1**

de V4 a V5: **41.2**

de V5 a V6: **41.3**

En la figura 21 están representadas las soldaduras del RPV.

Cada una de estas placas posee su composición química y propiedades mecánicas particulares, cabe destacar que las diferencias no son muy grandes. Debido a esto, se realizaron ensayos iniciales de tracción, de impacto como drop-weight y Charpy como también de resistencia a la fractura, con la finalidad de determinar cuáles eran las que mejor representaban el daño. Esto condujo a la selección del BM 31.3 y BM 41.1 para que formen parte de los materiales del programa de vigilancia del RPV.

En base a esto, se escogió al **BM 31.3 y BM 41.1** como objeto nuestro estudio.

En la siguiente tabla se detalla la composición química (% en peso) del acero del RPV de CNA-I.

Material	C	Si	Mn	S	P	Cr	Ni	Mo	Cu
BM 31.3	0,19	0,21	0,69	0,012	0,009	0,41	0,81	0,63	0,12
BM 41.1	0,22	0,26	0,75	0,010	0,016	0,40	0,82	0,65	0,14

Tabla 7 – Composición química (% en peso) del material base del RPV de CNA-I.

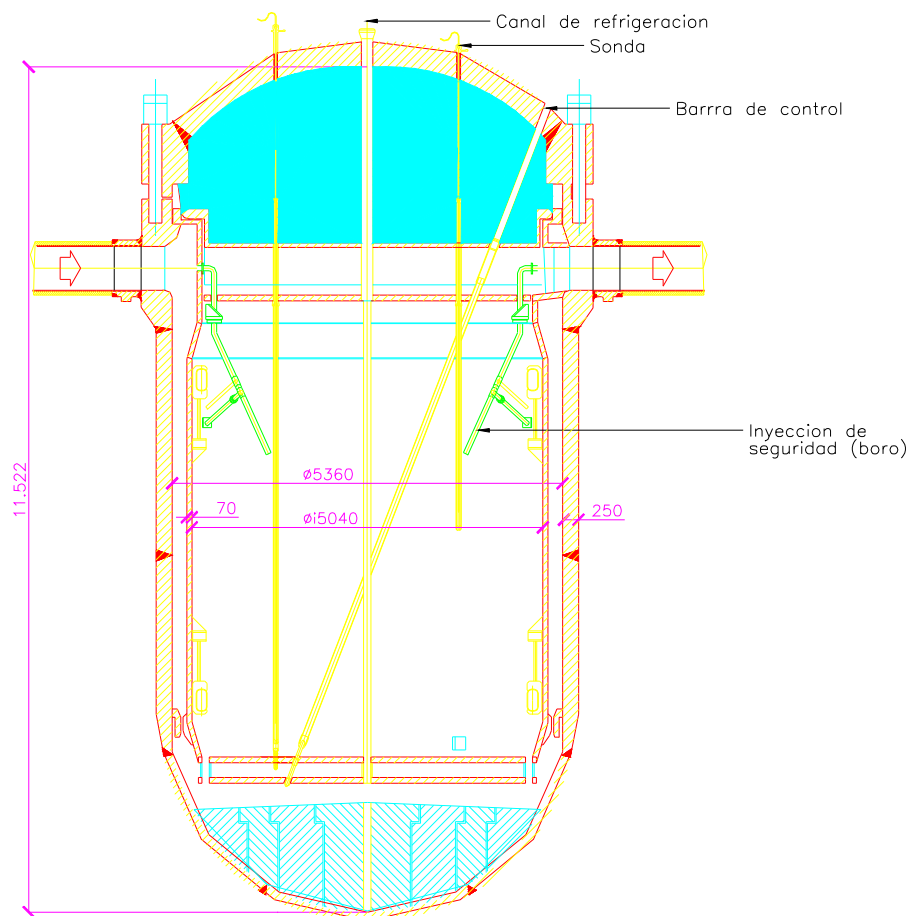


Figura 20 - Dimensiones del RPV de la CNA-I

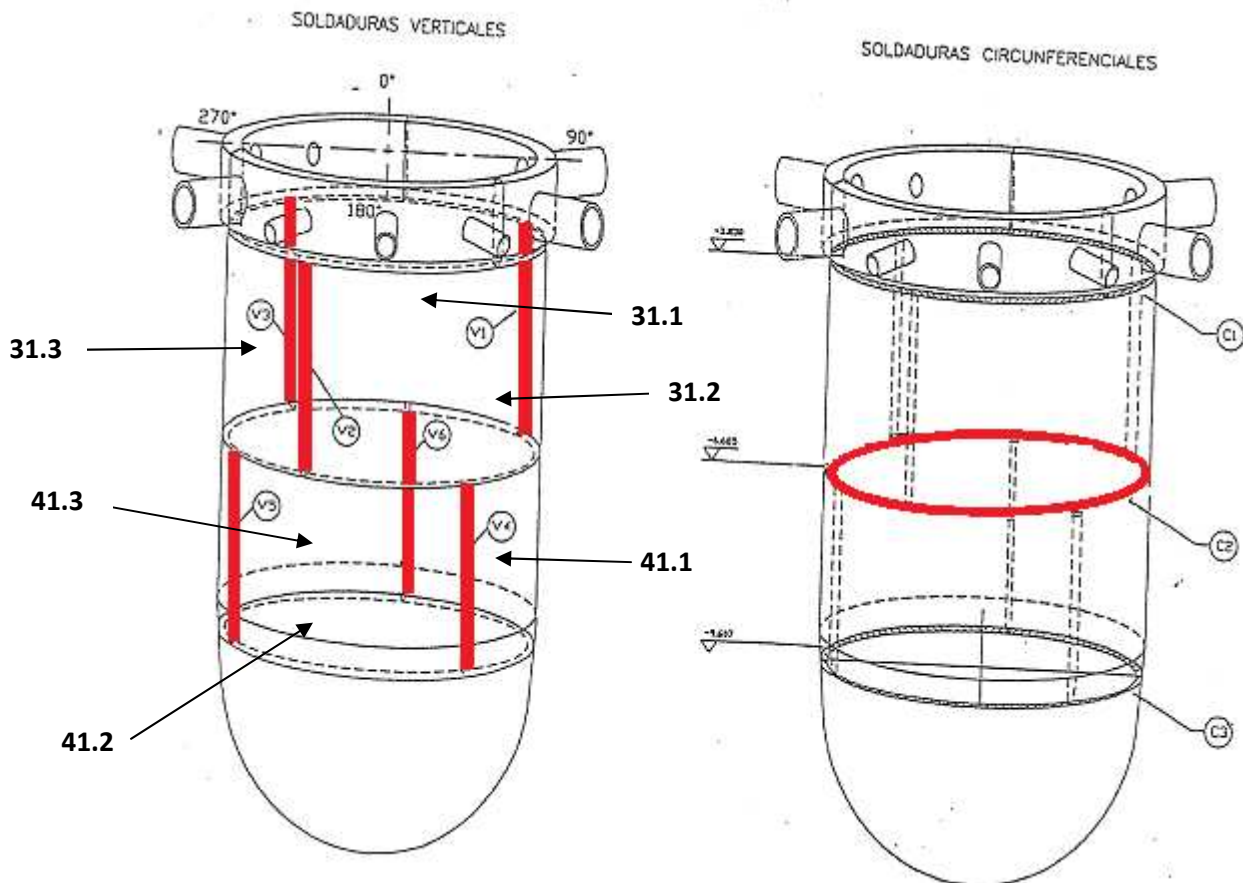


Figura 21 - Representación de las costuras de soldaduras del RPV de CNA-I.

#### 4.2.2 Análisis de la existencia de LBP

Como anteriormente se mencionó utilizaremos las correlaciones de dureza obtenidas por el SCK·CEN para CNA-I y ubicaremos los puntos de irradiación en la figura 15, para determinar su comportamiento esperable.

El endurecimiento por irradiación de las placas de 31.3 y 41.1 de CNA-I, obedeció la siguiente correlación:  $\Delta\sigma_y = 19,7 + 31,9.Ft.(mdpa)^{1/2}$  [MPa] [4], como una función de la dosis y la temperatura de irradiación. Fue determinada a partir de los valores de exposiciones de vigilancia del RPV de CNA- I y experimentos de irradiación a tasa de dosis aceleradas.

Donde  $Ft = 1,869 - 4,57 \times 10^{-3} \cdot T_{irrad}$  con  $T_{irrad}$  en °C

La tabla siguiente muestra los valores de dpa correspondientes a CNA-I para EoL (fin de vida por diseño) y para 1,5.EoL para fluencia rápida para el reactor BR-2.

Reactor	Relación Fluencia rápida/ dpa [n.cm <sup>-2</sup> / dpa]	dpa para 1,26x10 <sup>19</sup> n/cm <sup>2</sup> (EoL)	dpa para 1,89x10 <sup>19</sup> n/cm <sup>2</sup> (1,5.EoL)
BR-2	5,87x10 <sup>20</sup>	0,0215	0,0323

Tabla 8 - los valores de dpa correspondientes a CNA-I para EoL y para 1,5.EoL para fluencia rápida para el reactor BR-2.

Con la relación de fluencia rápida/ dpa de la tabla 8 y utilizando los datos de irradiación de las tablas 9 y 10 y luego aplicando:

$$\phi.t = (5,87 \times 10^{20} \text{ n.cm}^{-2} / \text{dpa}) \cdot (\text{mdpa}_{\text{eff}}) \cdot (\text{dpa} / 1000 \text{mdpa}_{\text{eff}})$$

Se pudieron obtener los puntos de dureza ( $\Delta\sigma_y$ ) para cada valor de fluencia ensayado en el reactor BR-2. En las tablas 11 y 12, están detallados dichos valores.

Tabla 9 - Datos de irradiación en BR-2 para las probetas 31.3

Probeta	T [°C]	mdpa <sub>eff</sub>
31.3	265	24
31.3	265	25
31.3	265	38
31.3	265	41

Tabla 10 - Datos de irradiación en BR-2 para las probetas 41.1

Probeta	T [°C]	mdpa <sub>eff</sub>
41.1	265	28
41.1	265	40
41.1	265	41

Como el gráfico de dureza en función de la fluencia (figura 18) está dado para una temperatura de irradiación entre 290°C-295°C y los ensayos de irradiación para el material base de CNA-I están realizados para una temperatura de 265°C (T<sub>operación</sub> RPV), entonces se debe hacer una corrección por temperatura. La misma consiste en calcular la  $\Delta\sigma_y$  a 290°C, para que sean comparables, debido a que una temperatura de irradiación más baja representa un mayor daño.

Tabla 11 - Puntos de dureza ( $\Delta\sigma_y$ ) para cada valor de fluencia ensayado en el reactor BR-2 para las probetas 31.3.

<b>Probeta</b>	<b>T [°C]</b>	<b>Ft</b>	<b>mdpa eff</b>	<b><math>\Delta\sigma_y</math></b>	<b><math>\phi.t/ \text{dpa} [\text{n.cm}^{-2}/ \text{dpa}]</math></b>	<b><math>\phi.t [\text{n.cm}^{-2}]</math></b>
<b>31.1</b>	290	0,5437	24	<b>104,668</b>	5,87E+20	<b>1,409E+19</b>
<b>31.1</b>	290	0,5437	25	<b>106,420</b>	5,87E+20	<b>1,468E+19</b>
<b>31.1</b>	290	0,5437	38	<b>126,616</b>	5,87E+20	<b>2,231E+19</b>
<b>31.1</b>	290	0,5437	41	<b>130,756</b>	5,87E+20	<b>2,407E+19</b>

Tabla 12 - Puntos de dureza ( $\Delta\sigma_y$ ) para cada valor de fluencia ensayado en el reactor BR-2 para las probetas 41.1.

<b>Probeta</b>	<b>T [°C]</b>	<b>Ft</b>	<b>mdpa eff</b>	<b><math>\Delta\sigma_y</math></b>	<b><math>\phi.t/ \text{dpa} [\text{n.cm}^{-2}/ \text{dpa}]</math></b>	<b><math>\phi.t [\text{n.cm}^{-2}]</math></b>
<b>41.1</b>	290	0,5437	<b>28</b>	<b>111,476</b>	5,87E+20	<b>1,644E+19</b>
<b>41.1</b>	290	0,5437	<b>40</b>	<b>129,393</b>	5,87E+20	<b>2,348E+19</b>
<b>41.1</b>	290	0,5437	<b>41</b>	<b>130,756</b>	5,87E+20	<b>2,407E+19</b>

Tales puntos de dureza fueron ubicados en la figura 22. Los de color rojo corresponden al 31.3 y los de color verde 41.1.

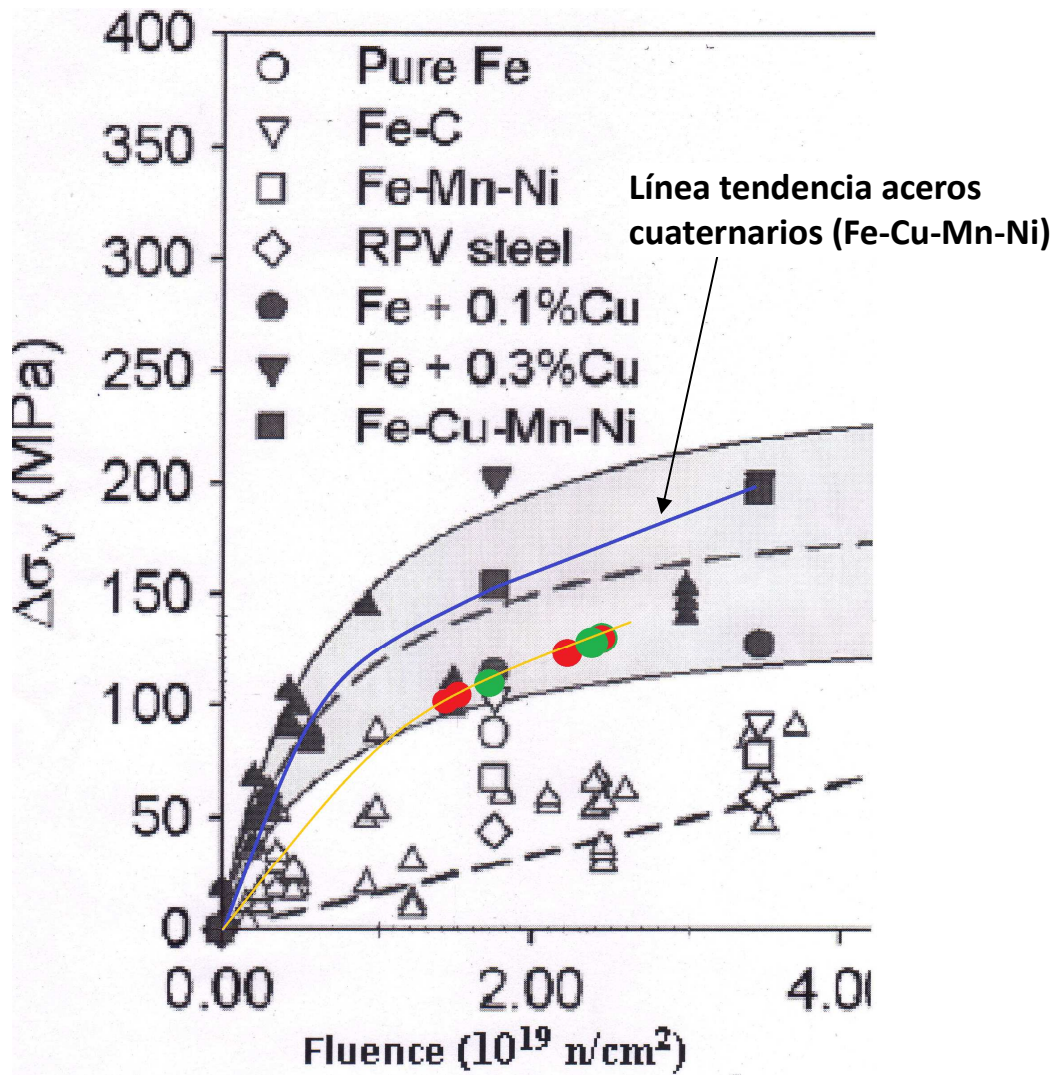


Figura 22 – Gráfico de dureza vs fluencia.

Se puede observar que el material base del RPV de CNA-I que domina el daño (31.3 y 41.1) poseerá un comportamiento similar esperable al de los aceros de alta concentración de Cu ( $> 0,10$ ) y se acerca a la tendencia seguida por el acero cuaternario (Fe-CuMnNi) estudiados en la [13].

Con los valores disponibles, no se puede descartar la hipótesis de que el material base de CNA-I tenga un comportamiento similar al mostrado por el acero cuaternario, aunque los valores de endurecimiento sean comparativamente menores. Como consecuencia de las diferencias en la composición química.

## 5. Extensión de vida de las Centrales Nucleares

### 5.1 Antecedentes

La extensión de vida de una central nuclear representa una alternativa económica para los operadores y los gobiernos, ante la necesidad de abastecimiento energético acorde a la demanda y desarrollo del país.

Países como Francia, Inglaterra, Japón, Canadá y Suiza, entre otros, se encuentran desarrollando normativas, procedimientos y demás reglas a fin de extender la licencia de operación de sus centrales nucleares.

La factibilidad de extender la vida de una central nuclear está determinada por la aptitud para el servicio extendido de distintas estructuras, sistemas y componentes, especialmente aquellos que se consideran como críticos al no poder ser reemplazados. Entre estos se encuentra el RPV de una central tipo PWR y PHWR.

El RPV es el contenedor del núcleo y forma parte de las barreras en la línea de defensa contra el escape de material radiactivo, en caso de un accidente.

Es necesario realizar una distinción entre los reactores del tipo PWR y PHWR.

- **Reactores tipo PWR**

Estos reactores utilizan uranio enriquecido como combustible y agua liviana presurizada (PWR) como refrigerante y moderador. Permiten la apertura del RPV durante la operación de reabastecimiento de combustible. Además en el programa de inspección en servicio (ISI) se examinan las soldaduras y los internos del mismo. En base a la posibilidad que posee este tipo de reactores de poder abrir su tapa y ser vaciado, al momento de pensar en una extensión de vida, para remediar la fragilización del RPV se dispone de distintas alternativas, como ser:

- Métodos para la reducción del flujo.
- Métodos analíticos
- Modificaciones de procedimientos y hardware
- Recocido del recipiente

- **Reactores tipo PHWR: caso Central Nuclear Atucha-I**

Estos reactores utilizan uranio natural como combustible y agua pesada como moderador y refrigerante. A continuación cuando hablamos de reactores PHWR estaremos refiriéndonos en particular a los reactores de las Centrales Nucleares Atucha I y II que son únicos en el mundo por su diseño particular. Se hace esta aclaración para no confundir con los reactores tipo CANDU que también utilizan el mismo combustible, moderador y refrigerante pero su diseño es distinto.

Estudios realizados por Nucleoeléctrica Argentina S.A (NA-SA) han concluido que no es factible la opción de abrir el RPV de la CNA-I por su alta dosis debido al tritio generado por su operación. Por lo tanto, no se puede aplicar la alternativa del

recocido de la vasija. En función de esto, la opción disponible es realizar un estudio analítico proyectando la fragilización que tendrá el RPV durante los años extras que operará y verificar si cumple con los requisitos de seguridad pertinentes.

En base a una decisión política y a las mejoras implementadas, la Central Nuclear Atucha-I realizará su extensión de vida por 15 años más a plena potencia (app). La fecha estimada (factor de carga= 85%) es para diciembre de 2017, cumpliendo con su vida por diseño de 32 años app. El plan para realizar dicha tarea contempla 3 períodos de 5 años app cada uno.

## 5.2 Correlaciones para predecir el $\Delta RT_{NDT}$

Como se comentó anteriormente, ante la decisión de extender la vida útil por diseño de reactores del tipo PWR/ PHWR, se debe garantizar la integridad estructural del RPV durante el período de operación adicional. Garantizar la integridad estructural implica conocer la temperatura de referencia ajustada (al objetivo de fluencia buscado) de transición dúctil-frágil ( $RT_{NDT}$ ) y demostrar que la misma es inferior a la temperatura de referencia que se obtiene del análisis del PTS ( $RT_{PTS}$ ).

Es habitual que al momento de estudiar la factibilidad de la extensión de vida, no se disponga de resultados de irradiación del material del RPV a los nuevos valores de fluencia de interés. Es por ello, que se han desarrollado distintas correlaciones que permiten estimar el corrimiento de la temperatura de transición dúctil-frágil como consecuencia de la irradiación neutrónica. Existe en la literatura distintas correlaciones, cada una de ellas determinada a partir de diferentes bases de datos de fragilización de distintos materiales, entre ellas se seleccionaron la Regulatory Guide 1.99 rev.2, ASTM E900-02 y EONY por considerarse de aplicación a materiales del tipo del RPV de CNA-I y para tener consistencia con las evaluaciones que se realizaron al RPV de CNA-II.

A continuación se describen cada una de ellas y posteriormente desarrollarán para el material base del RPV de CNA-I, que domina el daño, para los dos objetivos de fluencia deseados, los cuales son, a fin de vida por diseño (EoL) y para 1,5.EoL.

- **Regulatory Guide 1.99 rev.2**

La temperatura ajustada (ART) para cada material en la zona de la "beltline" está dada por la siguiente expresión:

$$ART = \text{Initial } RT_{NDT} + \Delta RT_{NDT} + \text{MARGIN}$$

- **Initial  $RT_{NDT}$**  = es la temperatura de referencia para el material no irradiado.
- **$\Delta RT_{NDT}$**  = es el valor medio de la temperatura de referencia ajustada causada por la irradiación y debe ser calculada como:

$$\Delta RT_{NDT} (\text{°F}) = (\text{CF}) \cdot f^{(0,28 - 0,10 \cdot \log f)} + (\text{Factor de corrección por Temp.})$$

$$\Delta RT_{\text{NDT}} (\text{°C}) = (5/9) \cdot [(CF) \cdot f^{(0,28 - 0,10 \cdot \log f)}] + (\text{Factor de corrección por Temp.})$$

- **CF (°F)** = es el factor químico, es función del contenido de Cu y Ni. Está dado para soldaduras en la tabla 1 y para el metal base (placas y forjas) en la tabla 2, en la Regulatory Guide Rev. 2.
- El factor de fluencia,  $f^{(0,28 - 0,10 \cdot \log f)}$  es determinado por cálculo o desde la figura 1 en la Regulatory Guide Rev. 2.
- **Factor de corrección por Temperatura** = es un factor de corrección que representa la temperatura de irradiación nominal, como es menor a 525 °F (274 °C); esto corresponde a 0,6 °C de fragilización adicional por cada 1 °C por debajo de 274 °C.
- **MARGIN:** es la cantidad, °F, que debe ser adicionada para obtener valores conservativos del límite superior de la temperatura ajustada de referencia para los cálculos requeridos por el Apéndice G para el 10 CFR parte 50.

$$\text{MARGIN} = 2 \cdot (\sigma_i^2 + \sigma_{\Delta}^2)^{1/2}$$

$\sigma_i$ : es la desviación estándar para la inicial  $RT_{\text{NDT}}$ . Si una medición inicial de  $RT_{\text{NDT}}$  para el material en cuestión está disponible,  $\sigma_i$  se calcula a partir de la precisión del ensayo\*. Si no, es usado un valor medio genérico para la clase de material,  $\sigma_i$  es la desviación estándar obtenida a partir del conjunto de datos utilizados para establecer la media.

\* normalmente se toma como 0°F (0°C).

$\sigma_{\Delta}$ : es la desviación estándar para  $\Delta RT_{\text{NDT}}$ .

Para soldaduras = 28°F

Para metal base = 17°F (9,4 °C)

Excepto que  $\sigma_{\Delta}$  no exceda 0,5 veces el valor medio de  $\Delta RT_{\text{NDT}}$ .

- **ASTM E900-02**

El modelo de fragilización estandarizado de ASTM E900-02, es expresado por la siguiente relación.

$$\Delta RT_{\text{NDT}} (\text{°F}) = \text{SMD} + \text{CRP}$$

$$\Delta RT_{\text{NDT}} (\text{°C}) = (5/9) \cdot \Delta RT_{\text{NDT}} (\text{°F})$$

Con  $\Delta RT_{NDT}$  en °F y donde SMD, es el término del Daño Estable en la Matriz y está dado por:

$$SMD = A \cdot e^{(20730 / (T_c + 460))} \cdot \phi^{0,5076}$$

Con  $A = 6,7 \times 10^{-18}$ ,  $T_c$  es la temperatura de irradiación en °F y  $\phi$  es la fluencia rápida en  $n/cm^2$  ( $E > 1$  MeV).

El CRP, es el término referido a los Precipitados Ricos en Cobre y está dado por la siguiente expresión:

$$CRP = B \cdot (1 + 2,106 \cdot Ni^{1,173}) \cdot f(Cu) \cdot [0,5 + 0,5 \cdot \tanh((\log \phi - 18,24) / 1,052)]$$

B =	234 para soldaduras
B =	128 para forjas
B =	156 para otras placas

f(Cu) =	0	si $Cu \leq 0,072\%$
f(Cu) =	$(Cu - 0,072)^{0,577}$	si $Cu > 0,072\%$

- **EONY**

$$\Delta RT_{NDT} (\text{°F}) = MD + CRP$$

La unidad del  $\Delta RT_{NDT}$  es °F y el Daño en la Matriz está dado por:

$$MD (\text{°F}) = A \cdot (1 - 0,001718 \cdot T_c) \cdot (1 + 6,13 \cdot P \cdot Mn^{2,471}) \cdot (\phi \cdot t_e)^{0,5}$$

y el término de los Precipitados Ricos en Cobre, está expresado como:

$$CRP (\text{°F}) = B \cdot (1 + 3,77 \cdot Ni^{1,191}) \cdot (T_c / 543)^{1,10} \cdot f(Cu_c) \cdot g(Cu_c, Ni, \phi \cdot t_e)$$

A =	$1,14 \times 10^{-7}$ para forjas
A =	$1,561 \times 10^{-7}$ para placas
A =	$1,417 \times 10^{-7}$ para soldaduras

$T_c$  es la temperatura de irradiación en °F, el contenido de P y Mn están dados en % en peso y  $\phi \cdot t_e$  es la fluencia neutrónica efectiva en  $n/cm^2$  y se calcula:

$$\phi \cdot t_e = \phi \cdot t \quad \text{para } \phi \geq 4,39 \times 10^{10} \text{ n}/(\text{cm}^2 \cdot \text{seg})$$

$$\phi \cdot t_e = \phi \cdot t \cdot (4,39 \times 10^{10} / \phi)^{0,2595} \quad \text{para } \phi < 4,39 \times 10^{10} \text{ n}/(\text{cm}^2 \cdot \text{seg})$$

Donde  $\phi_{.t}$  es la fluencia neutrónica acumulada y  $\phi$  es el flujo neutrónico promedio.

La concentración de Ni y Cu es en % en peso.

B =	102,3 para forjas
B =	155 para soldaduras

$Cu_e = 0$	para $Cu \leq 0,072$
$Cu_e = \min(Cu, \max Cu_e)$	Para $Cu > 0,072$

		Max $Cu_e$
$Cu \leq 0,072$		0
$Cu > 0,072$	Soldadura Linde 80	0,243
	Todos los otros materiales	0,301

	$f(Cu_e, P)$
$Cu \leq 0,072$	0
$Cu > 0,072$ y $P \leq 0,008$	$(Cu_e - 0,072)^{0,668}$
$Cu > 0,072$ y $P > 0,008$	$[Cu_e - 0,072 + 1,359.(P - 0,008)]^{0,668}$

donde  $g(Cu_e, Ni, \phi_{.te})$  es:

$g(Cu_e, Ni, \phi_{.te}) =$	$0,5 + 0,5.Tanh\{[\log(\phi_{.te}) + (1,139.Cu_e) - (0,448.Ni) - 18,12]/ 0,629\}$
-----------------------------	---

Cada una de estas correlaciones tiene implícita un mecanismo de fragilización. En base a los datos reales, obtenidos por ensayos de irradiación en el reactor de investigación BR-2 de Bélgica para los materiales que "dominan el daño" del RPV de CNA-I, los cuales son BM 31.3 y BM 41.1, se obtuvo cual de las tres correlaciones describe mejor el daño.

Los ensayos de irradiación, como los cálculos con correlaciones, se realizaron para dos puntos de fluencia, el respectivo a fin de vida (EoL) lo que corresponde a  $1,26 \times 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup> y a 1,5.EoL que equivale a  $1,89 \times 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup>.

A continuación se presentarán los cálculos realizados con cada una de las correlaciones.

### 5.3 Aplicación de las correlaciones para el material base del RPV de CNA-I

- REGULATORY GUIDE Rev.2: CNA-I

Material Base	Initial RT <sub>NDT</sub> [°C]
31.3	-53,7
41.1	-27,2

Para una Fluencia de EoL que equivale a  $1,26 \times 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup> (0,0261 dpa)

Material	Initial RT <sub>NDT</sub> [°C]	% en peso Cu	% en peso Ni	CF [°F] Material Base	CF [°C] Material Base	$f^{(0,28-0,10 \log f)}$	274°C – Top <sub>RPV CNA I</sub> [°C]	Correc. T [°C]	$\Delta RT_{NDT}$ [°C]
31.3	<b>-53,7</b>	0,12	0,81	86	47,78	1,064	9	5,400	<b>56,25</b>
41.1	<b>-27,2</b>	0,14	0,82	105,1	58,39	1,064	9	5,400	<b>67,55</b>

Material	$\sigma_I$ [°C]	$\sigma_{\Delta}$ [°C]	$\sigma_I^2$ [°C]	$\sigma_{\Delta}^2$ [°C]	$\sigma_I^2 + \sigma_{\Delta}^2$ [°C]	Margin [°C]	ART [°C]
31.3	5,4	9,4	29,16	88,36	117,52	<b>21,68</b>	<b>24,23</b>
41.1	3,8	9,4	14,44	88,36	102,8	<b>20,28</b>	<b>60,63</b>

Para una Fluencia de 1,5.EoL que equivale a  $1,89 \times 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup> (0,0392 dpa)

Material	Initial RT <sub>NDT</sub> [°C]	% en peso Cu	% en peso Ni	CF [°F] Material Base	CF [°C] Material Base	$f_{(0,28-0,10\log f)}$	274°C – Top <sub>RPV CNA I</sub> [°C]	Correc. T [°C]	$\Delta RT_{NDT}$ [°C]
31.3	<b>-53,7</b>	0,12	0,81	86	47,78	1,174	9	5,400	<b>61,50</b>
41.1	<b>-27,2</b>	0,14	0,82	105,1	58,39	1,174	9	5,400	<b>73,96</b>

Material	$\sigma_I$ [°C]	$\sigma_{\Delta}$ [°C]	$\sigma_I^2$ [°C]	$\sigma_{\Delta}^2$ [°C]	$\sigma_I^2 + \sigma_{\Delta}^2$ [°C]	Margin [°C]	ART [°C]
31.3	5,4	9,4	29,16	88,36	117,52	<b>21,68</b>	<b>29,49</b>
41.1	3,8	9,4	14,44	88,36	102,8	<b>20,28</b>	<b>67,04</b>

- ASTM E900-02: CNA-I

Material Base	Initial RT <sub>NDT</sub> [°C]
31.3	-53,7
41.1	-27,2

Para una Fluencia de EoL que equivale a  $1,26 \times 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup> (0,0261 dpa)

Material	A	Tc [°C]	Tc [°F]	$\phi \cdot t$ [n/cm <sup>2</sup> ]	$e^{(20730/(Tc+460))}$	$(\phi \cdot t)^{0,5076}$	SMD	B	% en peso Cu
31.3	6,70E-18	265	509	1,26E+19	1,95E+09	4,96E+09	<b>64,92</b>	128	0,12
41.1	6,70E-18	265	509	1,26E+19	1,95E+09	4,96E+09	<b>64,92</b>	128	0,14

Material	% en peso Ni	f(Cu)	$(1+2,106 \cdot Ni^{1,173})$	$(\text{Log}\phi - 18,24)/1,052$	$0,5+0,5 \cdot \text{TANH}[(\text{Log}\phi - 18,24)/1,052]$
31.3	0,81	0,173	2,6448	0,8178	0,8369
41.1	0,82	0,212	2,6686	0,8178	0,8369

Material	CRP	$\Delta RT_{NDT}$ [°F]	$\Delta RT_{NDT}$ [°C]	RT <sub>NDT</sub> [°C]
31.3	<b>49,13</b>	<b>114,05</b>	<b>63,36</b>	<b>9,66</b>
41.1	<b>60,61</b>	<b>125,53</b>	<b>69,74</b>	<b>42,54</b>

Para una Fluencia de 1,5.EoL que equivale a  $1,89 \times 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup> (0,0392 dpa)

Material	A	T <sub>c</sub> [°C]	T <sub>c</sub> [°F]	$\phi \cdot t$ [n/cm <sup>2</sup> ]	$e^{(20730/(T_c+460))}$	$(\phi \cdot t)^{0,5076}$	<b>SMD</b>	B	% en peso Cu
31.3	6,70E-018	265	509	1,89E+019	1,95E+09	6,09E+09	<b>79,75</b>	128	0,12
41.1	6,70E-018	265	509	1,89E+019	1,95E+09	6,09E+09	<b>79,75</b>	128	0,14

Material	% en peso Ni	f(Cu)	$(1+2,106 \cdot Ni^{1,173})$	$(\text{Log}\phi-18,24)/1,052$	$0,5+0,5 \cdot \text{TANH}[(\text{Log}\phi-18,24)/1,052]$
31.3	0,81	0,173	2,6448	0,9852	0,8777
41.1	0,82	0,212	2,6686	0,9852	0,8777

Material	<b>CRP</b>	$\Delta RT_{\text{NDT}}$ [°F]	$\Delta RT_{\text{NDT}}$ [°C]	$RT_{\text{NDT}}$ [°C]
31.3	<b>51,52</b>	<b>131,28</b>	<b>72,93</b>	<b>19,23</b>
41.1	<b>63,56</b>	<b>143,31</b>	<b>79,62</b>	<b>52,42</b>

- **EONY: CNA I**

Material Base	Initial RT <sub>NDT</sub> [°C]
31.3	-53,7
41.1	-27,2

Para una Fluencia de EoL que equivale a  $1,26 \times 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup> (0,0261 dpa)

Material	A	B	T <sub>c</sub> [°C]	T <sub>c</sub> [°F]	% en peso P	% en peso Mn	(% en peso Mn) <sup>2,471</sup>	% en peso Ni	(% en peso Ni) <sup>1,191</sup>
31.3	1,140E-07	102,3	265	509	0,009	0,69	0,3998	0,81	0,7780
41.1	1,140E-07	102,3	265	509	0,016	0,75	0,4912	0,82	0,7895

Material	% en peso Cu	$\phi \cdot t$ [n/ cm <sup>2</sup> ]	t 32 app [seg]	$\phi$ [n/(cm <sup>2</sup> .seg)]	$\phi \cdot t_e$ [n/ cm <sup>2</sup> ]	Cu <sub>e</sub>	f(Cu <sub>e</sub> , P)	g(Cu <sub>e</sub> , Ni, $\phi \cdot t_e$ )	(T <sub>c</sub> /543) <sup>1,10</sup>
31.3	0,12	1,26E+019	1,01E+09	1,2486E+10	1,7461E+19	0,12	0,13402	0,94524	0,93134
41.1	0,14	1,26E+019	1,01E+09	1,2486E+10	1,7461E+19	0,14	0,18329	0,94818	0,93134

Material	MD	CRP	$\Delta RT_{NDT}$ [°F]	$\Delta RT_{NDT}$ [°C]	RT <sub>NDT</sub> [°C]
31.3	61,12086	47,47315	<b>108,59</b>	<b>60,33</b>	<b>6,63</b>
41.1	62,68315	65,84335	<b>128,53</b>	<b>71,40</b>	<b>44,20</b>

Para una Fluencia de 1,5.EoL que equivale a  $1,89 \times 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup> (0,0392 dpa)

Material	A	B	T <sub>c</sub> [°C]	T <sub>c</sub> [°F]	% en peso P	% en peso Mn	(% en peso Mn) <sup>2,471</sup>	% en peso Ni	(% en peso Ni) <sup>1,191</sup>
31.3	1,140E-07	102,3	265	509	0,009	0,69	0,3998	0,81	0,7780
41.1	1,140E-07	102,3	265	509	0,016	0,75	0,4912	0,82	0,7895

Material	% en peso Cu	$\phi \cdot t$ [n/ cm <sup>2</sup> ]	t <sub>48 app</sub> [seg]	$\phi$ [n/(cm <sup>2</sup> ·seg)]	$\phi \cdot t_e$ [n/ cm <sup>2</sup> ]	Cu <sub>e</sub>	f(Cu <sub>e</sub> , P)	g(Cu <sub>e</sub> , Ni, $\phi \cdot t_e$ )	(T <sub>o</sub> /543) <sup>1,10</sup>
31.3	0,12	1,89E+19	1,51E+09	1,2486E+10	2,6192E+19	0,12	0,13402	0,96797	0,93134
41.1	0,14	1,89E+19	1,51E+09	1,2486E+10	2,6192E+19	0,14	0,18329	0,96972	0,93134

Material	MD	CRP	$\Delta RT_{NDT}$ [°F]	$\Delta RT_{NDT}$ [°C]	RT <sub>NDT</sub> [°C]
31.3	74,85746	48,61442	<b>123,47</b>	<b>68,60</b>	<b>14,90</b>
41.1	76,77086	67,33948	<b>144,11</b>	<b>80,06</b>	<b>52,86</b>

## 5.4 Análisis de los valores obtenidos por las correlaciones para el material base del RPV de CNA-I

En las siguientes tablas que se presentan, están resumidos los valores obtenidos para el material BM 31.3 y BM 41.1, por cada una de las correlaciones a los objetivos de fluencia deseados.

Tabla 13

Material	Fluencia [ $n/cm^2$ ]	Correlación	RT <sub>NDT</sub> [°C]
31.3	1,26x10 <sup>19</sup> (EoL)	RG 1.99 rev.2	24,23
		ASTM E900-02	9,66
		EONY	6,63
41.1		RG 1.99 rev.2	60,63
		ASTM E900-02	42,54
		EONY	44,20

Tabla 13 – Resultados de las correlaciones para el BM 31.3 y BM 41.1 a 1,26x10<sup>19</sup> n/cm<sup>2</sup>.

Tabla 14

Material	Fluencia [ $n/cm^2$ ]	Correlación	RT <sub>NDT</sub> [°C]
31.3	1,89x10 <sup>19</sup> (1,5.EoL)	RG 1.99 rev.2	29,49
		ASTM E900-02	19,23
		EONY	14,90
41.1		RG 1.99 rev.2	67,04
		ASTM E900-02	52,42
		EONY	52,86

Tabla 14 – Resultados de las correlaciones para el BM 31.3 y BM 41.1 a 1,89x10<sup>19</sup> n/cm<sup>2</sup>.

En la siguiente tabla se presentan los valores obtenidos de la irradiación en el reactor BR-2. Se estudiaron dos puntos, uno hasta la fluencia de fin de vida (EoL) correspondiente a 1,26x10<sup>19</sup> n/cm<sup>2</sup> (0,0261 dpa) y el otro a 1,5.EoL que equivale a 1,89x10<sup>19</sup> n/cm<sup>2</sup> (0,0392 dpa).

Material	dpa	Fluencia (n/cm <sup>2</sup> )	RT <sub>To</sub> (°C)
31.3	0,024	1,409E+19	11,3
31.3	0,038	2,231E+19	19,2
41.1	0,028	1,644E+19	14,6
41.1	0,040	2,348E+19	27,7

Tabla 15 - Resultados del análisis de la Master Curve sobre el material base del RPV de CNA-I irradiado en BR-2.

En los siguientes gráficos se representan para cada material (BM 31.3 y BM 41.1), como es la diferencia entre el valor predicho de RT<sub>NDT</sub> (°C) por cada correlación con respecto al valor medido en los ensayos de irradiación en el BR-2, en función de la fluencia (n/cm<sup>2</sup>).

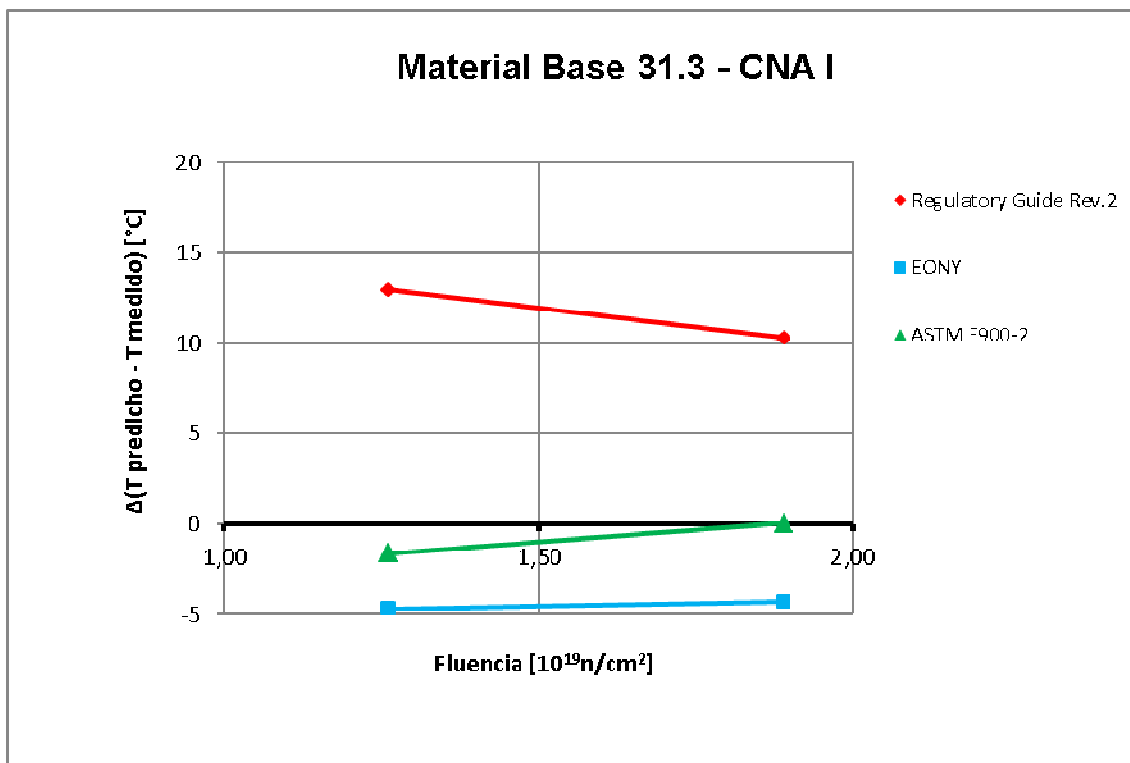


Figura 23 – Representación de la diferencia entre el valor predicho de RT<sub>NDT</sub> (°C) por cada correlación con respecto al valor medido en los ensayos de irradiación en el BR-2, en función de la fluencia, para el Material Base 31.3 del RPV de CNA-I.

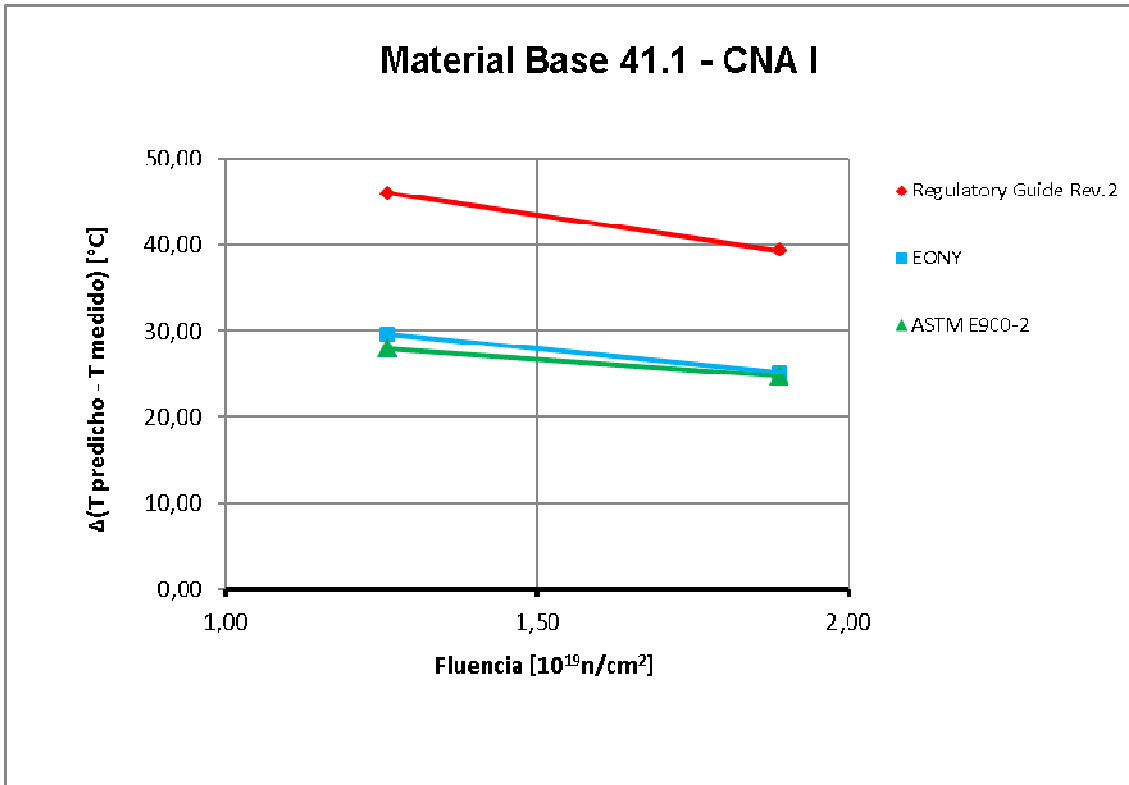


Figura 24 – Representación de la diferencia entre el valor predicho de  $RT_{NDT}$  (°C) por cada correlación con respecto al valor medido en los ensayos de irradiación en el BR-2, en función de la fluencia, para el Material Base 41.1 del RPV de CNA-I.

En función de lo obtenido en los gráficos anteriores, se puede observar que todas las correlaciones ajustan mejor a valores de fluencias más altas. Cabe destacar, que la Regulatory Guide rev.2 tanto para el BM 31.3 y BM 41.1 sobreestima sus valores. Las correlaciones ASTM E900-2 y EONY no tienen grandes diferencias en el rango de fluencia estudiado. Se puede notar, que estas dos correlaciones para el BM 41.1 sobreestima y para el 31.3 subestima sus valores predichos, esto posiblemente puede ser explicado porque los materiales tienen gran diferencia en su temperatura de referencia para el material sin irradiar (Initial  $RT_{NDT}$ ) y no debido a cambios en la temperatura de referencia ajustada causada por la irradiación ( $\Delta RT_{NDT}$ ).

Si el objetivo de fluencia es llegar a 1,5.EoL, no hay distinción en usar ASTM E900-2 o EONY pero si se buscan fluencias mayores, habría que ampliar el estudio porque puede ser que el peso de los LBP, en el daño en la matriz y por ende en la fragilización, se vuelva apreciable. Una explicación tentativa de esto, sería que a estas fluencias todavía los CRPs no se han agotado de formar, o sea, que su aporte a la fragilización no se saturó y la contribución de los LBP todavía no llegó a tomar preponderancia.

## 6. Conclusión

Considerando la posible extensión de vida de la Central Nuclear Atucha I, el componente clave que hay que estudiar es el RPV. Es primordial garantizar la integridad estructural del mismo a los nuevos objetivos de fluencias deseados (1,5.EoL). En el año 2006 el SCK-CEN de Bélgica, realizó un informe integrador con los datos de irradiaciones, de distintos reactores, del material del RPV de CNA-I. Dichos reactores fueron, el VAK de Alemania, el BR-2 de Bélgica y Loviisa de Finlandia. Este informe utilizó para obtener la temperatura de referencia ajustada de transición dúctil-frágil, la correlación Regulatory Guide rev.2, la cual considera como elementos químicos fragilizantes al Cu y el Ni.

El estado del arte actual, demostró que para fluencias mayores al de fin de vida por diseño, la influencia de nuevos elementos químicos como el Mn, el cual posee un efecto sinérgico con el Ni, agregarían una componente adicional a la fragilización de los conocidos CRPs. Este nuevo factor, únicamente puede ser explicado en términos del efecto del llamado Daño en la Matriz. La naturaleza de este daño, generalmente descrito por huecos y lazos de SIAs, hasta ahora es ambigua.

Con los datos disponibles del material base del RPV de CNA-I (BM 31.3 y BM 41.1), se llega a la conclusión que no se puede descartar que posee un comportamiento del tipo acero cuaternario (Fe-Cu-Mn-Ni).

En base a la comparación de las tres correlaciones empleadas para predecir el cambio en la temperatura de referencia ajustada dúctil-frágil, se concluye que la Regulatory Guide rev.2 proporciona valores muy conservativos, los cuales se manifiestan en una penalización para el RPV. En cambio, el modelo propuesto por ASTM E900-2 es la que mejor ajusta a los valores reales pero teniendo presente que para el BM 31.3 da unos valores que subestiman, no es gran medida, a los medidos.

## **7. Agradecimientos**

Quisiera agradecer a la Lic. Adriana Politi que siempre con una excelente predisposición me ha asesorado con su conocimiento y experiencia, los cuales han sido esenciales para la realización de este trabajo. Como también mi agradecimiento a la Autoridad Regulatoria Nuclear, que me permitió realizar el curso de "Especialización en Reactores Nucleares y su Ciclo Combustible" como parte de mi capacitación en Seguridad Nuclear.

## 8. Referencias

- [1]. Askeland Donald R., "Ciencia e Ingeniería de los Materiales", Tercera Edición, 1998.
- [2]. Fortis Ana M., "Materiales y Combustibles Nucleares".
- [3]. Caro M. y Caro A., "Spectral effects on defect production in the reactor pressure vessel of a pressurized heavy-water reactor", 2000.
- [4]. Lucon E., Caro M., Iorio A.F., Jones R. B., Nanstad R., Scibetta M., Valo M. and Van Walle E., "Integrated Analysis of the CNA-1 Reactor Pressure Vessel Material Data Base in View of Plant Life Management", 2006.
- [5]. Odette G.R. and Nanstad R.K., "Predictive Reactor Pressure Vessel Steel Irradiation Embrittlement Models: Issues and Opportunities", 2009.
- [6]. Takeuchi T., Kuramoto A., Kameda J., Toyama T., Nagai Y., Hasegawa M., Ohkubo T., Yoshiie T., Nishiyama Y., Onizawa K., "Effects of chemical composition and dose on microstructure evolution and hardening of neutron-irradiated reactor pressure vessel steels", 2010.
- [7]. Eason E. D., Odette G. R., Nanstad R. K., Yamamoto T., "A Physically Based Correlation of Irradiation-Induced Transition Temperature Shifts for RPV Steels", 2006.
- [8]. Glade Stephen C., Wirth Brian D., Odette G. Robert, Asoka-Kumar P., "Positron annihilation spectroscopy and small angle neutron scattering characterization of nanostructure features in high-nickel model reactor pressure vessel steels", 2006.
- [9]. Bergner F., Ulbricht and H A., Viehrig -W., "Acceleration of irradiation hardening of low-copper reactor pressure vessel steel observed by means of SANS and tensile testing", 2009.
- [10]. Odette G.R. and Lucas G.E., "Embrittlement of Nuclear Reactor Pressure Vessels", 2001.
- [11]. Odette G. R., Wirth B. D., Yamamoto T. and Miller M. K., "Late Blooming Phases and Dose Rate Effects in RPV Steels: Integrated Experiments and Models", 2004.
- [12]. Kobayashi S., Gillemot F., Horváth Á., Székely R., "Magnetic properties of a Highly neutron-irradiated nuclear reactor pressure vessel Steel", 2012.
- [13]. Lambrecht M., Malerba L., Almazouzi A., "Influence of different chemical elements on irradiation-induced hardening embrittlement of RPV steels", 2008.
- [14]. Ngayam-Happy R., Becquart C.S., Domain C., Malerba L., "Formation and evolution of MnNi clusters in neutron irradiated dilute Fe alloys modelled by a first principle-based AKMC method", 2012.