

CNEA-NT 6/83

04.83.17

REPUBLICA ARGENTINA
COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA
Dependiente de la Presidencia de la Nación
GERENCIA DE DESARROLLO

CRECIMIENTO Y CREEP BAJO IRRADIACIONES DE Zr.
ANALISIS DE SU DEPENDENCIA CON LA TEXTURA

N. SMETNIANSKY de DE GRANDE - A.A. POCHETTINO - E.J. SAVINO

Buenos Aires
1983

RESUMEN

El análisis de la Función Distribución de Orientaciones Cristalinas permite conocer, para una muestra dada, los diferentes componentes de la textura, como así también el peso y la dispersión de las mismas. Considerando sólo las componentes de mayor peso, se genera una distribución discreta de orientaciones cristalinas que simulan la textura de vainas combustibles y tubos de presión de Zircaloy. Esta representación se aplica al cálculo de crecimiento y creep bajo irradiación. Se considera una distribución de orientaciones para la cual se toman los ejes $\bar{c}$ sobre el plano radial - tangencial y otra, más realista, con una fracción de éstos fuera de dicho plano. Los resultados obtenidos muestran una fuerte dependencia del crecimiento con la textura, obteniéndose valores sensiblemente distintos como consecuencia del uso de una u otra representación. De aquí se hace evidente que utilizar una buena representación de la textura es de fundamental importancia para el cálculo y estudio del crecimiento y creep bajo irradiación.

1.- FUNDAMENTOS DE LA TEORIA DEL CRECIMIENTO BAJO IRRADIACION

El fenómeno de crecimiento consiste en un cambio de forma del material irradiado sin cambio de volumen. El estudio de este fenómeno en Zr. y sus aleaciones es de fundamental importancia para el diseño de reactores de Uranio natural y agua pesada que utilizan estos materiales en el núcleo. Esta importancia se torna evidente si se piensa que en el diseño de tubos de presión se acepta una deformación axial del 2% al cabo de 30 años de irradiación.

En teoría el crecimiento se explica por la textura del material utilizado y la anisotropía intrínseca del mismo. Para desarrollar el estudio teórico, se simula el material como formado por un conjunto de granos con una cierta desorientación entre sí, coherente con mediciones experimentales de textura. Como el Zr tiene estructura HCP, se señala la orientación de sus granos por la orientación del eje $\bar{c}$. Básicamente se utilizan una teoría y un modelo propuestos en el trabajo de Savino - Laciana⁽¹⁾ con los que se calcula la deformación del material y las tensiones y deformaciones sobre cada grano. La teoría se fundamenta en un trabajo de Blackburn⁽²⁾ y considera que:

- i) El valor medio de cualquier componente de tensión promediado sobre las orientaciones del cristal es igual a la componente de la tensión aplicada correspondiente.
- ii) La deformación es uniforme en todo el material.
- iii) Se puede representar la textura medida por una distribución discreta de distintas orientaciones de grano, cada orientación con su peso correspondiente.

El modelo aplicado se fundamenta en la teoría de velocidades de reacción cuyas bases pueden encontrarse, por ejemplo, en la referencia (3). El número de vacancias producidas por irradiación es igual al número de intersticiales. La mayoría de los defectos opuestos se aniquilan. La teoría para explicar el fenómeno (Ref. (1)), se basa en que los intersticiales son atraídos preferencialmente por dislocaciones dejando un exceso de vacancias en la red. Debido a esto, más vacancias que intersticiales se aniquilan en bordes de grano. De aquí resulta la conservación del volumen que se manifiesta durante el crecimiento.

Experimentalmente se comprueba que en Zr y sus aleaciones los vectores de Burgers de las dislocaciones se encuentran, generalmente, en el plano basal⁽⁴⁾. Por lo tanto, la teoría de velocidades de reacción antes descrita predice, para este material bajo irradiación, un ensanchamiento del plano basal y una contracción en la dirección del eje $\bar{c}$. En el modelo utilizado se consideran, en particular, sólo dislocaciones de borde con vectores de burgers en el plano basal Fig. (1).

Se considera un sistema de referencia fijo al grano y otro fijo a la probeta. En el primero el crecimiento se produce según lo explicado en el párrafo anterior. Pero, como los granos tienen cierta desorientación entre sí, éstos crecen en distintas direcciones respecto del sistema de referencia fijo a la probeta. De aquí el interés del presente trabajo de estudiar la dependencia del crecimiento con la textura.

En el trabajo de Savino - Laciana⁽¹⁾ se simula la textura correspondiente a los ejes $\bar{c}$, por dos orientaciones en el plano radial-tangencial y dos en el radial-axial, con una densidad de 0.8 y 0.2 res-

pectivamente, Fig. (2). El objeto del presente trabajo es estudiar el crecimiento bajo irradiación utilizando una descripción discreta de textura que reproduzca con la mayor similitud posible la figura de polos experimental.

2.- REPRESENTACION DISCRETA DE TEXTURAS

2.1.- Fundamentos

Las figuras de polos directas, obtenidas por difracción de Rayos X, son utilizadas habitualmente para poner de manifiesto la anisotropía de la distribución de orientaciones cristalográficas. Ellas consisten en la proyección estereográfica, sobre el plano axial-tangencial de la muestra, de la distribución de densidades de polos de una familia de planos $\{hkl\}$ en todas las direcciones de la muestra. La densidad de polos $q^{\bar{r}}(\bar{e})$ para un punto posicionado por $\bar{e}$ sobre la proyección estereográfica y para una familia de planos difractantes $\{hkl\}$ cuya normal es $\bar{r}$ se define de acuerdo a la relación.

$$q^{\bar{r}}(\bar{e}) = \frac{I^{\bar{r}}(\bar{e})}{I_i^{\bar{r}}(\bar{e})} \quad (2.1)$$

Donde $I^{\bar{r}}(\bar{e})$ es la intensidad difractada por la muestra en estudio y $I_i^{\bar{r}}(\bar{e})$ es la intensidad difractada por una muestra isótropa.

La Función Distribución de Orientaciones Cristalinas (FDOC) permite introducir una descripción cuantitativa de las texturas. Si $g(\psi, \theta, \varphi)$ es la rotación que permite pasar de un referencial fijo (A,B,C) asociado a la probeta, a un referencial (X,Y,Z) asociado

a un grano Fig. (3) y la distribución de granos con la misma orientación es aleatoria en el seno del cristal, la fracción del volumen de la probeta ocupada por los granos con orientación g resulta:

$$\frac{\Delta V(g)}{V_0} = K \cdot F(g) \cdot dg \quad (2.2)$$

Siendo $F(g)$ la FDOC, dg el elemento de volumen del espacio de las rotaciones ubicado alrededor de g y K una constante de normalización. La FDOC y las figuras de polos obtenidas experimentalmente están relacionadas por la ecuación:

$$q_{\bar{r}}(\bar{e}) = \int_{\gamma_{\bar{r}}} F(g_{\bar{r}}) d\gamma_{\bar{r}} \quad (2.3)$$

siendo $\gamma_{\bar{r}}$ una curva cerrada alrededor de la normal $\bar{r}$ a los planos difractantes. Cuando estos planos contribuyen a la intensidad difractada en un punto $\bar{e}$ de la figura de polos los vectores $\bar{r}$ y $\bar{e}$ son coincidentes.

Las ecuaciones (2.2) y (2.3) pueden ser resueltas mediante adecuados desarrollos en serie utilizando armónicos esféricos generalizados (5). Detalles de este cálculo pueden encontrarse en otra publicación del laboratorio (6).

A partir del análisis de la FDOC, en este trabajo se propone la utilización de una representación "discreta" de la textura, en la cual la Función Distribución es descripta por un número limitado de orientaciones g , las que corresponden a las principales componentes de textura. A cada orientación se le asigna un peso que es consecuencia de la resolución de la ecuación (2.1) para cada caso. Cabe señalar que las com-

ponentes de textura se notan como $\{h'k'i'l'\}$ $\langle u'v't'w' \rangle$, siendo $\{h'k'i'l'\}$ una familia de planos cristalinos cuya normal $\bar{r}$ es paralela a la dirección DR de un tubo o vaina y la dirección $\langle u'v't'w' \rangle$ es paralela a la dirección axial.

De acuerdo a la representación discreta de la textura, el valor medio de una propiedad escalar X de un sólido policristalino se puede escribir:

$$\bar{X} = \sum_i X(g_i) \cdot \left[\frac{\Delta V}{V_0}(g_i) \right] \quad (2.4)$$

Donde $X(g_i)$ es el valor de la propiedad para las orientaciones g_i asociadas a la representación de la textura y $\frac{\Delta V}{V_0}(g_i)$ la fracción del volumen del material correspondiente a cada una de ellas.

Es importante señalar que si bien la representación discreta de texturas facilita la resolución de la ecuación (2.4) disminuyendo considerablemente el tiempo de cálculo, dicha representación presenta limitaciones pues no tiene en cuenta la dispersión alrededor de cada componente o la eventual existencia de componentes de mucho menor peso.

2.2 Texturas en Zircaloy

A partir de las figuras de los polos experimentales $\{10\bar{1}0\}$, (0002) y $\{10\bar{1}1\}$ se calculan las FDOC correspondientes a vainas y tubos de Zircaloy (6). Considerando las principales componentes de textura se construyen dos representaciones discretas de la misma. La primera, indicada con (A), corresponde a una descripción de la textura de vainas y tubos de Zircaloy tal que los ejes $\bar{c}$ del cristal están ubica-

dos en el plano radial - tangencial. La segunda (B), intenta describir la textura en forma más realista, pudiéndose ubicar el eje $\bar{c}$ fuera de dicho plano.

En la TABLA I se representan las coordenadas (ψ, θ, φ) de las principales componentes de textura de la vaina de Zircaloy, la orientación cristalográfica aproximada de cada una de ellas y la fracción de volumen asociada a cada componente. En la TABLA II se realiza una presentación similar para tubos de Zircaloy.

La reconstrucción de las figuras de polos (0002) y $\{10\bar{1}0\}$ asociadas a la textura de tubos y de vainas se realiza según el esquema de la Fig. (4). En la misma, las rotaciones ψ alrededor de DR y θ alrededor de Y_1 permiten ubicar el eje $\bar{Z}$ del cristal coincidente con el eje $\bar{c}$ de la celda hexagonal del grano, generando la figura de polos (0002) . Una rotación posterior φ alrededor de $\bar{Z}_2 \equiv \bar{Z}$ permite ubicar el eje $\bar{X}$ coincidente con la dirección $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ del cristal, con lo cual se genera la figura de polos $\{10\bar{1}0\}$. Las figuras de polos se completan considerando la simetría de rotación del cristal hexagonal alrededor del eje $\bar{c}$ (orden 6) y la simetría de la muestra, siendo los planos perpendiculares a DA, DT y DR planos de simetría. Estas operaciones de simetría deben tenerse en cuenta al asignar el peso correspondiente a los puntos que aparecen en las distintas figuras de polos representadas en las Figuras (5-a,b) y (6-a,b).

En la Figura (5.a) se representa la figura de polos obtenida a partir del análisis discreto de textura de una vaina de Zircaloy. En la misma, la distribución de ejes $\bar{c}$ está confinada a zonas cercanas al plano (DR, DT), encontrándose una fuerte concentración de material alrededor de $\theta = 30^\circ$

En las figuras de polos $\{10\bar{1}0\}$ Fig. (5. b) , la existencia de componentes mayoritarias del tipo $\{h'k'i'l'\} \langle 10\bar{1}0 \rangle$ (TABLA I) implica un refuerzo de la densidad de los polos cuya proyección coincide con DA .

En el caso de tubos, la figura de polos (0002) es completamente diferente a la que presenta la vaina. En la Fig. (6.a) se observa que la distribución de ejes $\bar{c}$ se concentra alrededor del eje DT y se incrementa alrededor de $\theta = 90^\circ$. Por otra parte, si bien la componente $\{h'k'i'l'\} \langle 12\bar{1}0 \rangle$ es mayoritaria , TABLA II, la existencia de aproximadamente un 35% del volumen del material con componente $\{h'k'i'l'\} \langle 10\bar{1}0 \rangle$ refuerza la densidad polos coincidente con DA en la figura de polos $\{10\bar{1}0\}$, Fig (6.b) .

Es conveniente remarcar que la diferencia existente entre la textura de vainas y tubos radica en los distintos tratamientos termomecánicos a los que se somete el material.

3. - RESULTADOS OBTENIDOS

En la primera parte del trabajo se calcula el crecimiento de una vaina combustible y de un tubo de presión con la textura tipo (A) , o sea, todos los ejes $\bar{c}$ ubicados en el plano radial-tangencial. Los resultados se muestran en la Fig. (7).

3.1. - Textura tipo (A)

3.1.1. - Análisis de los resultados para la vaina combustible .

Por encontrarse el eje $\bar{c}$ confinado al plano radial-tangencial, tiene una componente según cada una de estas dos direc-

ciones, Fig (8-a,b). Para analizar los resultados de la Fig. (7), se toma como referencia una dirección en el plano radial-tangencial que forma un ángulo de 45° con la dirección radial Fig. 8-b. Según la TABLA I la densidad de granos cuyos ejes $\bar{c}$ forman un ángulo menor de 45° con la dirección radial es diez veces mayor que aquellos cuyos ejes $\bar{c}$ forman un ángulo mayor de 45° . De esto se concluye que la componente radial de $\bar{c}$ será la de mayor peso en el análisis. Esto significa que se produce una contracción en la dirección radial y una expansión en las direcciones axial y tangencial en las primeras etapas de la irradiación Fig. (7.a)

Debido a que en la dirección axial los granos de mayor densidad tienden a expandirse menos que el promedio de la probeta, sobre los mismos se generan tensiones expansivas por efecto de los otros granos. Por razones similares estas tensiones son compresivas en la dirección tangencial, Fig (9.a)

Al desarrollarse la irradiación, las tensiones tangenciales fuertemente compresivas hacen que la velocidad de crecimiento en esta dirección se torne negativa Fig (7.a).

Para comprender el mecanismo que favorece la velocidad de crecimiento en la dirección axial se debe tener presente que estando los ejes $\bar{c}$ en el plano radial-tangencial, el plano basal contiene la dirección axial Fig. (10.a), y además que el modelo ubica los vectores de Burgers sólo en el plano basal. Debido a que la dirección tangencial está comprimida, las dislocaciones con vector de Burgers en esta dirección tienen menor atrape preferencial de intersticiales.

Las dislocaciones con vector de Burgers en la dirección axial, expandida, capturan con facilidad los intersticiales en exceso Fig. (10.b).

Si bien las tensiones intergranulares sobre los granos de mayor densidad son expansivas en la dirección radial, éstas no alcanzan a compensar el efecto compresivo del crecimiento propio del grano en esta dirección y la velocidad de crecimiento radial es negativa Fig. (7. a)

3.1.2.- Análisis de los resultados para el tubo de presión

En la Fig. (6-a,b) se ve que la orientación de los ejes $\bar{c}$ es marcadamente la tangencial. Esta será la componente de mayor peso en el análisis. El tubo tiende a contraerse en la dirección tangencial y a expandirse en las direcciones radial y axial, en las primeras etapas de la irradiación, Fig. (7.b). En este caso las fuerzas radiales intergranulares sobre los granos de mayor densidad son tan compresivas, Fig. (9.b), que hacen que la velocidad de crecimiento en la dirección radial pase de positiva a negativa al desarrollarse la irradiación. El balance de tensiones favorece nuevamente el crecimiento axial Fig. (7.b).

3.2.- Textura tipo (B)

Se realiza ahora el mismo análisis con la textura TIPO(B). Este tipo de textura es la que considera una cierta densidad de ejes $\bar{c}$ fuera del plano radial - tangencial. Los resultados para la velocidad de crecimiento se muestran en la Fig. (11-a,b).

3.2.1.- Análisis de los resultados para la vaina combustible

Debido a que una cierta densidad de ejes $\bar{c}$ se encuentran fuera del plano radial-tangencial, TABLA I, las componentes de éstos en las direcciones radial y tangencial serán menores que en el caso de la textura tipo (A). En consecuencia, si bien la velocidad de crecimiento en la dirección axial se verá favorecida, este efecto será bastante menor que en el caso anterior.

3.2.2.- Análisis de los resultados para el tubo de presión

En este caso la densidad de granos con ejes $\bar{c}$ fuera del plano radial-tangencial es menor que en el caso de la vaina, TABLA II. Por este motivo, la influencia que sobre la velocidad de crecimiento tienen estos granos será menor que en el caso de la vaina con textura tipo (B).

4.- CONCLUSIONES

- 1) Una representación de la textura más realista, textura tipo (B), baja la velocidad de crecimiento con respecto al caso en que se considera todos los ejes $\bar{c}$ sobre el plano radial-tangencial, textura tipo (A).
- 2) La textura que se utiliza en la ref. (1) Fig. 2, si bien no es la más correcta para describir la textura del material, permite obtener resultados aceptables Fig. (12). Este hecho es consecuencia de asignar a los puntos elegidos el peso adecuado

poniendo de manifiesto la importancia de poseer una correcta descripción de la textura.

- 3) Finalmente, la conclusión más importante de este trabajo es que, aceptando la validez del modelo de crecimiento bajo irradiación por atracción preferencial de intersticiales por dislocaciones, se hace evidente, tanto en las vainas combustibles como en los tubos de presión, un incremento del crecimiento en la dirección axial con la dosis de irradiación.

REFERENCIAS

- 1) E.J. Savino and C.E. Laciana, J. Nucl. Mat. 90 (1980) 89
- 2) W.S. Blackburn, Phil. Mag., 6. (1961) 503.
- 3) A.D. Brailsford and R. Bullough, J. Nucl. Mat. 44 (1972) 121.
- 4) J.P. Hirth and J. Lothe, Theory of dislocations. (Mc Graw-Hill, New York, 1968)
- 5) Pernot, M. These d' Etat, Univ. Paris XI , Orsay, Francia 1977.
- 6) D. Hermida y A. Pochettino, CNEA-NT 19/82, Buenos Aires 1982.

VAINA ZIRCALOY

N°	COORDENADAS			Orientación aproximada	$\frac{\Delta V}{V_0}$ (Caso A)	$\frac{\Delta V}{V_0}$ (Caso B)
	ψ	θ	ϕ			
1	60	0	0	(0001) [10 $\bar{1}$ 0]	0.12	0.12
2	90	20	0	(10 $\bar{1}$ 5) [1 $\bar{2}$ 10]	0.06	0.06
3	90	30	0	(10 $\bar{1}$ 3) [1 $\bar{2}$ 10]	0.18	0.12
4	90	40	0	(10 $\bar{1}$ 2) [1 $\bar{2}$ 10]	0.12	0.09
5	90	20	30	($\bar{2}$ 118) [10 $\bar{1}$ 0]	0.08	0.08
6	90	30	30	($\bar{2}$ 116) [10 $\bar{1}$ 0]	0.20	0.13
7	90	40	30	(2114) [10 $\bar{1}$ 0]	0.15	0.10
8	90	50	30	(2113) [10 $\bar{1}$ 0]	0.09	0.09
9	0	12	0	(10 $\bar{1}$ 8) [40 $\bar{4}$ 1]	----	0.03
10	65	30	30	(2116) [2 $\bar{5}$ 31]	----	0.09
11	70	45	45	(2113) [1 $\bar{4}$ 31]	----	0.09

TABLA I

TUBO ZIRCALOY

N°	COORDENADAS			Orientación aproximada	$\frac{\Delta V}{V}$ (Caso A)	$\frac{\Delta V}{V}$ (Caso B)
	ψ	θ	ϕ			
1	90	0	0	(0001) [1210]	0.06	0.06
2	90	20	0	(1015) [1210]	0.03	0.03
3	90	30	0	(1013) [1210]	0.05	0.05
4	90	40	0	(1012) [1210]	0.06	0.06
5	90	50	0	(2023) [1210]	0.09	0.08
6	90	60	0	(1011) [1210]	0.11	0.10
7	90	75	0	(2021) [1210]	0.14	0.11
8	90	90	0	(1010) [1210]	0.14	0.11
9	90	0	30	(0001) [0110]	----	0.02
10	90	50	30	(2113) [0110]	0.02	0.03
11	90	60	30	(2112) [0110]	0.05	0.05
12	90	72	30	(2111) [0110]	0.07	0.06
13	90	80	30	(4211) [0110]	0.07	0.06
14	90	90	30	(1120) [0110]	0.09	0.08
15	70	70	30	($\bar{2}$ 111) [$\bar{1}$ 543]	----	0.02
16	75	90	0	(1010) [$\bar{2}$ 423]	----	0.04
17	80	90	30	(0 $\bar{5}$ 51) [0110]	----	0.04
18	90	40	30	(2114) [0110]	0.02	----

TABLA II

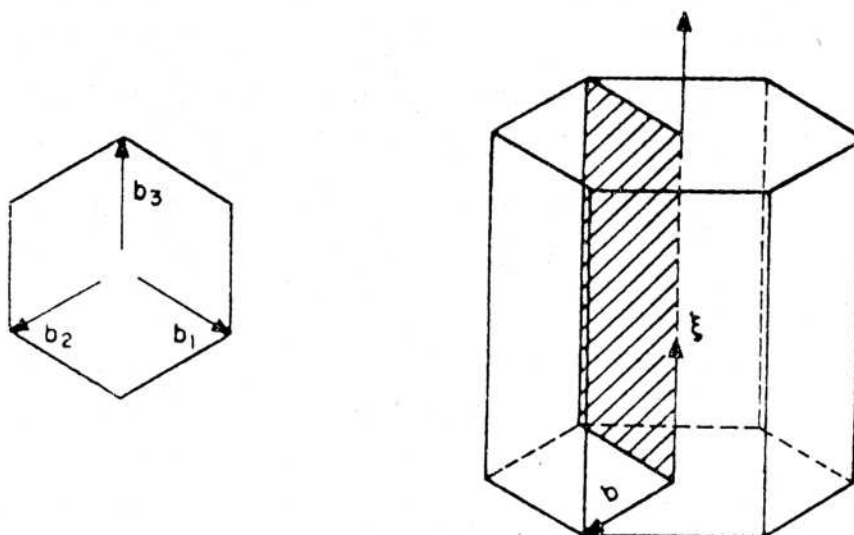


Fig. 1.- Dislocaciones consideradas en el modelo para Zr.(HCP).

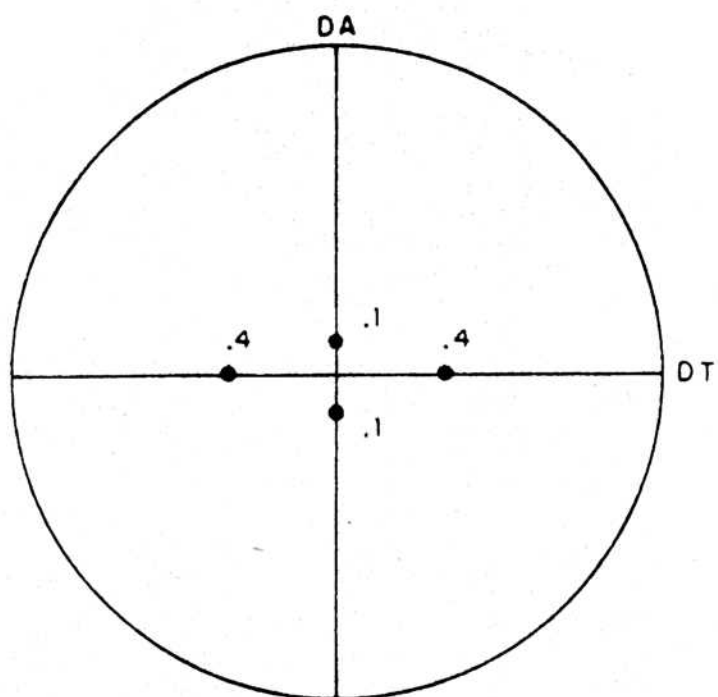


Fig. 2.- Textura simplificada de una vaina combustible utilizada en la referencia(1.).

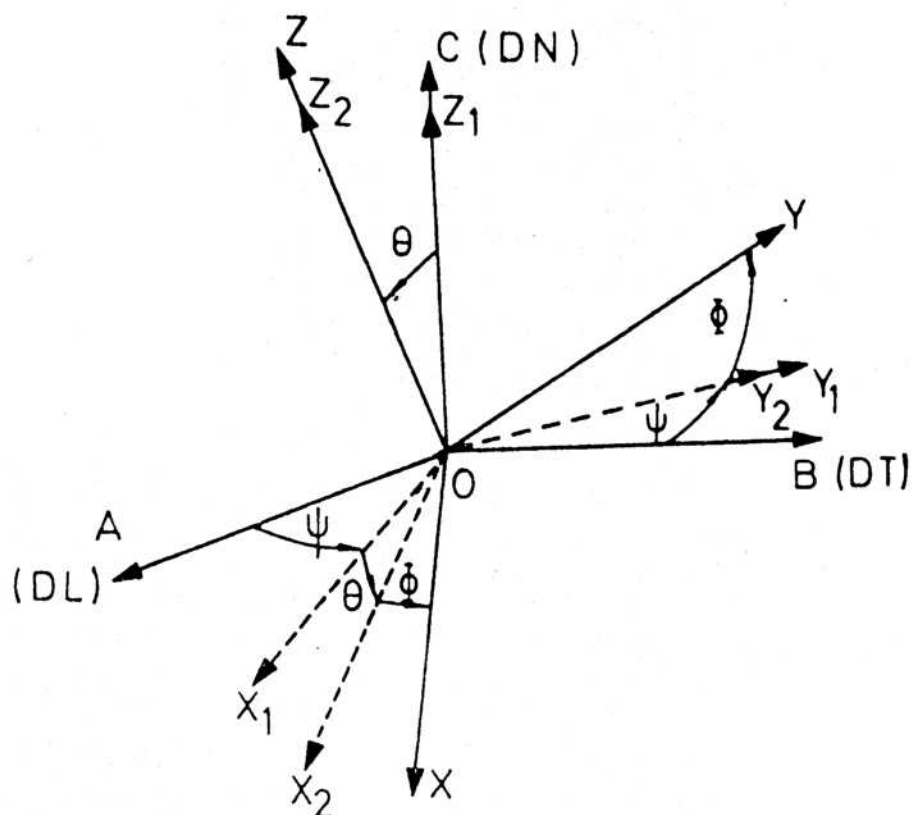
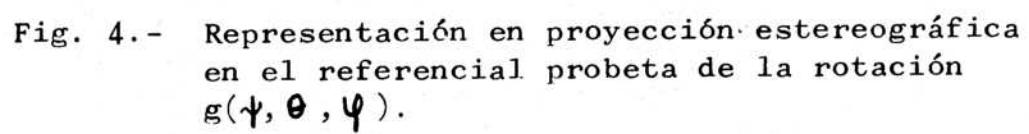
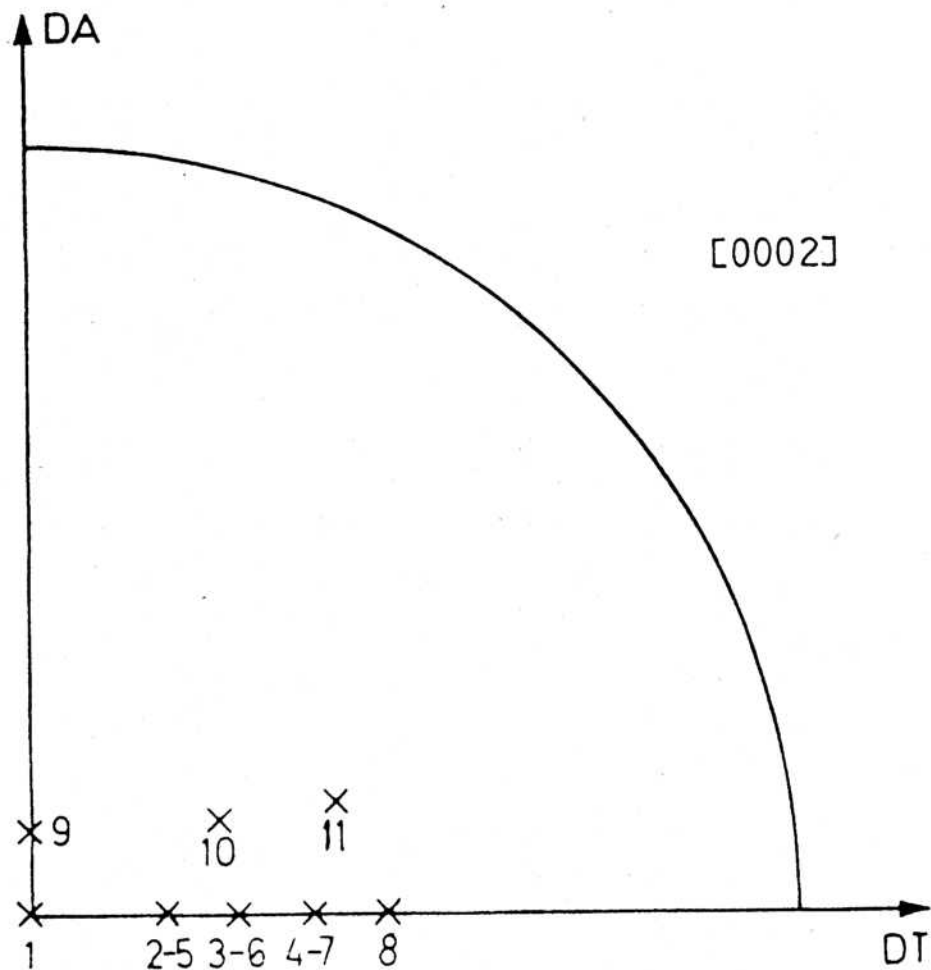
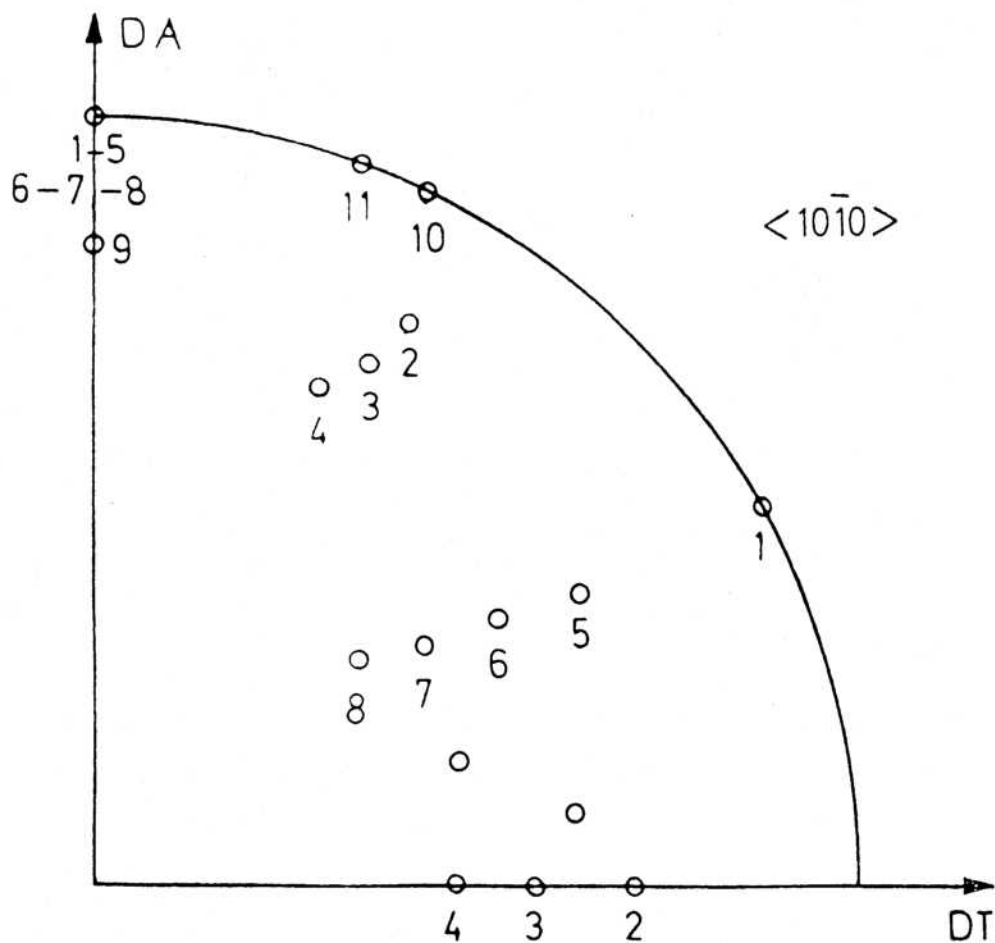


Fig. 3.- Descripción de la rotación $g(\psi, \theta, \phi)$ que permite pasar del referencial probeta al referencial grano.





(a)



(b)

Fig. 5(a-b).- Figuras de polos "discretas" (0002) y $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ correspondientes a una vaina combustible.

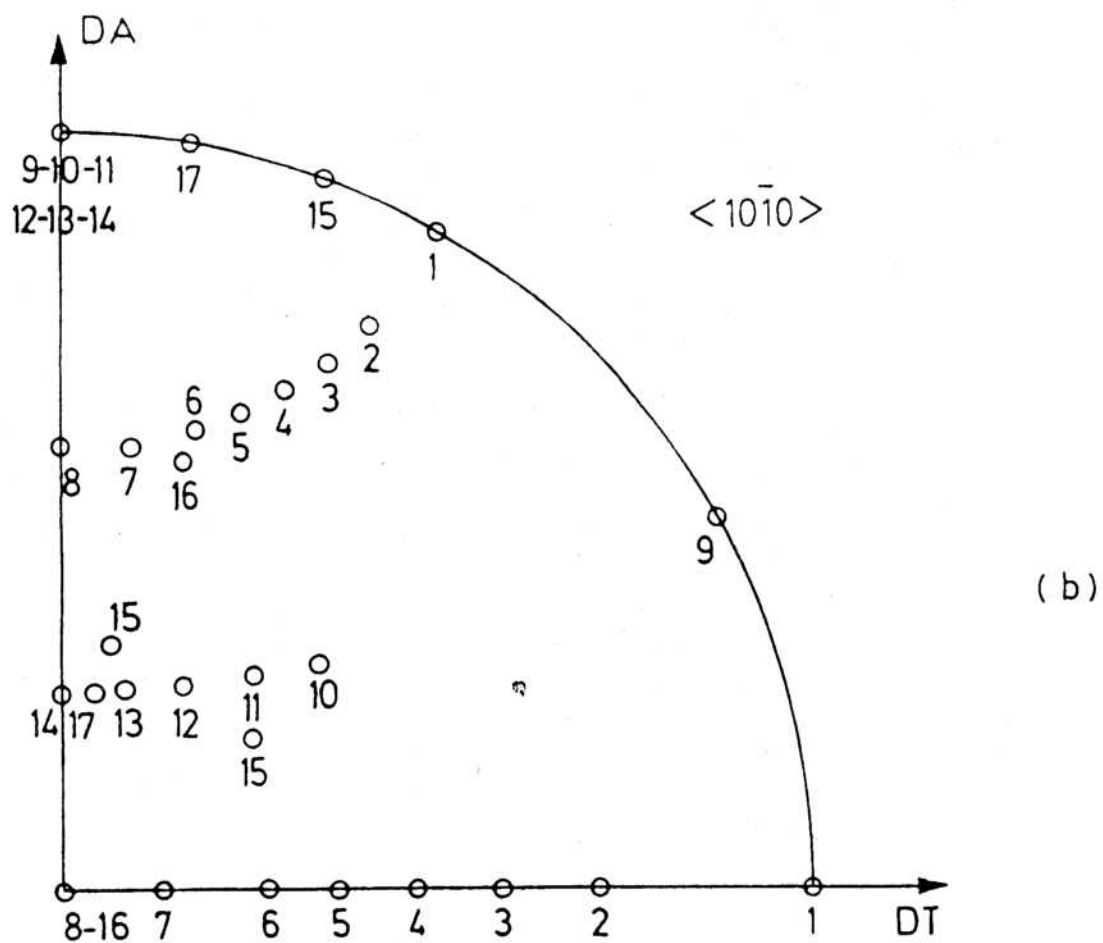
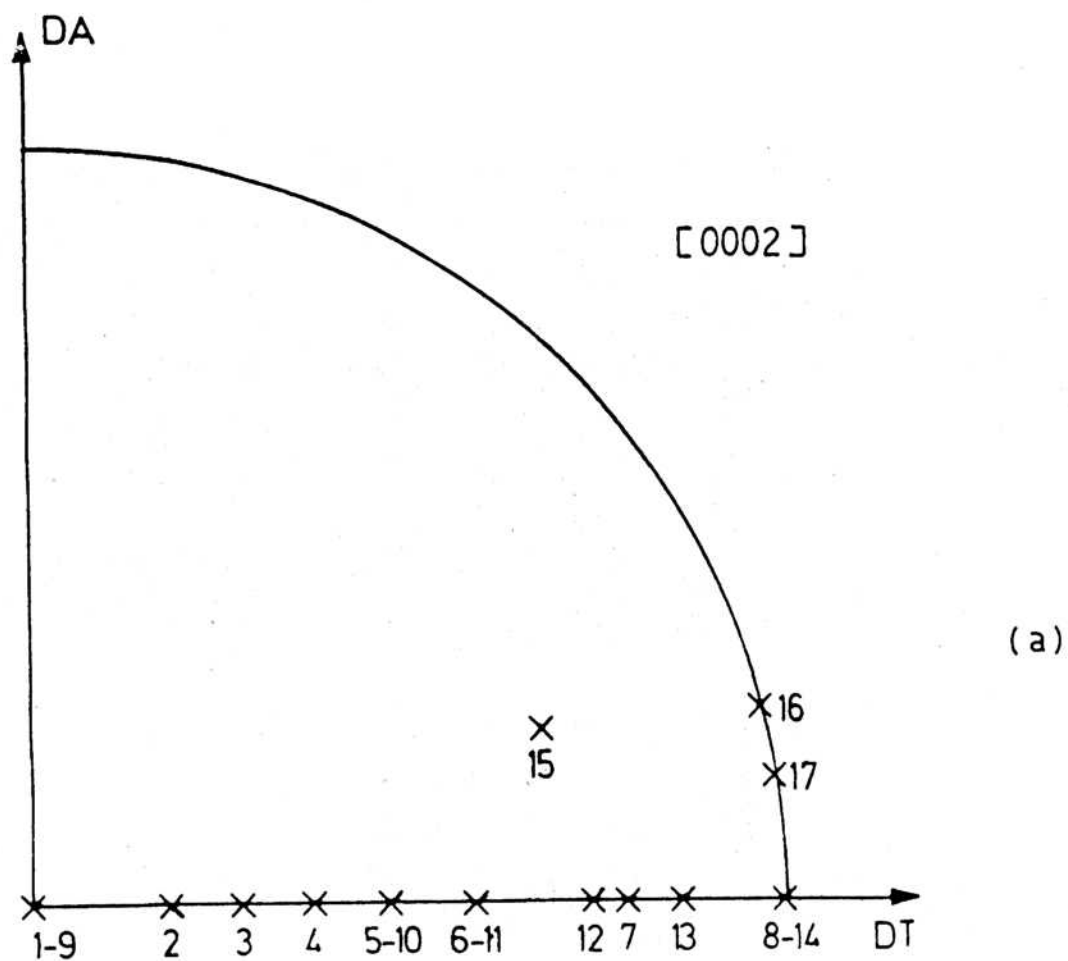


Fig. 6(a-b).- Figuras de polos "discretas" (0002) y $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ correspondientes a un tubo de presión.

TEXTURA A

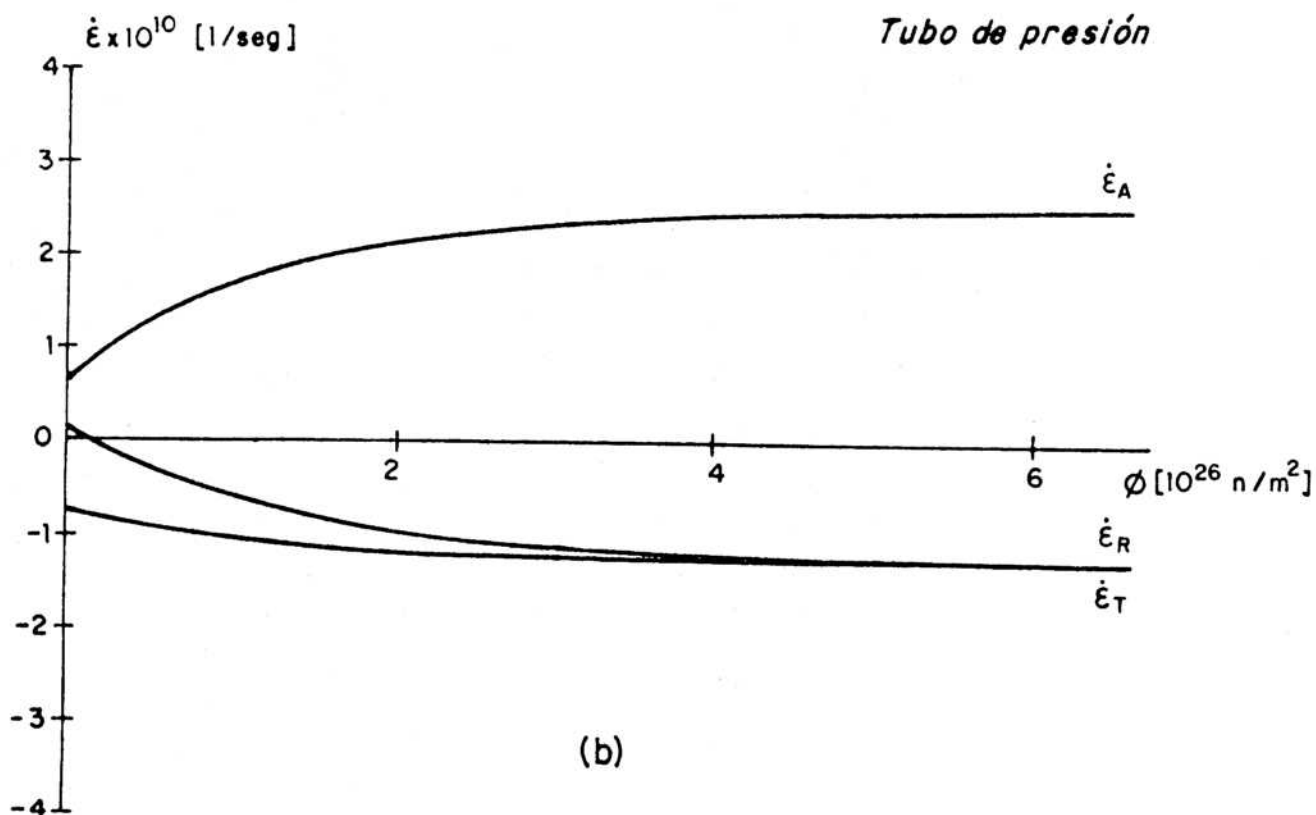
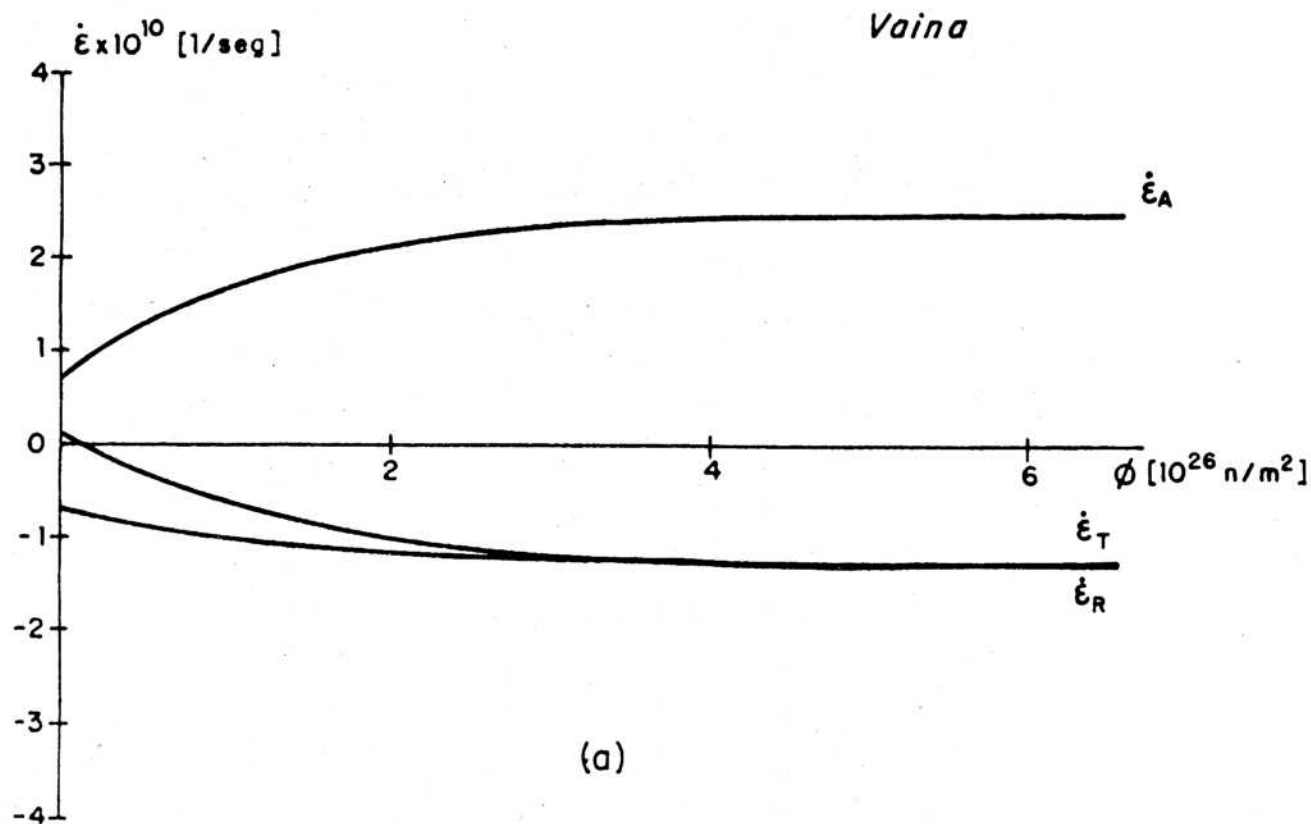


Fig. 7(a-b).- Velocidad de crecimiento en función de la dosis.

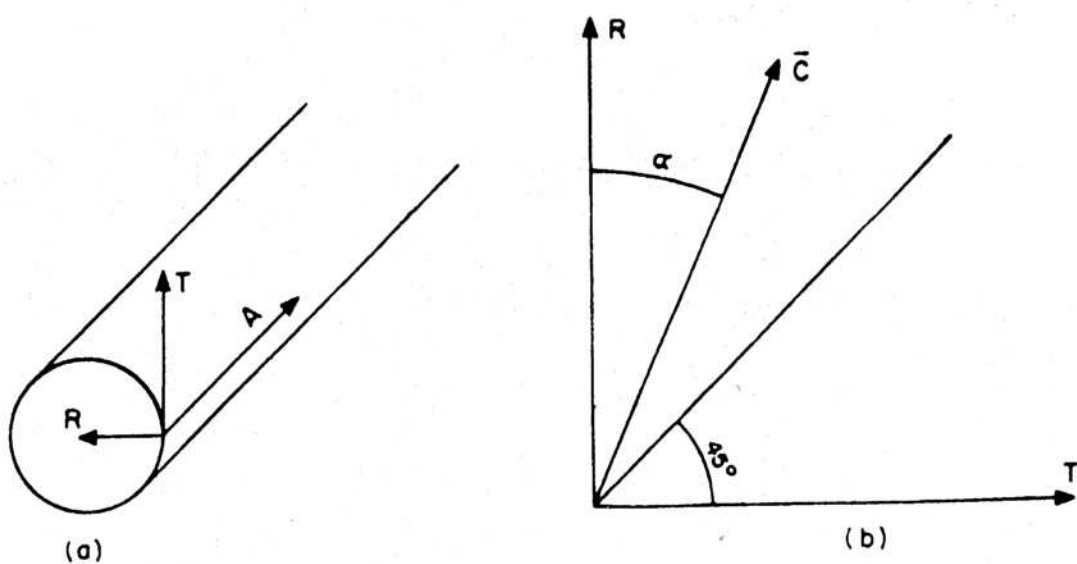


Fig. 8.- (a) Coordenadas fijas a la probeta. (b) Ubicación del eje $\bar{C}$ del grano en el referencial probeta.

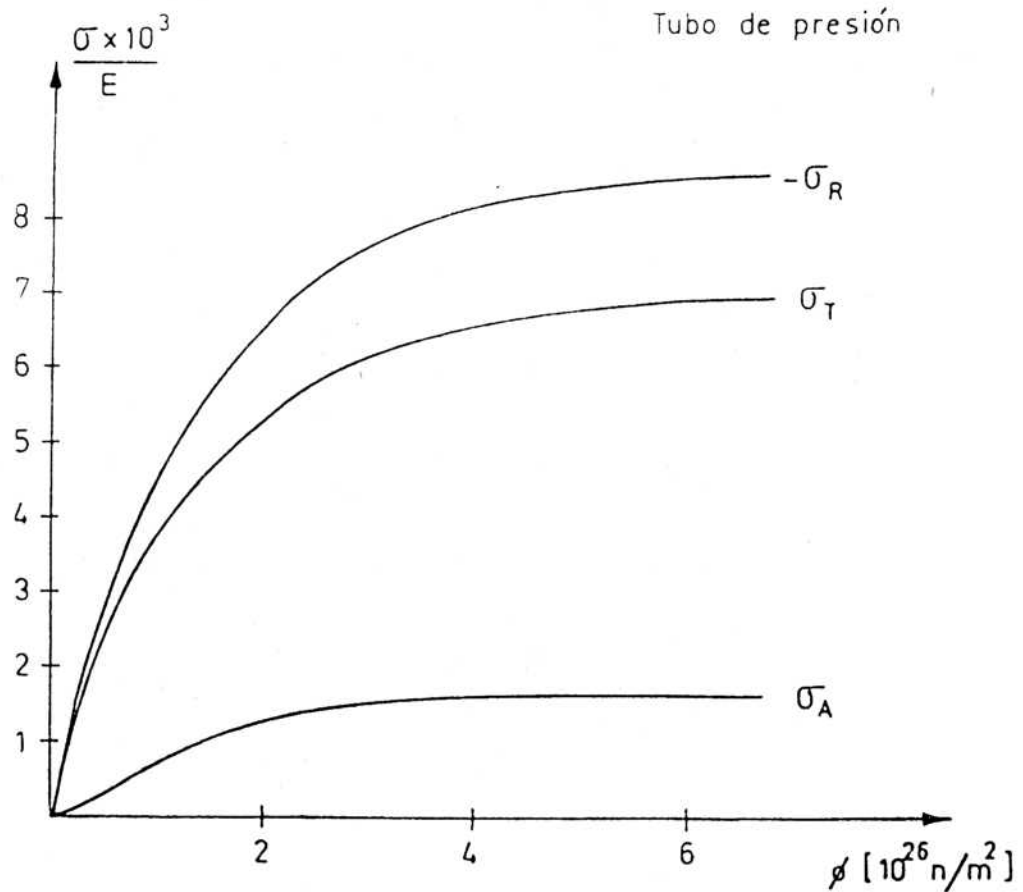
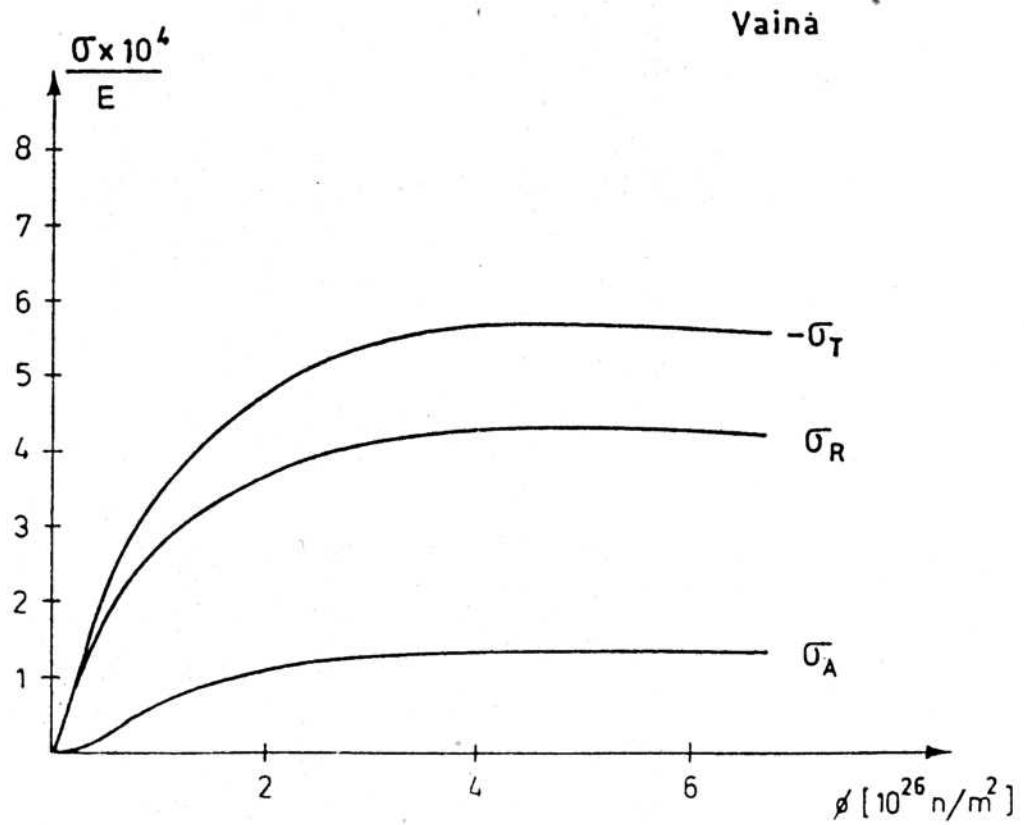


Fig. 9.- Estado de tensiones en función de la dosis, sobre los granos de mayor densidad. (a) Para una vaina combustible. (b) Para un tubo de presión.

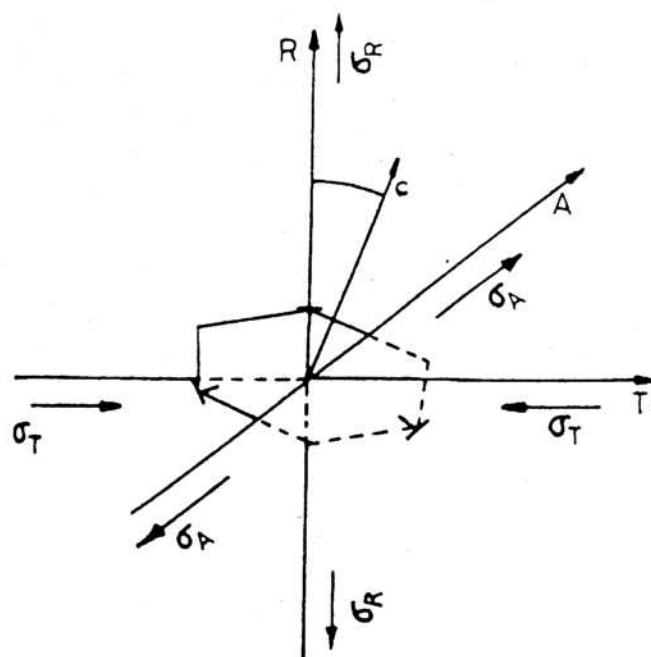
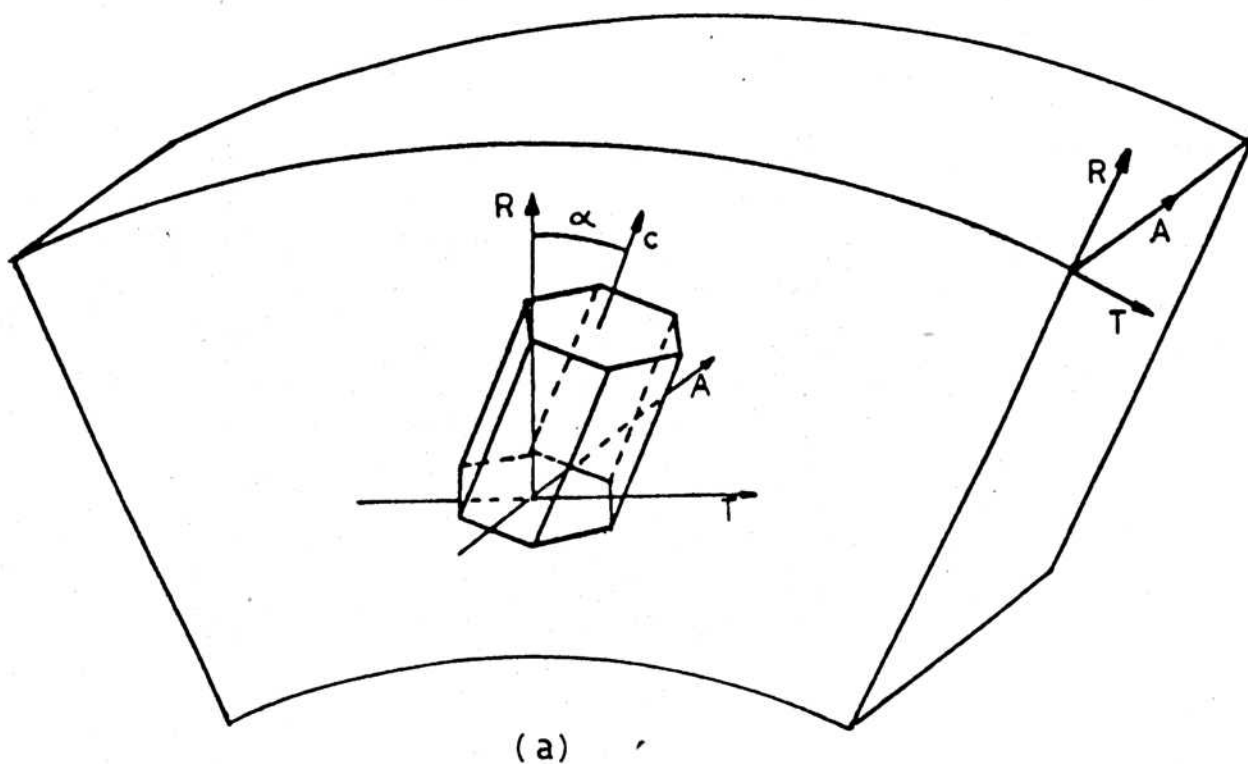


Fig. 10.- (a) Orientación de un monocristal HCP dentro de la probeta (tubo). (b) Plano basal de un monocristal en el referencial probeta y estado de tensiones sobre los granos de mayor densidad en una vaina combustible.

TEXTURA B

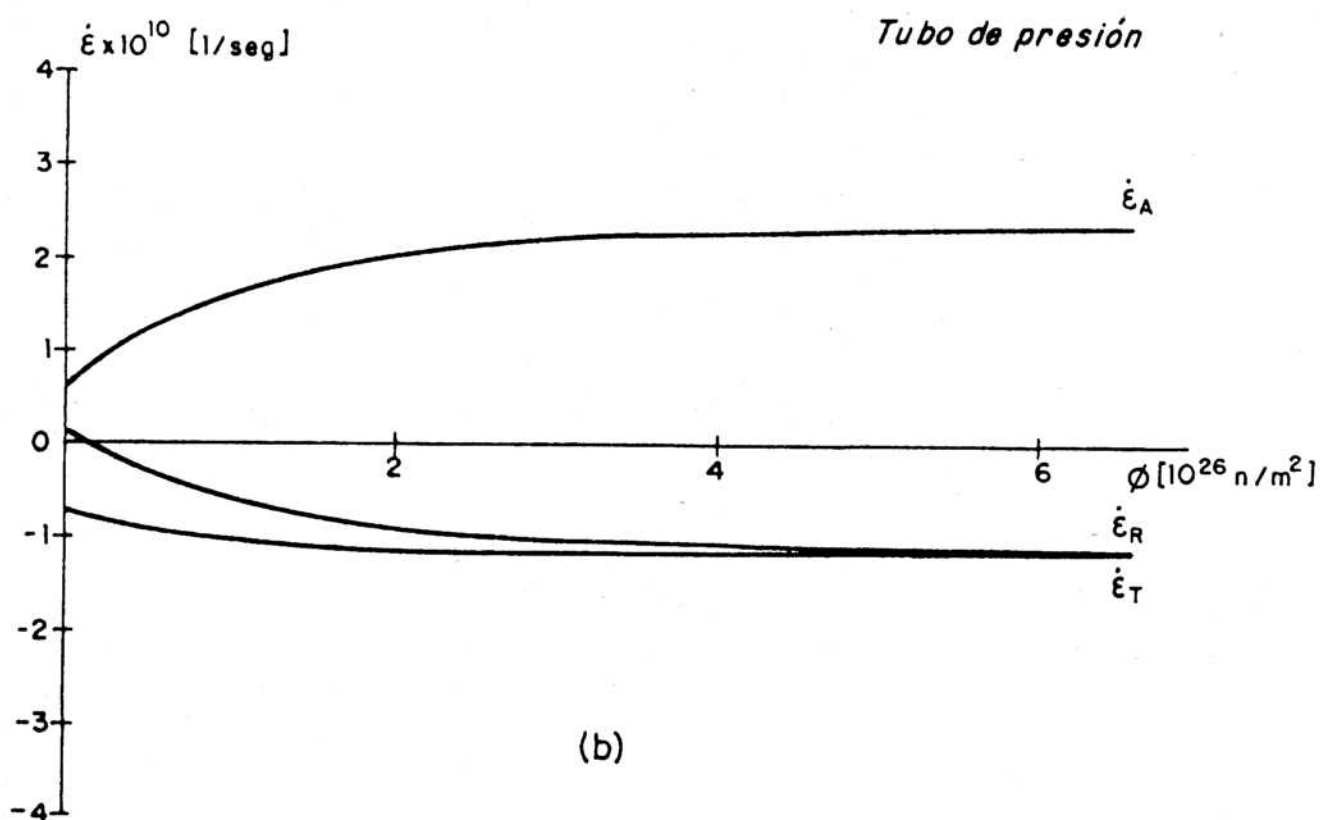
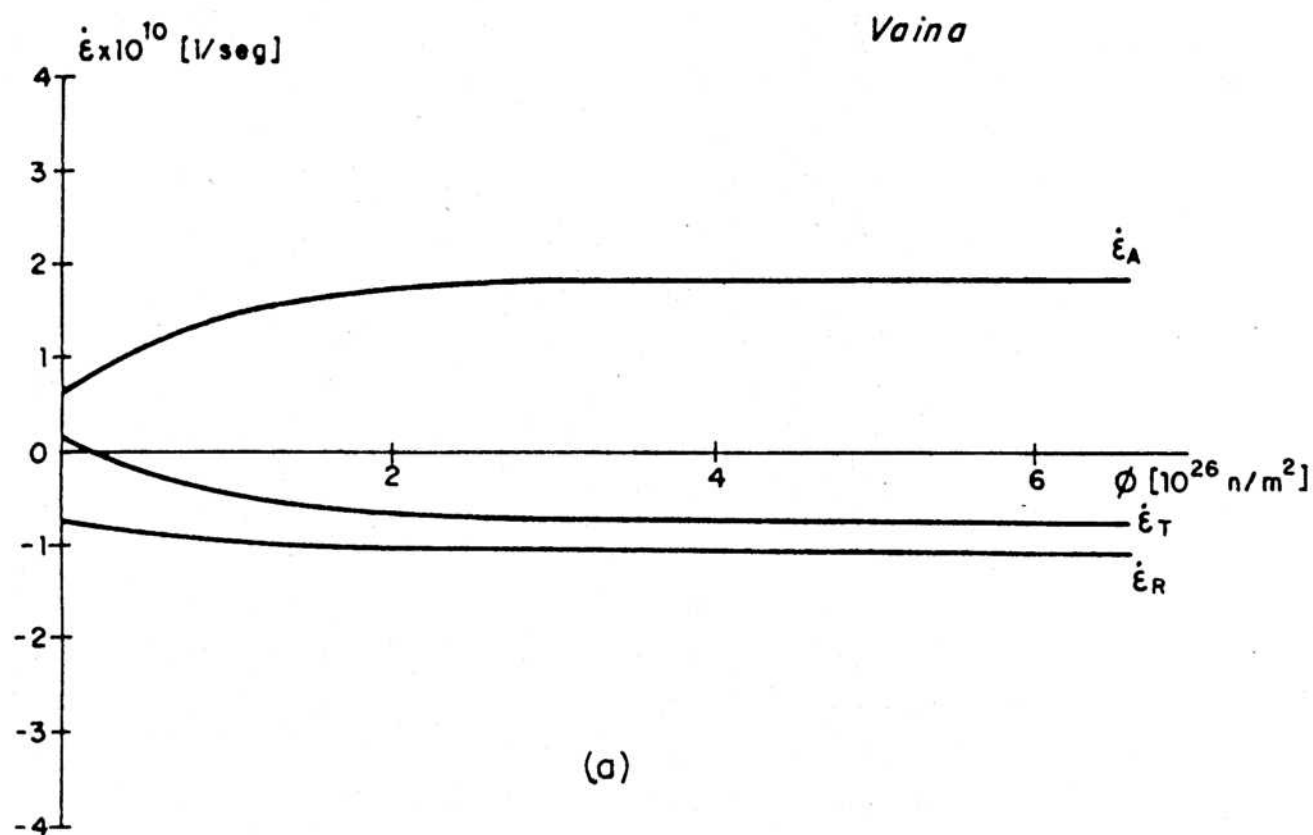


Fig. 11(a-b).- Velocidad de crecimiento en función de la dosis.

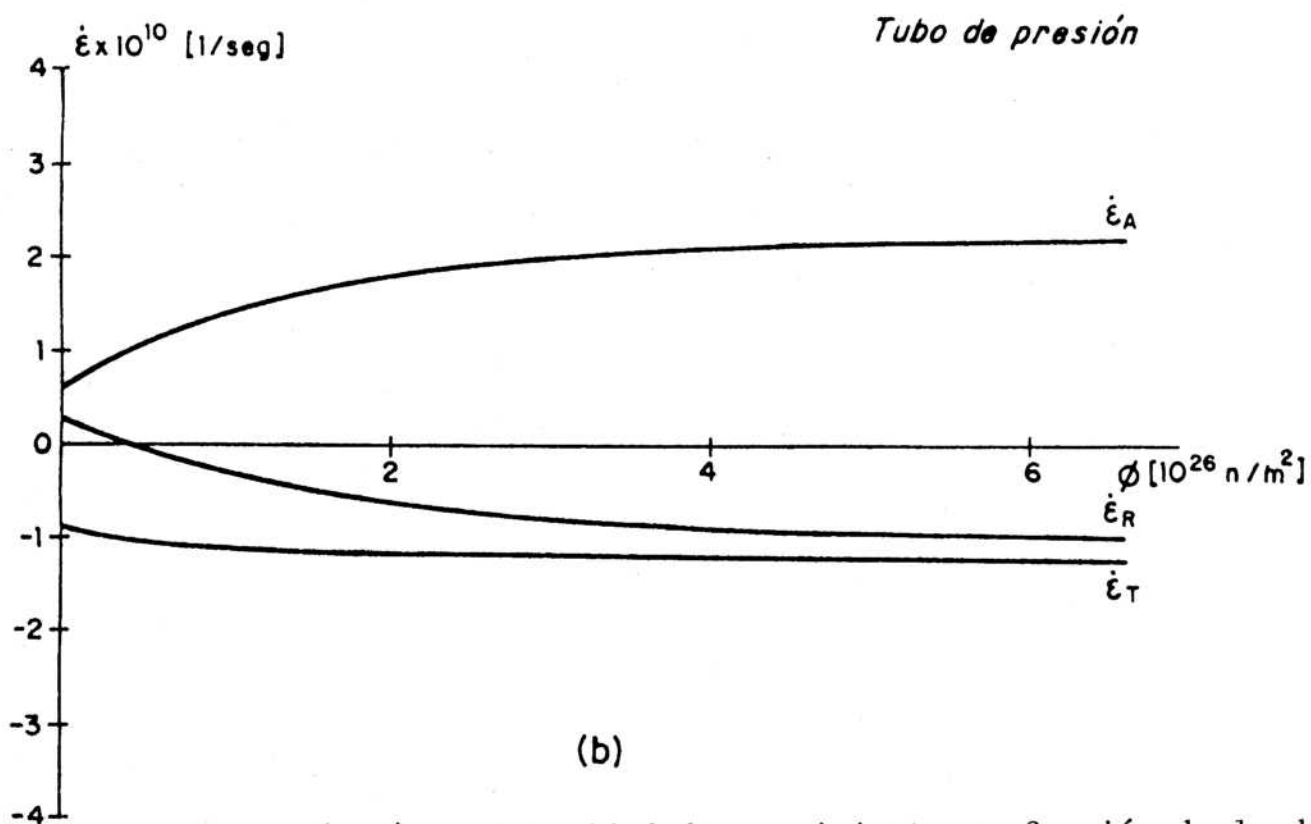
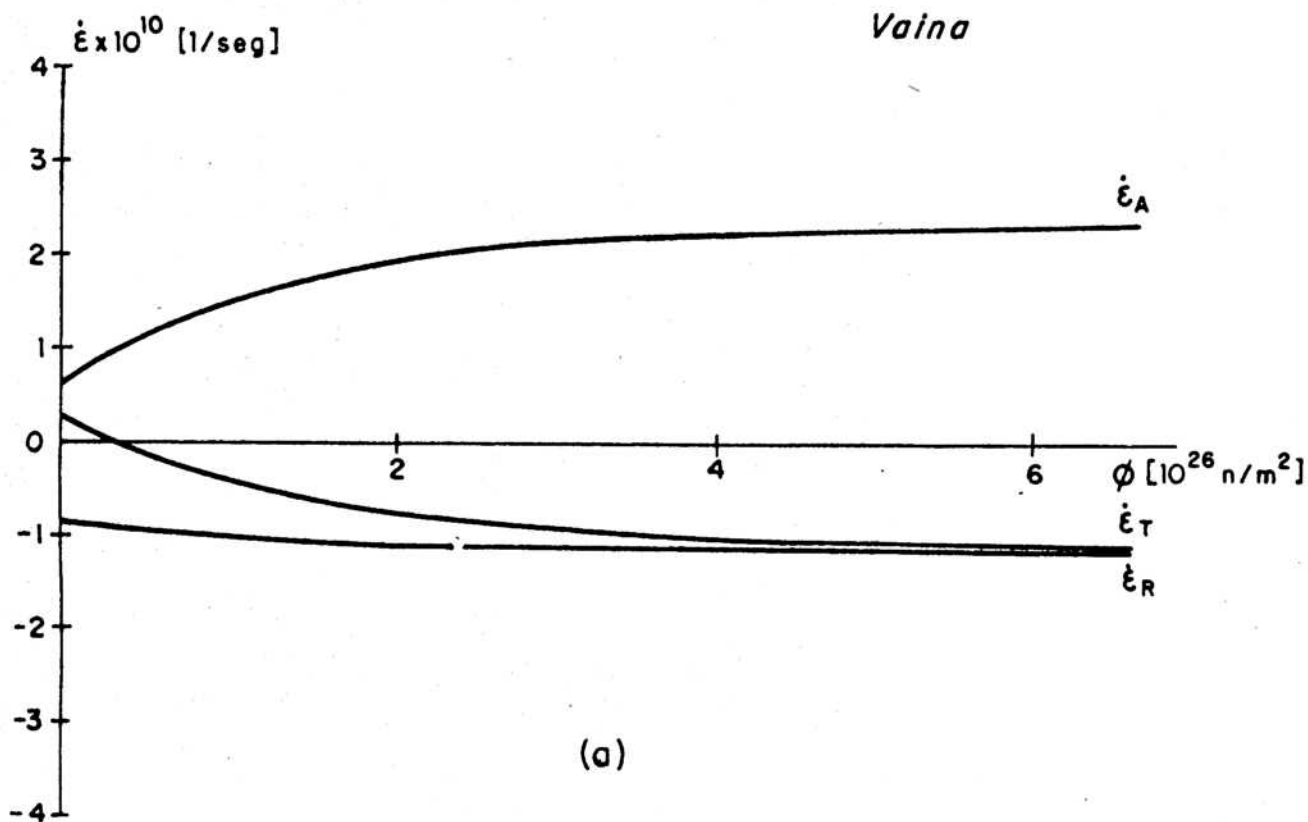


Fig. 12(a-b).- Velocidad de crecimiento en función de la dosis correspondiente a la textura de la Fig.2.