

**“ESTUDIO DE LA AMORFIZACIÓN INDUCIDA POR FISIÓN
DE LAS FASES $Al_{43}Mo_4U_6$ Y U_3Si_5 ”**

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

Alumno:	Rubén Omar González
Director:	Ana María Fortis
Co-director:	Marcela Mirandou



UNSAM
UNIVERSIDAD
NACIONAL DE
SAN MARTÍN

ÍNDICE

Resumen	4
Capítulo 1: Introducción	6
I.1. Reactores nucleares de investigación y producción	6
I.1.a. Situación Argentina	6
I.1.b. Reactores nucleares de investigación argentinos	6
I.1.c. Producción de radioisótopos en Argentina	7
I.2. Combustibles para reactores de investigación	8
I.2.a. Breve reseña histórica	8
I.2.b. Búsqueda de combustibles de mayores densidades	9
I.2.c. Estado actual de la conversión de los reactores en el mundo	11
I.3. Marco teórico en el que se encuadra esta tesina	12
I.4. Objetivos	13
Capítulo 2: Daño por radiación en la materia	14
II.1. Interacción de la radiación con la materia	14
II.2. Alcance de las partículas en un medio	16
II.3. Efecto de las radiaciones sobre los metales y aleaciones	16
II.4. Daño por radiación neutrónica	17
II.4.a. Camino libre medio para la interacción neutrón-núcleo	18
II.4.b. La fenomenología de la cascada de colisiones	19
II.4.c. El número de desplazamientos atómicos	23
II.4.d. Distribución espacial del daño neutrónico	25
II.4.e. Unidades de daño	27
Capítulo 3: Técnicas experimentales	29
III.1. Obtención y acondicionamiento de las aleaciones estudiadas	29
III.1.a. Materias primas utilizadas y elaboración de aleaciones	29
III.1.b. Tratamientos térmicos	30
III.1.c. Corte e inclusión	31
III.1.d. Pulidos y ataques	32
III.2. Equipos y metodologías para caracterización y mediciones	32
III.2.a. Microscopía óptica (MO)	32
III.2.b. Microscopía electrónica de barrido (SEM)	32
III.2.c. Difracción de rayos X (XRD)	33
III.2.c.1 Selección de films anticontaminación	33
III.2.c.2 Difracción de amorfos versus cristales	34
III.2.d. Microsonda electrónica (EPMA)	36
III.3. Preparación de muestras para irradiación	37
III.4. Planificación de las irradiaciones	37
III.4.a. Calculo del daño por irradiación de la Aleación U_3Si_5	37

III.4.b. Calculo del tiempo de irradiación de la Aleación $\text{Al}_{43}\text{Mo}_4\text{U}_6$	38
Capítulo 4: Resultados y discusión	40
IV.1. Compuesto U_3Si_5	40
IV.1.a. Proceso de fabricación y caracterización del compuesto U_3Si_5	40
IV.1.b. Caracterización del compuesto U_3Si_5 -AC-I post-irradiación	44
IV.2. Compuesto $\text{Al}_{43}\text{Mo}_4\text{U}_6$	47
IV.2.a. Proceso de fabricación, caract. e irradiación del compuesto $\text{Al}_{43}\text{Mo}_4\text{U}_6$	47
Conclusiones	57
Trabajos Futuros	57
Agradecimientos	58
Referencias bibliográficas	59

RESUMEN

La política de no proliferación del programa Reduced Enrichment for Research and Test Reactors (RERTR), promueve la conversión de los núcleos de los reactores de investigación y producción de radioisótopos, de modo que utilicen U de bajo enriquecimiento (ULE) en lugar de U de alto enriquecimiento (UAE). Para ello, los elementos combustibles actualmente en uso, en su mayoría utilizando U_3Si_2 , deberían ser fabricados con aleaciones de mayor densidad de U, como ser por ejemplo U(Mo), pero sin modificar el diseño actual, es decir, una aleación portadora de U dispersa en una matriz de Al.

Las aleaciones U-(7 % en peso a 10 % en peso) de Mo, en fase gamma metaestable, han mostrado un buen comportamiento bajo irradiación. Sin embargo, dentro de los elementos combustibles, se observaron importantes niveles de porosidad e hinchado luego de la irradiación en los distintos experimentos de calificación. Este fenómeno fue asociado a la zona de interacción (ZI), crecida por interdifusión durante la fabricación y/o la irradiación, entre las partículas de U(Mo) y el Al puro. En este sentido, la explicación propuesta fue que alguna de las fases que conforman esta ZI sufre de amorfización inducida por fisión por lo que disminuye su viscosidad y aumenta la movilidad de los gases de fisión dentro de la ZI.

Dentro del programa de calificación de estos combustibles, es de vital importancia el conocimiento y control de la ZI U(Mo)/Al. Diversos laboratorios del mundo se han abocado a esta problemática surgiendo como un resultado significativo, que el agregado de Si al Al de la matriz sería una posible solución para evitar la porosidad e hinchado antes mencionados.

De todos los resultados obtenidos hasta el momento, es de destacar que las características de la ZI dependen fuertemente del estado cristalográfico de la aleación U(Mo). Con respecto a las fases que la conforman se han identificado las estructuras cristalinas de los compuestos UAl_3 , UAl_4 , $Al_{20}Mo_2U$ y $Al_{43}Mo_4U_6$ en pares U(Mo)/Al puro y $U(Al,Si)_3$, U_3Si_5 , $Al_{20}Mo_2U$ y $Al_{43}Mo_4U_6$ en pares U(Mo)/Al(Si). Un trabajo de reciente publicación mostró que luego de la irradiación con iones de Kr de 500 keV de las fases $U(Al,Si)_3$, UAl_4 , $Al_{20}Mo_2U$ y $Al_{43}Mo_4U_6$, la fase $Al_{43}Mo_4U_6$ es la que amorfiza a menores dosis (< 1 dpa) revelando una gran cantidad de agujeros para dosis de 100 dpa lo cual sugiere que esta fase sería la responsable de la porosidad y el hinchado de las placas irradiadas.

De lo expuesto en los párrafos anteriores se desprende la importancia de estudiar el comportamiento bajo irradiación neutrónica de cada una de las fases identificadas en las ZI crecidas por interdifusión en pares U(Mo)/Al puro y U(Mo)/Al(Si).

Para este trabajo se irradiaron en el reactor RA1 polvos de los compuestos U_3Si_5 y $Al_{43}Mo_4U_6$ y se estudió la amorfización de los mismos mediante la técnica de Difracción de Rayos X. El primero de ellos fue elegido teniendo en cuenta que ha sido identificado en la mayoría de las ZI de los

pares de difusión estudiados por nuestro grupo de trabajo y que no existe en la bibliografía consultada, ningún tipo de información respecto de su respuesta a la radiación neutrónica o con iones pesados. El segundo fue elegido debido a la información de su mal comportamiento bajo la irradiación con los iones de Kr.

En este trabajo se pusieron a punto tanto las técnicas de obtención de las aleaciones, las de irradiación y las de caracterización de las mismas. A las dosis de irradiación a que fueron sometidas las muestras, no se observó amorfización en la primera de ellas y la segunda está aún en período de decaimiento.

CAPÍTULO I- INTRODUCCIÓN

1.1. Reactores de investigación y producción de radioisótopos. [1]

1.1.a. Situación Argentina. [2,3]

La Argentina ha desarrollado la ingeniería de reactores de investigación y de producción de radioisótopos y la de su ciclo de combustible asociado, construyendo y operando estos reactores, y exportando algunos de los mismos a Perú, Argelia, Egipto y Australia.

En los últimos veinticinco años, siete nuevos reactores de investigación entraron en operación en todo el mundo: RP-10 (1989, PERU, 10MW), NUR (1989, ARGELIA, 1 MW), HANARO (1995, Rep. COREA, 30 MW), ETRR-2 (1997, EGIPTO, 22 MW), FRM-2 (2004, ALEMANIA, 20 MW), OPAL (2006, AUSTRALIA, 20 MW). Cuatro de ellos fueron construidos y puestos en marcha por Argentina (CNEA/ INVAP) y de los tres más modernos del mundo, dos fueron construidos por CNEA/INVAP (Argentina) y el restante por SIEMENS (Alemania)

Por lo tanto, en el país se cuenta actualmente con la experiencia y capacidad para el diseño, construcción, puesta en marcha y operación segura y eficiente de reactores de investigación y de producción de radioisótopos y con la tecnología e instalaciones necesarias para el procesamiento y provisión de estos últimos para su uso en el mercado para las aplicaciones médicas y tecnológicas correspondientes.

1.1.b. Reactores nucleares de investigación argentinos. [3]

La República Argentina cuenta con seis reactores de investigación situados en distintas ciudades del país. A continuación se detallan las principales características y usos de cada uno de ellos:

◆ RA-1: Se encuentra en el Centro Atómico Constituyentes de la CNEA en la Provincia de Buenos Aires. Es el primer reactor nuclear argentino y primero en operar en Latinoamérica. En él se produjeron los primeros radioisótopos nacionales para uso medicinal e industrial. A partir de la experiencia y conocimientos adquiridos, se estuvo en condiciones de concretar otros emprendimientos de mayor envergadura como los Reactores nacionales RA-3 y RA-6 y los exportados a Perú, Argelia y Egipto. Asimismo, fue pionero en la formación de recursos humanos adecuados para encarar los proyectos de instalación de las dos primeras centrales nucleares argentinas de potencia.

Este reactor tiene una potencia autorizada de 40 kW térmicos siendo su flujo térmico máximo de 7×10^{11} n/cm² s. Es del tipo tanque abierto, con núcleo de uranio enriquecido al 20 % en ²³⁵U, reflejado por grafito y moderado y refrigerado por agua liviana desmineralizada. Los elementos combustibles son barras cilíndricas de UO₂ encapsulado en Al. La refrigeración se efectúa

mediante la circulación ascendente de agua desmineralizada forzada por bombas.

Actualmente se lo utiliza en ensayos experimentales e irradiación de muestras para mediciones de parámetros nucleares, calibración de equipos de radioprotección, actividades docentes y de divulgación e irradiaciones de muestras para determinar el daño por radiación en diversos materiales.

◆ RA-0 y RA-4: Se encuentran ubicados en la Universidad Nacional de Córdoba y de Rosario respectivamente. Ambas instalaciones fueron cedidas en calidad de préstamo por la CNEA para que esas instituciones los operen con la finalidad de formar profesionales en el campo nuclear y desarrollar una conciencia nacional en la aplicación de los usos pacíficos de la energía nuclear. Actualmente se destacan las investigaciones básicas y aplicaciones tanto en las materias de grado como en las de posgrado para maestrías y doctorados.

◆ RA-6: Esta instalación está ubicada en el Centro Atómico Bariloche de la CNEA en la Provincia de Río Negro. Al igual que el resto de los reactores argentinos es del tipo pileta y es utilizado por los científicos y por estudiantes para la investigación y el desarrollo en diversas aplicaciones de la rama nuclear. En el marco del proyecto de cambio de núcleo e incremento de potencia de este reactor, el día 20 de enero de 2009 fue puesto en estado crítico con su nueva configuración utilizando combustibles de siliciuro de uranio de bajo enriquecimiento (menos del 20% ^{235}U). Estas características convierten al RA-6 en el primer reactor argentino que funciona con este tipo de combustibles.

◆ RA-8: Es una facilidad ubicada en el Centro Tecnológico de Pilcaniyeu en la Provincia de Río Negro. Está diseñada para realizar experimentos relacionados con el diseño del reactor CAREM (primer reactor de potencia argentino). El diseño de un reactor avanzado requiere de muchas experiencias de tipo nuclear y termohidráulico. En el RA-8 se trata de reproducir una porción del núcleo del reactor en el que se ajustan los distintos parámetros que definirán la disposición, la composición y el rendimiento del combustible nuclear.

◆ RA-3: Se encuentra ubicado en el Centro Atómico Ezeiza de la CNEA en la Provincia de Buenos Aires. Las dos actividades principales son la experimentación y la producción de radioisótopos. Su flujo neutrónico es de 10^{14} n/cm² s y su potencia térmica es de 10 MW. El reactor está constituido por un recipiente de acero inoxidable dentro del cual se encuentra el núcleo. El combustible es U_3O_8 enriquecido al 20% en ^{235}U .

1.1.c. Producción de radioisótopos en Argentina. [3]

Desde hace más de 40 años la CNEA produce, por medio de sus reactores de investigación y aceleradores de partículas, un alto porcentaje de

los radioisótopos que son empleados en la República Argentina en áreas tan diversas como la medicina, la industria y la investigación. Uno de ellos, el ^{99}Tc , producto del decaimiento radiactivo del ^{99}Mo (producto de fisión del ^{235}U), es el de mayor empleo en medicina nuclear. La República Argentina es uno de los pocos países del mundo que cuenta con la tecnología para producir ^{99}Mo por fisión de uranio.

Desde 1985 la Comisión Nacional de Energía Atómica (CNEA) producía ^{99}Mo por fisión de UAE (^{235}U al 90%), contenido en blancos que son irradiados en el reactor RA-3, abasteciendo las necesidades del mercado local y generando a su vez saldos exportables. La preocupación mundial relativa al uso de UAE, ha conducido al corte definitivo del suministro de este material nuclear. La imposibilidad de abastecimiento externo de UAE, sumado al progresivo agotamiento del inventario existente, ha obligado a la CNEA al uso de ULE (^{235}U menor al 20%).

Así, durante 1999 se encaró con éxito, en la División Elementos Combustibles para Reactores de Investigación (ECRI) del Departamento Combustibles Nucleares del CAC, el desarrollo de blancos de aluminuro de uranio de bajo enriquecimiento, los que, a fin de ser calificados, fueron sometidos a ensayos de irradiación y posterior procesamiento, con resultados altamente satisfactorios. Estos blancos son adecuados para cubrir las necesidades de ^{99}Mo que demanda el mercado nacional y exportar a países como Brasil.

Con estos resultados la República Argentina se convirtió en el primer país, entre los productores de ^{99}Mo por fisión, en desarrollar su propio blanco con uranio de bajo enriquecimiento, cumpliendo con los compromisos internacionales en cuanto a reducción de enriquecimiento.

1.2. Combustibles para reactores de investigación.

1.2.a. Breve reseña histórica. [4]

El elemento principal del programa estadounidense “Átomos para la paz”, anunciado por su presidente Eisenhower en 1953, fue la provisión a diversos países de reactores de investigación y de los combustibles para su operación. Estos reactores de investigación utilizaban inicialmente combustibles fabricados con ULE ($^{235}\text{U} < 20\%$). Sin embargo, la demanda de potencias específicas y flujos neutrónicos más altos se incrementaron junto con los avances de la tecnología nuclear y surgió la necesidad de combustibles con cargas físi les más elevadas. Es así que los reactores de investigación de alta potencia comenzaron a utilizar combustibles fabricados con UAE. Esta situación generó gran preocupación por la posibilidad de utilizar el UAE para la fabricación de armas nucleares. En agosto de 1978, el Departamento de Energía de los Estados Unidos (DOE) creó el programa Reduced Enrichment for Research and Test Reactors (RERTR) cuyo principal objetivo es desarrollar

la tecnología necesaria para minimizar o eventualmente eliminar el uso de UAE en aplicaciones civiles en todo el mundo.

1.2.b. Búsqueda de combustibles de mayores densidades. [4,5,6,7]

La clave para que la conversión de los reactores fuera posible radicó en el desarrollo de combustibles con densidades de uranio más elevadas. Para 1978, los principales combustibles usados en los reactores de diseño occidental eran disperso tipo placa con núcleo combustible de UAl_x (1.7 gU/cm^3) y U_3O_8 (1.3 gU/cm^3) enriquecidos al 93 % en ^{235}U . Una placa de combustible disperso consta de un núcleo formado por una mezcla de polvos de la aleación combustible y de aluminio, esto último para lograr una buena transferencia térmica hacia el refrigerante. Esta mezcla se encierra entre dos placas de aleación de aluminio para impedir la salida de los fragmentos de fisión hacia el exterior del conjunto.

Los esfuerzos iniciales del RERTR se basaron en tratar de incrementar la carga de las partículas físis en los combustibles antes mencionados. Como resultado de este esfuerzo se lograron combustibles dispersos utilizando ULE con concentraciones de uranio de 2.3 gU/cm^3 para el $UAl_x\text{-Al}$, 3.2 gU/cm^3 para $U_3O_8\text{-Al}$ y 3.7 gU/cm^3 para $UZrH_x$. También estaban bajo desarrollo los combustibles base U_3Si , U_3Si_2 y los intermetálicos U_6Me (Me – metales de transición). Para el año 1982 los ensayos con U_3Si comenzaron a fallar y fueron retirados de los programas de Alemania, Francia y Estados Unidos. Por otro lado, los combustibles dispersos $U_3Si_2\text{-Al}$, con densidades de 4.8 gU/cm^3 fueron probados y demostraron ser muy estables bajo irradiación. Desde 1988, el U_3Si_2 ha sido usado para la conversión o en la puesta en marcha de más de 30 reactores de investigación.

Por otro lado, para la conversión de los reactores de investigación de muy alta potencia que habían comenzado a operar a mediados de 1990, se requerían combustibles con densidades en el rango de $8\text{-}10 \text{ gU/cm}^3$. Con este objetivo, en 1996 el programa RERTR vio resurgir su financiación para desarrollar combustibles que pudieran satisfacer estos requerimientos pero tratando de utilizar los métodos e infraestructuras ya existentes y conocidas. Esto marcó un límite de carga práctico superior de aproximadamente 55 % en volumen de la aleación de uranio, por lo cual debían utilizarse compuestos de uranio con densidades de al menos 14.5 gU/cm^3 . Dos tipos de combustibles que cumplían este criterio de densidad se encontraban disponibles: aleaciones de uranio metálico con bajo contenido de aleantes y los intermetálicos tipo U_6Me de alta densidad. Entre estos últimos, U_6Fe y U_6Mn habían demostrado un comportamiento pobre bajo irradiación lo cual llevaba a pensar que el resto de este tipo de intermetálicos se comportaría de la misma manera. Se puso entonces el énfasis en los combustibles de aleaciones metálicas de uranio. Agregando el requerimiento extra de que la fase γU (estable a alta temperatura y con buen comportamiento bajo irradiación) debía poder retenerse en forma metaestable a temperatura ambiente, sólo $U\text{-Nb-Zr}$ y $U\text{-Mo}$ quedaron como

posibles candidatas. Dada la poca información existente respecto del comportamiento bajo irradiación de estos combustibles metálicos en el rango de alto quemado y baja temperatura, requerido para los reactores de investigación, se planificaron una serie de ensayos de irradiación. Los dos puntos importantes que se deseaban estudiar eran la estabilidad de la fase γ U en función de la cantidad de aleante agregado al uranio y la resistencia de estas aleaciones a interactuar con el aluminio de la matriz. Este último aspecto interviene decisivamente en el comportamiento térmico de la placa combustible.

Un importante esfuerzo internacional dio origen a numerosos programas de irradiación. Estos ensayos mostraron que, para baja temperatura de irradiación y bajo quemado, las aleaciones de U(Mo) con al menos 6 % en peso de Mo, exhibían un comportamiento estable bajo irradiación. Este resultado resultó sumamente promisorio en el desarrollo de estos combustibles de alta densidad. Por otro lado, algunas aleaciones U-Nb-Zr mostraron un inminente mal comportamiento quedando así fuera de ensayos posteriores. Este mal comportamiento está caracterizado principalmente por un aumento en las dimensiones laterales de la placa combustible conocido con el nombre de hinchado.

A medida que los ensayos sobre las aleaciones de U(Mo) fueron avanzando, se pudo ver que cuando la temperatura de irradiación era más elevada, la ZI, formada por la interdifusión entre la aleación U(Mo) y el Al de la matriz, crecía rápidamente provocando una retroalimentación positiva de temperatura dentro del combustible. Es decir, a medida que se genera la ZI, se forma un compuesto de baja conductividad térmica, la extracción calórica decrece, la temperatura aumenta en el combustible y la reacción se ve aún más favorecida.

Para el año 2004 debió detenerse el experimento de irradiación más importante que se encontraba en curso (experimento francés FUTURE) debido a las fallas en el combustible ensayado. Se realizaron observaciones metalográficas en una zona (Figura I.1) en donde la placa mostró mayor hinchado y se vio que era debido a la formación de grandes poros interconectados dentro del combustible. Los poros pequeños, en donde se alojan los gases de fisión, son comunes en todo tipo de materiales combustibles pero en este caso se comprobó que muchos de ellos se acumulaban entre la ZI y el Al de la matriz generando poros de gran tamaño. Esta falla fue apareciendo en los distintos experimentos de irradiación independientemente de la geometría del elemento combustible.

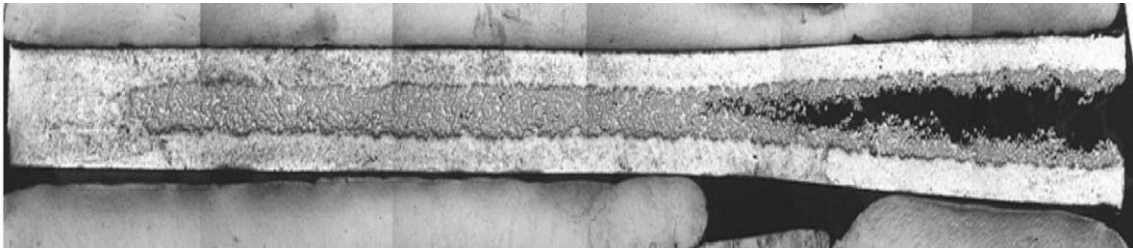


Figura I.1. Elemento combustible fallado en el experimento FUTURE

Hofman y col., en 2004, propusieron como explicación que los compuestos de uranio que se forman en la ZI sufren de amorfización inducida por fisión comportándose entonces como fluidos por lo cual hay una importante disminución de la viscosidad con el consecuente incremento de la movilidad de los gases de fisión dentro de la ZI. Según estos mismos autores, las teorías de aleaciones muestran que los elementos del grupo IV A en la tabla periódica (por ejemplo Si, Ge y Sn) deberían fortalecer las uniones en los compuestos U-Al. Surgen entonces numerosas líneas de investigación en el mundo cuyo objetivo principal es estudiar modificaciones en la ZI U(Mo)/Al debido a la presencia de estos aleantes.

Actualmente los ensayos de irradiación internacionales mostraron resultados positivos respecto de la disminución en el hinchado de la placas cuando se agrega Si a la matriz de Al pero aún los combustibles de U(Mo) no han sido calificados.

1.2.c. Estado actual de la conversión de los reactores en el mundo. [8]

El Programa de Conversión del Global Threat Reduction Initiative (GTRI), DOE, USA, desarrolla la tecnología necesaria para lograr la conversión a ULE de los reactores que actualmente utilizan UAE como combustible o blancos de irradiación.

El Programa de Conversión estuvo inicialmente enfocado en los reactores abastecidos por los Estados Unidos pero a fines de los años `90 se expandió y comenzó a colaborar con institutos rusos con el objetivo de convertir los reactores abastecidos por Rusia. El objetivo final de este Programa es la remoción del UAE de las distintas facilidades proveyendo una disposición segura. Para esto, el Programa de Conversión ha coordinado sus actividades con programas para la disposición segura como por ejemplo el Programa de Remoción del GTRI el cual coordina la repatriación de combustible de reactores de investigación, tanto fresco como gastado, de origen ruso o estadounidense.

El Programa de Conversión identifica 207 reactores de investigación en todo el mundo que utilizaron o utilizan UAE como combustible. De estos reactores, 129 han sido seleccionados e incluidos en una lista para ser convertidos dado que se considera que son factibles de utilizar combustible con ULE (ya sea con alguno ya calificado o en desarrollo) y porque existe un modo seguro de remover y disponer el combustible de UAE. Los 78 reactores restantes han sido excluidos del Programa de Conversión por alguno de los siguientes motivos: 1) son facilidades clasificadas como relacionadas con defensa, 2) se encuentran ubicados en países que no colaboran con los Estados Unidos en el Programa de Conversión, y 3) requieren de combustible de ULE muy especializado el cual resultaría demasiado costoso desarrollar, tanto en tiempo como en dinero.

Desde la existencia del Programa de Conversión, 48 de los 129 han sido convertidos a ULE o cerrados antes de su conversión. Actualmente, el objetivo del Programa es convertir los 81 reactores restantes antes del año 2018. De estos reactores, 53 pueden reconvertirse utilizando los combustibles ULE ya existentes. Sin embargo, los últimos 28 requieren del desarrollo y calificación del combustible avanzado de alta densidad mencionado en la sección anterior.

El estudio en forma individual del comportamiento bajo irradiación neutrónica de cada una de las fases generadas en la zona de interacción antes descritas, no solo aporta conocimientos básicos que están directamente relacionados con el desarrollo de un nuevo combustible de alta densidad para reactores de investigación requerido a nivel internacional, sino que también presentará resultados a una línea de investigación aplicada que no se está llevando a cabo en ningún laboratorio del mundo. En lo referente a nivel nacional, Argentina se encuentra en carrera con firmes intenciones de convertirse en uno de los países fabricantes y proveedores de este nuevo tipo de combustible.

1.3. Marco teórico en el que se encuadra esta tesina

La política de no proliferación del programa Reduced Enrichment for Research and Test Reactors (RERTR), promueve la conversión de los núcleos de los reactores de investigación y producción de radioisótopos de modo que utilicen U de bajo enriquecimiento en lugar de U de alto enriquecimiento. Para ello, los elementos combustibles dispersos tipo placa actualmente en uso, en su mayoría utilizando U_3Si_2 , deberían ser fabricados con aleaciones de mayor densidad de U, como ser U(Mo), pero sin modificar el diseño actual, es decir, aleación portadora de U dispersa en una matriz de Al.

Las aleaciones U-(7 % en peso a 10 % en peso) de Mo, en fase gamma metaestable, han mostrado un buen comportamiento bajo irradiación. Sin embargo, dentro de los elementos combustibles, se observaron importantes niveles de porosidad e hinchado luego de la irradiación en los distintos experimentos de calificación. Este fenómeno fue asociado a la zona de

interacción (ZI), crecida por interdifusión durante la fabricación y/o la irradiación, entre las partículas de U(Mo) y el Al puro. En este sentido, la explicación propuesta fue que alguna de las fases que conforman esta ZI sufre de amorfización inducida por fisión por lo que disminuye su viscosidad y aumenta la movilidad de los gases de fisión dentro de la ZI.

Dentro del programa de calificación, es de vital importancia el conocimiento y control de la ZI U(Mo)/Al. Diversos laboratorios del mundo se han abocado a esta problemática surgiendo, como un resultado significativo, que el agregado de Si al Al de la matriz sería una posible solución para evitar la porosidad e hinchado antes mencionados.

De todos los resultados obtenidos hasta el momento, es de destacar que las características de la ZI dependen fuertemente del estado cristalográfico de la aleación U(Mo). Con respecto a las fases que la conforman se han identificado las estructuras cristalinas de los compuestos UAl_3 , UAl_4 , $Al_{20}Mo_2U$ y $Al_{43}Mo_4U_6$ en pares U(Mo)/Al puro y $U(Al,Si)_3$, U_3Si_5 , USi_2 , USi_{2-x} , $Al_{20}Mo_2U$ y $Al_{43}Mo_4U_6$ en pares U(Mo)/Al(Si). Un trabajo de reciente publicación mostró que luego de la irradiación con iones de Kr de 500 keV de las fases $U(Al,Si)_3$, UAl_4 , $Al_{20}Mo_2U$ y $Al_{43}Mo_4U_6$, la fase $Al_{43}Mo_4U_6$ es la que amorfiza a menores dosis (< 1 dpa) revelando una gran cantidad de agujeros para dosis de 100 dpa, lo cual sugiere que esta fase sería la responsable de la porosidad y el hinchado de las placas irradiadas.

1.4. Objetivos

De lo expuesto anteriormente se desprende la importancia de estudiar el comportamiento bajo irradiación neutrónica de cada una de las fases identificadas en las ZI crecidas por interdifusión en pares U(Mo)/Al puro y U(Mo)/Al(Si).

Los compuestos seleccionados para comenzar con esta línea de investigación son U_3Si_5 y $Al_{43}Mo_4U_6$. El primero de ellos fue elegido teniendo en cuenta que ha sido identificado en la mayoría de las ZI de los pares de difusión estudiados por nuestro grupo de trabajo y que no existe, en la bibliografía consultada, ningún tipo de información respecto de su respuesta a la irradiación neutrónica o con iones pesados. El segundo fue elegido debido a la información de su mal comportamiento bajo la irradiación con los iones de Kr [9].

En este trabajo se presentan los resultados del proceso de fabricación para obtener el compuesto $Al_{43}Mo_4U_6$, su caracterización microestructural y el estado de avance de su irradiación junto con la caracterización microestructural y los primeros resultados del efecto de la radiación sobre una muestra parcialmente formada por el compuesto U_3Si_5 estudiado a través de la técnica de difracción de rayos X. Las irradiaciones se realizaron en el reactor RA1. Previo a la irradiación ambas muestras fueron caracterizadas mediante las

técnicas de microscopía óptica y electrónica de barrido, microanálisis dispersivo en longitud de onda y en energía y difracción de rayos X.

CAPÍTULO II. DAÑO POR RADIACIÓN EN LA MATERIA

El daño por la radiación [10] en la materia puede subdividirse en tres tipos:

Excitación electrónica: Es la principal fuente de pérdida de energía de las partículas cargadas que atraviesan la materia.

El principal efecto tecnológico, aparte de la producción de calor es la ionización de átomos y moléculas o la producción de estados excitados que causan cambios químicos en los materiales.

La ionización afecta principalmente a los materiales aislantes. En metales y aleaciones la ionización desaparece inmediatamente por su alta conductividad eléctrica.

Transmutación: Es principalmente el resultado de una de las interacciones posibles de los neutrones con la materia; en este caso el neutrón es absorbido por el núcleo atómico produciéndose una inestabilidad que lleva a la emisión de alguna radiación y a la transformación de ese átomo en otra especie. Incluso puede llevar a la división del núcleo, en el caso de núcleos grandes, con la consecuente aparición de dos o más especies diferentes. Tiene consecuencias en ciertos materiales porque cambia la composición dando lugar a efectos muchas veces no deseados.

Desplazamientos atómicos: Un desplazamiento significa que un átomo ha sido sacado de su sitio en los sólidos y se mueve hasta quedar en reposo fuera de su sitio original.

El ritmo de desplazamientos atómicos producidos en las redes cristalinas por el impacto de partículas (electrones, protones, iones pesados, neutrones e, indirectamente los fotones de alta energía), y la distribución de defectos así generados, es la principal causa de cambios muy importantes en las propiedades de los materiales.

Como se podrá advertir, el campo del daño por radiación es amplísimo y son numerosas tanto las aplicaciones prácticas como numerosos los efectos adversos que deben considerarse cuando se trabaja en ambientes radiactivos.

II.1. Interacción de la radiación con la materia

La presencia en el medio ambiente de partículas atómicas o subatómicas y ondas electromagnéticas de distinta longitud de onda producto de la desintegración radiactiva se la conoce con el nombre general de *radiación*. También abarca a los rayos X aunque no sean producto de procesos nucleares como los descritos antes. Todos los materiales están sometidos a algún tipo de radiación, aunque muchas veces las dosis de las mismas son tan pequeñas que no causan efectos visibles. Los materiales orgánicos y los

semiconductores son en general más sensibles a las radiaciones que los metales y los cerámicos.

El uso de la energía nuclear ha intensificado la búsqueda de materiales que puedan conservar (o mejorar) satisfactoriamente sus propiedades en un ambiente de radiación. Cuando un material es sometido a radiación se crean defectos e imperfecciones en su estructura. El arreglo espacial de defectos y su naturaleza después de haber sido irradiado es la base de lo que constituye el llamado “daño por radiación”.

En esta tesis, se describirán brevemente dos casos: la acción en las estructuras cristalinas de las partículas cargadas (iones y, en particular los fragmentos de fisión del U) y los neutrones como partículas sin carga que provocan fenómenos de absorción y dispersión en la materia.

Iones pesados

El efecto de estas partículas cargadas en la materia es la ionización de los átomos de la misma y los desplazamientos producidos por las colisiones átomo-átomo. En el primer caso, ocurre una interacción inelástica entre el ion incidente y el átomo blanco; en el segundo, una colisión elástica, moviendo el centro de masa del átomo chocado.

Se pueden definir dos energías umbrales E_i y E_s ; si la partícula incidente tiene energía por debajo de ambas, no cederá energía a los electrones: ocurre una colisión átomo-átomo; o sea, la energía no se pierde en los electrones puesto que no se supera la energía de ionización I de los electrones del blanco. I cubre un rango de aproximadamente 5 -10 eV para la mayoría de los átomos.

$$E_i = I M / 4 m_e \quad M = \text{masa del ión incidente}$$

Desde el punto de vista del daño por radiación en materiales estructurales de reactores, es el desplazamiento atómico el fenómeno de mayor interés. Las colisiones elásticas que pueden producirse al interaccionar las partículas cargadas en la materia adquieren mayor relevancia que los procesos de excitación e ionización. En el Cap.III se analizará el caso de los fragmentos de fisión como la mayor contribución al desplazamiento atómico en nuestro caso.

Neutrones

El daño producido por neutrones es, de lejos, el más importante desde el punto de vista del cambio en las propiedades de los materiales en un reactor nuclear.

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

ser desplazado por este proceso de dispersión elástica, específicamente por neutrones rápidos, lo que da como resultado la mayor parte de los cambios físicos y químicos de los materiales irradiados. El diámetro de colisión neutrón-blanco es menor que para los iones: un neutrón puede aproximarse tanto como 10^{-13} cm al núcleo y ser insensible al potencial de interacción.

Los neutrones térmicos, en el caso de los materiales combustibles provocan la fisión y la producción de fragmentos cuya interacción en colisiones elásticas e inelásticas producen alteraciones notables en las redes cristalinas.

II.2. Alcance de las partículas en un medio

El alcance se puede definir como la distancia que viaja cualquier tipo de radiación dentro de un material. Puede estimarse en principio analizando el ritmo de pérdida de energía, y muchas veces es sencillo medirlo experimentalmente. El interés en esta magnitud radica en el hecho de que da una idea de la distribución que pueda tener el daño producido por estas radiaciones en los materiales.

Hay partículas que son gradualmente frenadas sin sufrir deflexiones grandes en su trayecto; entonces un haz de velocidad única alcanza una distancia bien definida desde la superficie.

En el caso de las partículas cargadas pesadas se producen muchas colisiones menores y el efecto total es similar al de un cuerpo que se mueve en un medio viscoso.

Los neutrones, que pierden fundamentalmente su energía en choques elásticos con los núcleos de materiales estructurales e inelásticos en el caso de combustibles, tienen un alcance considerable dentro de la materia.

II.3. Efecto de las radiaciones sobre los metales y aleaciones

Los efectos de la radiación en los metales son de gran interés tecnológico debido al amplio uso de éstos en los reactores nucleares. Desde las vainas que contienen al material combustible, pasando por tubos de refrigeración, tubos de calandria, recipiente de presión...etc., todos estos elementos están constituidos por aleaciones metálicas que son elegidas y conformadas con el objetivo de cumplir con las necesidades estructurales: resistencia mecánica, baja absorción de neutrones, buenas propiedades a la corrosión, ductilidad, estabilidad microscópica, etc.

Es importante señalar que la “vida” de un reactor nuclear depende, fundamentalmente, de la integridad de las propiedades de los elementos estructurales metálicos.

El resultado del bombardeo neutrónico sobre los metales es la producción de gran cantidad de desplazamientos, lo que altera significativamente sus

propiedades eléctricas y mecánicas.

Los efectos de otras radiaciones en los metales son también importantes aunque en este estudio está centrado en el daño producido por los neutrones. Es de notar que los efectos de las radiaciones ionizantes no son perdurables en los metales dada su gran conductividad eléctrica.

La radiación neutrónica modifica sustancialmente la tensión de fluencia, la ductilidad, la resistividad eléctrica, la temperatura de transición dúctil-frágil e induce transformaciones de fase, precipitación y disolución de precipitados, como así también la amorfización, cambios dimensionales y de densidad y la variación de velocidad del creep.

II.4. Daño por radiación neutrónica

El efecto de un bombardeo neutrónico sobre un material puede describirse teniendo en cuenta las características siguientes: los neutrones no tienen carga eléctrica, no necesitan sobrepasar fuerzas coulombianas repulsivas y pueden actuar directamente con los núcleos. La interacción depende de la energía del neutrón.

Un material liviano puede hacer que el neutrón amortigüe su energía a través de sucesivos choques elásticos. Si el neutrón posee suficiente energía, puede colisionar con un núcleo atómico en un sólido, arrancarlo de su posición y crear así un defecto.

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

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

b) El neutrón es capturado por el núcleo produciendo un núcleo compuesto excitado con masa $M_2 + 1$ que es inestable y que decae en unos 10^{-16} s con la emisión de neutrones, protones y radiación γ y o productos de fisión. El "rebote" conectado con la emisión de los productos del decaimiento puede producir un átomo desplazado como en el caso anterior. La captura puede ocurrir tanto para los neutrones de muy baja energía (0.01 eV) como para los neutrones rápidos con energías por arriba de 2 MeV. Una parte considerable de la interacción de los neutrones de baja energía (térmicos o lentos) con las redes es de tipo inelástico.

II.4.a. Camino libre medio para la interacción neutrón-núcleo

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

Si un haz de neutrones es de densidad n [cm^{-3}] y velocidad v [cm s^{-1}], el número de neutrones que llegan por segundo en un área de 1 cm^2 de blanco es nv , o sea, el flujo neutrónico Φ . Entonces $\Sigma nv = \Sigma \Phi$ es igual al número de interacciones entre neutrones y núcleos por cm^3 de material irradiado y por segundo, lo que habitualmente se denomina ritmo de interacción. Este ritmo suele expresarse en función del camino libre medio λ , que denota la distancia total promedio que viaja un neutrón en un material antes de chocar.

Puesto que v es la distancia que viaja un neutrón en la unidad de tiempo, v/λ es el número promedio de interacciones por segundo. Para un haz de densidad n :

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

O sea,

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

Entonces el camino libre medio para producir desplazamientos podrá expresarse:

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

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

Tabla III- 1

	E_n [MeV]	T_p [keV]	σ_d [barn]	n_0 [$\times 10^{23} \text{ cm}^{-3}$]	λ_d [cm]
Mg	1	165	3.2	0.42	7.4
	0.2	8.2	4.7		5
Zn	1	64	3.4	0.64	4.6
	0.2	3.2	5.7		2.7
Cu	1	63	3.2	0.83	3.75
	0.2	3.1	5.5		2.2
Zr	1	43	2.46	0.43	9.4

Tabla II-1. Valores de camino libre medio entre desplazamientos para algunos metales

Como se observa de los valores de esta tabla, la distancia entre choques es del orden de centímetros, lo que indica que para una muestra de dimensiones mayores el evento es poco probable siendo muy posible que el neutrón atraviese la muestra sin haber interaccionado. Sin embargo, en un

medio como el núcleo de un reactor, con flujos neutrónicos del orden de 10^{12} - 10^{13} n/cm² s o mayores, los eventos se producen en forma homogénea en todo el volumen del material irradiado.

II.4.b. La fenomenología de la cascada de colisiones

La formación del primer átomo chocado y desplazado (PKA, primary knock-on atom) es equivalente a la formación de un par intersticial-vacancia y constituye la estructura básica del daño. Si la energía cinética del PKA es del orden de las decenas de eV o más, puede seguir moviéndose por el cristal produciendo colisiones con otros átomos para formar átomos desplazados secundarios, terciarios, etc., Figura II-1.

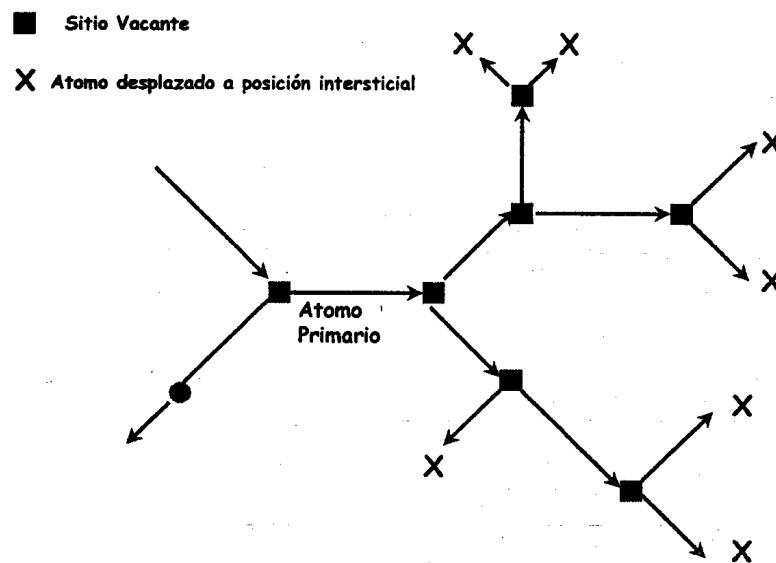


Figura II-1: El comienzo de la cascada de colisiones

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

En la primera parte de la cascada de colisiones, cuando la energía del PKA es todavía alta, las colisiones individuales están relativamente lejos una de otra y el movimiento se puede expresar a través de colisiones binarias individuales. A medida que la energía de los átomos decrece la distancia entre colisiones también baja hasta que se hace comparable a las distancias interatómicas. Se vio anteriormente que el camino libre medio para la colisión neutrón-átomo es del orden de los centímetros, lo que da idea de la distribución de los puntos donde comienza a producirse el fenómeno definido como cascada. Dentro de la misma cascada, ya producido el primer átomo desplazado o átomo primario, habrá una frecuencia de eventos de colisiones átomo-átomo, para el que se puede definir también un camino libre medio entre colisiones.

Este camino libre medio dependerá, fundamentalmente de la energía y del potencial de interacción. Según el tipo de interacción que se considere, se realizan cálculos que no solo permiten estimar el número de átomos desplazados, sino también su distribución espacial. Además se obtiene camino libre medio entre colisiones de desplazamientos en función de la energía incidente. A medida que la energía del átomo primario va decayendo tras sucesivas colisiones binarias, estas colisiones se producen a intervalos espaciales cada vez más cortos hasta que la distancia entre dos colisiones se hace comparable con las distancias interatómicas. Luego comienza una interacción colectiva. La energía límite del átomo para la cual el camino libre medio se hace igual a la distancia interatómica se la conoce como energía límite T_L .

Una considerable cantidad de energía (eV/átomo) se concentra en la parte final del camino del PKA en un intervalo de tiempo muy corto ($\approx 10^{-13}$ - 10^{-12} s) y en un volumen muy pequeño (10^4 átomos).

Esto lleva a un desarreglo colectivo en esa región y a la formación al azar e irregular de aglomerados de vacancias rodeados por una capa de intersticiales que escapan de la región perturbada (llamada zona desnuda según Brinkman [11]), Figura II-2. Si la energía de la partícula incidente es muy grande, la cascada exhibe la tendencia a separarse en subcascadas.

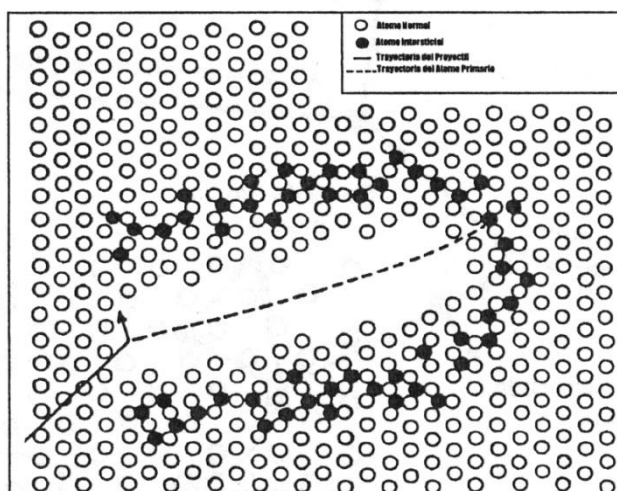


Figura II-2: Esquema de la zona desnuda según Brinkman

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.

1) 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 de desplazamiento (displacement

spike). La distribución de energía entre los átomos durante las colisiones es afectada por la regularidad de su ordenamiento en el cristal.

Esto puede producirse de dos maneras:

a) Durante las colisiones los movimientos se focalizan (ver Figura II-3) y la energía o masa atómica es transferida a grandes distancias (≈ 100 distancias atómicas) con pocas pérdidas. Esta focalización ocurre a bajas energías (≈ 100 eV).

b) El segundo proceso es la canalización, durante la cual el átomo es transportado a través de túneles en la red, bordeados por planos densamente ocupados. La longitud de los trayectos canalizados es relativamente larga (la mayoría de la energía se pierde en colisiones inelásticas con los electrones). Estos conceptos fueron modificaciones al modelo de Brinkman, realizado por Seeger [12].

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

2) 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. T_d es gradualmente dispersada a través de colisiones con los electrones. Debido a la transferencia relativamente lenta de energía entre los componentes de los subsistemas de iones y electrones (la cual en primera aproximación es proporcional a la relación de masas entre el electrón y el ión), o sea la termalización, requiere un tiempo mayor de 10^{-11} s, que es un tiempo en el que ocurren varias vibraciones atómicas.

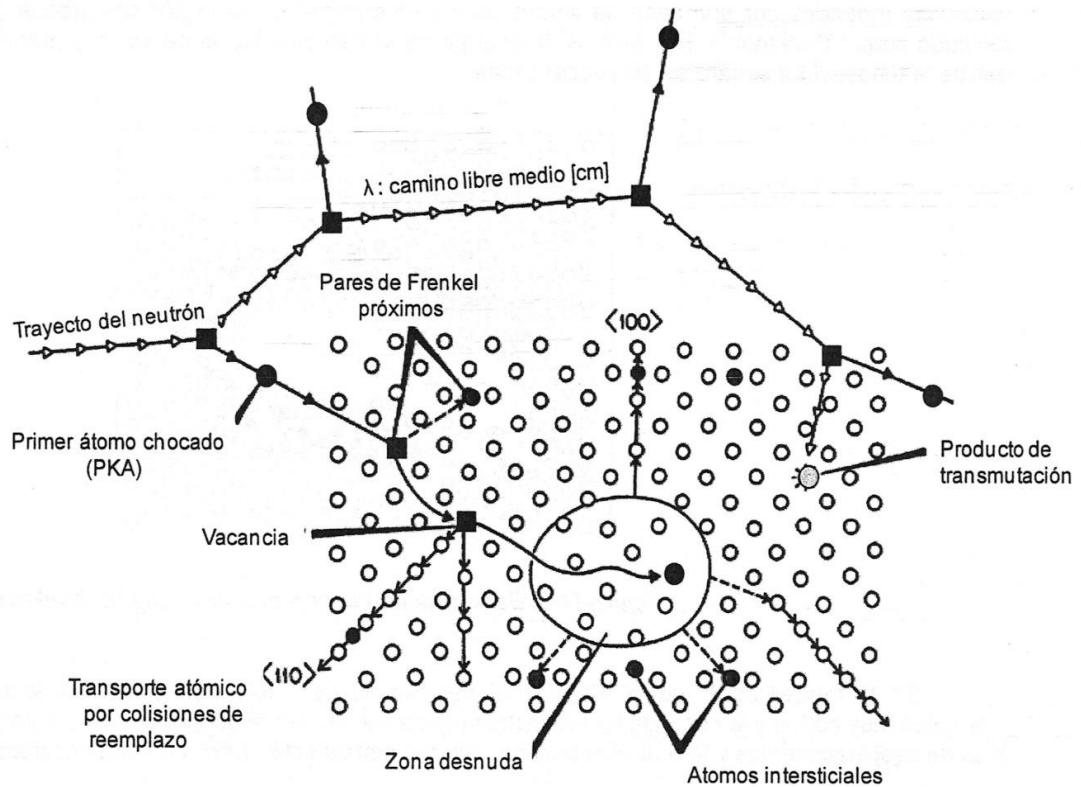


Figura II-3: Modelo de Seeger. Notar que la Figura no conserva escalas. Esto se aprecia en la magnitud de las distancias entre colisiones neutrónicas comparada con las distancias interatómicas.

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

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

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

El proceso subsiguiente ocurre a tiempos $> 10^{-11}$ s y está controlado por procesos de difusión; el movimiento térmicamente activado de defectos puntuales elementales de como resultado cambios en el estado microestructural del material irradiado.

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

TABLA II-2. Etapas de la cascada de colisiones

II.4.c. El número de desplazamientos atómicos.

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

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

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

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

Para este modelo se supone que el número de defectos formados es proporcional a la energía de daño, esto es, la energía consumida en la cascada. Así se desarrollo el modelo de Kinchin – Pease [13]. Es un modelo basado en numerosas simplificaciones, como por ejemplo: colisiones elásticas clásicas de esferas duras, existencia de un abrupto umbral T_d por debajo del cual no hay desplazamientos, se desprecian los efectos de la red y la recombinación intersticiales-vacancias.

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

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

Donde f es un factor resultante de refinamientos posteriores del modelo involucrando el cálculo de una energía de daño y una estimación más realista del umbral T_d . Uno de ellos, el modelo de Norgett – Robinson –Torrens (NRT) [14], es el recomendado como un estándar por la IAEA. Los autores incluyen la pérdida de energía asociada a las colisiones inelásticas con los electrones y el valor anisotrópico de T_d para distintas direcciones cristalográficas. Esto permite una simulación por computadora de la cascada de colisiones y permite la comparación con varios experimentos de irradiación.

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

A medida que la energía del PKA va decayendo, son capturados electrones hasta que la carga efectiva del proyectil se anula. Finalmente la energía restante se disipa en colisiones elásticas con la red. Si bien este cambio es gradual, se ha intentado estimar un valor para esta energía de transición entre tipos de interacciones. Una de las estimaciones tiene en cuenta la energía de ionización de los átomos blanco, y se obtiene, para la mayoría de los metales que $T_{\text{transición}} \approx A$ [keV], donde A es la masa atómica del metal. Esta energía de transición puede asociarse a la energía de daño que es la resultante de restar a la energía del primario la pérdida en la excitación electrónica, Fig. II-4.

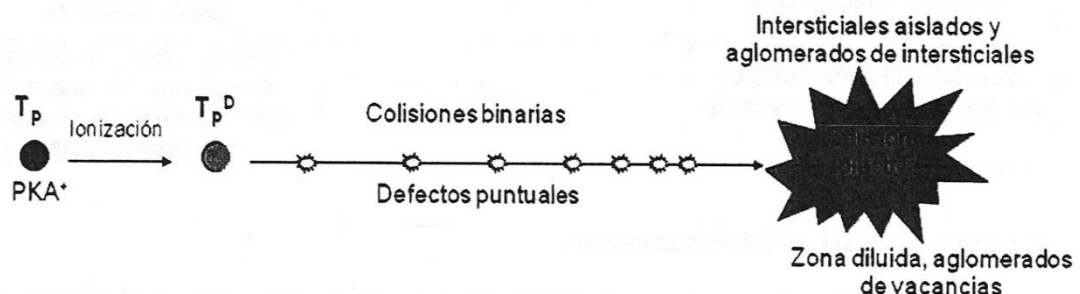


Figura II-4: Esquema de los procesos en una cascada

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

Para determinar el dpa, usando el modelo de NRT, es necesario conocer:

- El espectro, flujo y fluencia neutrónicos.

- La sección eficaz de desplazamiento efectiva σ_d (E), dando la probabilidad de desplazamiento de un átomo de la sustancia blanco como resultado de la colisión con el neutrón incidente de energía E; en general, incluye las contribuciones de varios procesos de dispersión, (n, n), (n, n'), (n, 2n), etc. Este valor ha sido tabulado, [ANSI/ASTM E 693-79].

El avance en el conocimiento de los procesos que ocurren cuando se irradia con neutrones se debió en parte a que el daño en materiales modelo ha sido estudiado usando dinámica molecular (MD) y métodos de cinética de Monte Carlo [15]. Basado en estos resultados es ahora comúnmente aceptado que las predicciones de daño basados en el dpa y el NRT no son totalmente adecuadas cuando hay grandes variaciones en los espectros neutrónicos. Esto se debe a que los modelos son aproximaciones más o menos realistas pero que no contemplan todos los posibles procesos que tienen lugar cuando se irradia. En particular, además del número de átomos desplazados importa conocer su distribución, lo que es fuertemente dependiente de la energía neutrónica y del flujo neutrónico, o sea en qué intervalo de tiempo fue entregada esa energía.

II.4.d. Distribución espacial del daño neutrónico

En la figura II-5 se esquematiza en forma idealizada como se puede representar en daño neutrónico en un componente, cuando la energía de los neutrones es suficiente como para desplazar átomos de las redes.

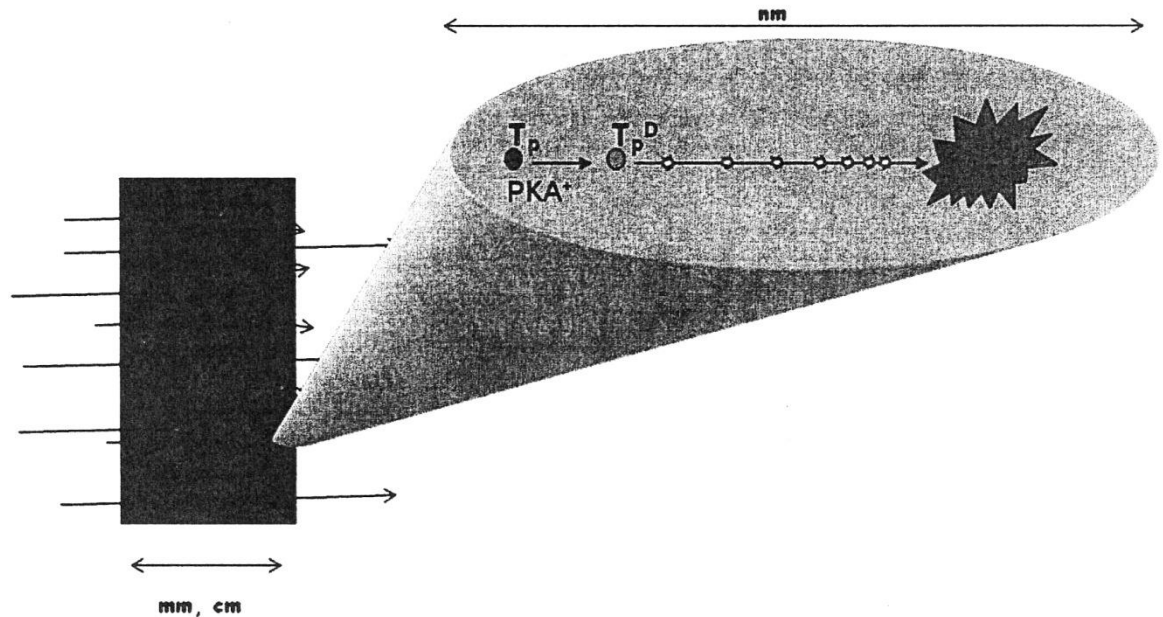


Figura II-5: Esquema de la distribución del daño en un material irradiado

Siguiendo el modelo de Seeger, en cada colisión colectiva se generan aglomerados de vacancias; estos son comprimidos hasta formar discos que son transformados luego en lazos de dislocaciones. Se puede demostrar que cuando un aglomerado tiene un número suficiente de vacancias, un lazo de dislocaciones tiene la menor energía de formación. Si los intersticiales están en condición de agruparse tomarán la configuración de mínima energía en la forma de un disco de un átomo de espesor, situado entre dos planos compactos adyacentes.

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

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

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

Estudios teóricos sobre el efecto de los neutrones térmicos en materiales físil lleva al desarrollo de una teoría de múltiples cascadas producidas por los fragmentos de fisión.

Considerando a estos como iones con masas variables y alta carga, su frenado en el medio es intenso y su alcance no supera las decenas de micrones. Por lo tanto la concentración de defectos que producen es mucho mayor que la producida por un neutrón rápido en un material no físil.

II.4.e. Unidades de daño

Se tiene ahora un panorama de los posibles defectos primarios creados por los neutrones en las redes metálicas. Tanto los defectos puntuales, como los aglomerados de diferentes tamaños y morfología son creados cuando el neutrón colisiona con átomos del blanco. A medida que la irradiación prosigue, se producen más cascadas; hasta es posible imaginar una interacción entre ellas, con defectos de una aniquilándose en otra.

Por otra parte, la estructura de los defectos creados depende de la energía neutrónica. Se debe entonces encontrar una unidad que represente la cantidad de daño acumulado comparado con el efecto de la radiación para neutrones de distinta energía.

Esta relación entre la efectividad de daño por neutrón en función de su energía se conoce habitualmente como función daño. Obtener una función como ésta solamente de experimentos requeriría realizar gran cantidad de irradiaciones con neutrones monoenergéticos. No es fácil encontrar fuentes monoenergéticas intensas de neutrones. Algunas aproximaciones se hacen por cálculo.

En principio se debe tener en cuenta que gran número de propiedades de los metales se modifica por la acción de los neutrones rápidos, es decir, aquellos capaces de producir desplazamientos en cantidades considerables. Pero se debe considerar también que los neutrones epitérmicos y aun los térmicos pueden producir desplazamientos. En aleaciones metálicas que contienen material físil, como las analizadas en este trabajo, el papel primordial lo tienen los neutrones térmicos, ya que el daño estará provocado por la interacción de los fragmentos de fisión del U.

Para tener en cuenta la irradiación con distintas partículas y su efecto en diferentes materiales fue definida una unidad de exposición, mal llamada de daño: el **dpa**, o desplazamiento por átomo. El **dpa** no es más que el número de veces que, durante una irradiación, cada átomo, en promedio, es sacado de su sitio en la red. Lo cual no deja de ser una forma de medir dosis de exposición, y se lo usa como parámetro de correlación del daño. Se han utilizado modelos para calcular equivalencias con la dosis o fluencia neutrónica que valen sólo para cada material y para determinado tipo de partícula incidente. Por ejemplo,

en Zry, 1 dpa equivale, aproximadamente, a una exposición de 10^{21} n/cm² para $E_n \geq 1$ MeV, en el núcleo de un reactor térmico. En combustibles se deberá tener en cuenta el número de fisiones y el número de desplazamientos producidos en cada material por los fragmentos de fisión.

Para calcular matemáticamente, en este trabajo, el desplazamiento por átomo dpa se utilizó la ecuación siguiente donde se observa que dicho parámetro de daño estructural es dependiente del número de fisiones, del número de desplazamientos por fisión y del número de átomos totales.

$$dpa = \frac{N^{\circ} \text{ fisiones} \times N^{\circ} \text{ desplazamientos por fisión}}{N^{\circ} \text{ de átomos totales}}$$

$$N^{\circ} \text{ fisiones} = \phi \times t \times \sigma \times N_0$$

El número de átomos totales se calculó en función de la masa molecular y de una cantidad de 1 gramo en peso de ambas aleaciones en estudio.

Como el uranio utilizado es depletado (es decir que contiene el 0,2% del isótopo fértil U²³⁵) el número de átomos de este isótopo, teniendo en cuenta esta proporción, es el que corresponde al número de átomos de uranio de cada aleación (N_0). Se considera que la fisión de un átomo de U²³⁵ provoca 10^5 [17] desplazamientos atómicos en sus átomos vecinos, como producto del impacto de los fragmentos liviano y pesado, con su correspondiente energía promedio y las múltiples cascadas que producen en el medio; teniendo en cuenta esto se puede calcular el número de desplazamientos por fisión.

CAPÍTULO III- TECNICAS EXPERIMENTALES

III.1. Obtención y acondicionamiento de las aleaciones estudiadas

III.1.a. Materias primas utilizadas y elaboración de las aleaciones

Las materias primas utilizadas para elaborar las aleaciones en estudio fueron las siguientes:

Los aleantes Al, Mo y Si fueron de alta pureza ($\geq 99,9\%$) y el se utilizó U s depletado (0,2% en peso U^{235}) de 98,5% de pureza. En la Tabla III-1 se presentan las composiciones expresadas en porcentaje atómico y en peso correspondiente a la aleación que se quiere fabricar.

Para el cálculo de las relaciones en peso de cada elemento en cada una de las aleaciones a construir, se utilizó un programa desarrollado en el grupo transformaciones de fases. Introduciendo como datos las concentraciones en porcentaje atómico y el peso de la masa de aleación, se obtiene como resultado el peso de cada elemento puro necesario para construir la aleación. Este programa fue modificado para permitir ajustar los pesos de aluminio, silicio y molibdeno al peso de los trozos de uranio puro, que resultaban ser los más dificultosos de seccionar por su riesgo radiológico.

Aleaciones	U		Si		Al		Mo	
	At. %	Wt. %	At. %	Wt.%	At. %	Wt.%	At. %	Wt.%
U_3Si_5	37,5	79,8	62,5	20,2	-	-	-	-
$Al_{43}Mo_4U_6$	11,32	48,05	-	-	81,14	39,04	7,54	12,91

Tabla III-1. Aleaciones fabricadas.

Los elementos puros fueron cortados en trozos de hasta 50 mm^3 . Para desengrasar la superficie producida durante el corte se limpiaron en un baño de éter etílico tibio durante un minuto. Posteriormente fueron desbastados con papel abrasivo y decapados para eliminar oxidación con las siguientes soluciones:

Uranio: ácido Acético 50%, ácido Nítrico 50%, diluidos en agua al 50% y concentrando gradualmente hasta observar el ataque superficial.

Molibdeno: ácido Clorhídrico 40%, ácido Nítrico 40%, ácido Fluorhídrico 20% hasta observar el ataque superficial.

Aluminio: Hidróxido de Na diluido al 1% en agua destilada sumergido durante aproximadamente 1 minuto.

Silicio: ácido Fluorhídrico diluido al 1% en agua destilada sumergido durante aproximadamente 1 minuto.

Finalmente cada uno de los materiales fueron pasivados en agua destilada para cortar el ataque químico superficial.

Las fundiciones de los botones de las aleaciones se realizaron en un horno de arco con electrodo no consumible de tungsteno y chill (sumidero de calor) de cobre de suficiente tamaño como para asegurar rápido enfriamiento. Para evitar la absorción de oxígeno, la cámara de fusión se prepara para trabajar bajo una sobrepresión de 1 atmósfera y flujo de una corriente de argón de alta pureza, posterior al evacuado del aire mediante bomba de tipo de vacío primario hasta 10^{-3} atmósferas. Dentro del horno se colocó a manera de getter (acaparador de gases) del posible oxígeno residual, una viruta de Zr que se funde al comienzo del proceso. Las condiciones de cada etapa de la fundición fueron: intensidad de corriente entre 100 y 200 A y duración entre 30 y 60 segundos. Se refundieron 5 veces cada una de las aleaciones, girando el botón formado, para promover el correcto mezclado de los componentes. De esta forma se obtuvo un botón de U_3Si_5 de 25 gramos y otro de $Al_{43}Mo_4U_6$ de 20,8 gramos de peso respectivamente.

Para asegurar que la composición definitiva de cada aleación fuera la nominal prevista y que no haya habido pérdida de elementos puros por evaporación o sublimación durante la fusión, se pesaron los botones una vez elaborados en el horno, comprobándose que la pérdida con relación a los materiales componentes iniciales era despreciable.

III.1.b. Tratamientos térmicos

Los tratamientos térmicos sobre la aleación $Al_{43}Mo_4U_6$ fueron realizados para lograr la homogenización en composición.

Los mismos se llevaron a cabo en hornos convencionales regulados en ± 2 °C. Las muestras de la aleación fueron acondicionadas en pequeños paquetes de láminas de tantalio especialmente diseñados para evitar contacto directo con el cuarzo de los tubos en donde fueron colocadas. A continuación se realizó vacío de 10^{-6} atm durante 24 h en los tubos, para luego ser llenados con argón a una presión tal que, a la temperatura del tratamiento, fuera levemente mayor que la atmosférica. Finalmente los tubos de cuarzo fueron sellados.

Después de la permanencia en el horno de tratamiento, los tubos fueron retirados rápidamente y enfriados por inmersión en agua sin provocarse la rotura de dichos tubos (templado rápido).

El botón de la aleación U_3Si_5 quedó sumamente tensionada después del proceso de fundición de manera tal que a poco de haber solidificado se pulverizó naturalmente dando origen a un fino polvo de granulometría entre 100 y 300 μm (Figura III-1). Por tal motivo no se le hizo tratamiento térmico.



Figura III-1. Botón pulverizado de Aleación U_3Si_5

III.1.c. Corte e inclusión

El botón de aleación $Al_{43}Mo_4U_6$ fue seccionado en rodajas con una cortadora Struers Secotom 10 utilizando un disco de diamante de 0,6 mm de espesor (Figura III-2).



Figura III-2. Botón seccionado de aleación $Al_{43}Mo_4U_6$

Algunos trozos más grandes de la aleación U_3Si_5 y las rodajas del $Al_{43}Mo_4U_6$ fueron incluidos en resina epoxi conductora en una máquina para

incluir automática. Los parámetros de inclusión fueron establecidos en 250 Kg/cm² de presión a aproximadamente 150 °C durante 20 minutos. Esto permitió lograr la correcta conducción de corriente en las técnicas de caracterización que involucran el bombardeo de electrones (microscopía electrónica de barrido (SEM) y microsonda electrónica (EPMA)).

III.1.d. Pulidos y ataques

Las muestras de las aleaciones fueron preparadas para las distintas técnicas de caracterización por pulido con papeles abrasivos de carburo de silicio de granulometría 220, 320, 400, 600 y 1200 con lubricación acuosa y en máquina rotativa con pasta de diamante de 6 y 1 μm en paños lubricados con etilenglicol.

Finalmente se enjuagaron con abundante agua destilada y alcohol etílico y se secaron con aire caliente.

III.2. Equipos y metodologías para caracterización y mediciones

III.2.a. Microscopía óptica (MO)

Las muestras de las aleaciones tanto en estado de fundición como tratadas térmicamente fueron observadas en microscopio metalográfico de platina normal con tricular marca Olympus modelo BX-60M con aumentos de 50x, 100x, 200x, 500x y eventualmente 1000x. En ocasiones se utilizó luz polarizada para diferenciar la fase hexagonal compacta que polariza la luz de la cúbica centrada en el cuerpo que no polariza. Esta etapa permitió hacer una primera identificación de las fases. La confirmación definitiva de cada una de ellas se realizó mediante la comprobación por los otros métodos de caracterización. La totalidad de las micrografías realizadas fueron obtenidas en este equipo digitalizando y adquiriendo las imágenes con un sistema denominado Matrox.

III.2.b. Microscopía electrónica de barrido (SEM)

Los microscopios electrónicos de barrido Phillips modelo PSEM 500 y de efecto de campo FEI modelo QUANTA 200 fueron utilizados para observar y obtener imágenes de electrones secundarios y electrones retrodifundidos de la microestructura de las aleaciones.

Se utilizó el sistema de análisis de rayos X dispersivos en energías EDS-EDAX Phoenix 3.2 para realizar determinaciones de concentración semicuantitativas de las distintas regiones de las muestras observadas previamente.

III.2.c. Difracción de rayos X (XRD)

La identificación de las fases que componen las muestras se hizo mediante análisis de las figuras de difracción de rayos X. Para conseguir los difractogramas se utilizó radiación $K\alpha$ del Co en un difractómetro tipo Philips PW 3710 y PANalytical-Empyrean con PIXCEL 3d Detector con radiación $K\alpha$ Cu. Para este método de análisis se utilizaron muestras en polvo exclusivamente para minimizar el efecto de deformación de los picos de difracción por textura del material.

La muestra de la aleación U_3Si_5 se tomó del polvo resultante antes descrito. La muestra de polvo de la aleación $Al_{43}U_6Mo_4$ fue producido por molienda en un mortero de ágata a partir de pequeños trozos obtenidos por rotura por impacto de las rodajas cortadas del botón de fundición.

III.2.c.1 Selección de films anticontaminación

La utilización de polvos trae como consecuencia la posible contaminación superficial de los equipos de difracción. Con el objetivo de evitar dicha contaminación, se descartó el uso de los dispositivos propios de estos equipos para el montaje de polvos (que involucra solo un compactado por presión manual sobre un soporte) y se optó por adherirlos a una cinta bifaz marca 3M previamente pegada sobre un vidrio portaobjetos.

Esta cinta bifaz ha sido seleccionada para este tipo de prácticas ya que no presenta picos de difracción en el rango angular habitual de trabajo.

El difractómetro Philips PW 3710 posee una configuración de difracción conocida como θ - 2θ (lo cual implica que la muestra rota a medida que el ensayo avanza). Debido a esta característica configuracional del equipo y al hecho de que se analizan muestras irradiadas, se decidió cubrir las muestras montadas sobre la cinta bifaz con un segundo mecanismo de seguridad. Con este objetivo, se ensayaron dos films diferentes: el primero consistía en un film polimérico tipo Scotch® de la marca 3M y el segundo en un film de resina poliamídica cuyo nombre es Kapton® de la firma DuPont.

Los criterios de selección fueron:

- 1- Menor absorción de radiación X incidente de modo de maximizar la intensidad que llega a la muestra.
- 2- Minimizar la cantidad de picos de difracción correspondientes al film, que se agregan al difractograma.
- 3- Minimizar el aumento de fondo a bajo ángulo característico de este tipo de films, que pudiera enmascarar un aumento del fondo de difracción de una muestra que pudiera revelar la presencia de algún grado de amorfización.

Para el ensayo de ambos productos se realizaron los difractogramas de Rx primeramente sobre una muestra de Al 6061 desnudo (para detectar cuales eran los picos característicos) entre $20^\circ < 2\theta < 55^\circ$ y posteriormente se adhirió al Al 6061 cada uno de los films donde se obtuvieron los diagramas mostrados en la Figura III-3. Por comparación de los tres gráficos se puede observar que ninguno de los films introduce picos de difracción a los característicos del Al 6061, pero la resina poliamídica Kapton® presenta mucho menor atenuación a la radiación X que la Scotch® e introduce un menor aumento del fondo a bajo ángulo.

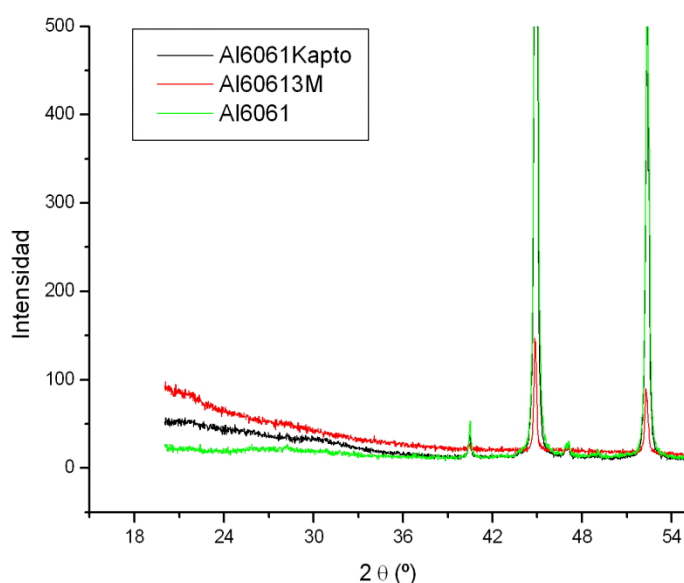


Figura III-3. Comparación de difractogramas Al6061 con films 3M y Kapton

La tensión de aceleración del haz del tubo de rayos X fue de 45 kV con una corriente de 40 mA.

Los datos fueron procesados mediante el programa PC-APD que contiene el sistema de análisis que acompaña el difractómetro. El posterior análisis de las figuras de difracción fue hecho utilizando el programa PowderCell 2.4 el cual permite identificar las estructuras cristalinas de las fases presentes por comparación directa entre los difractogramas teóricos de cada una de ellas y el difractograma experimental de la muestra estudiada.

III.2.c.2 Difracción de amorfos versus cristales

En un sólido cristalino la disposición de sus átomos guarda una simetría. Por esa razón, su diagrama de difracción por rayos X muestra varios picos muy bien definidos a unos ángulos determinados. Con los datos de la intensidad y de la posición angular, así como las fórmulas de interacción entre rayos X y el

sólido, se puede calcular la posición de los átomos en ese sólido. En la Figura III-4 se representa el diagrama de difracción de un sólido cristalino.

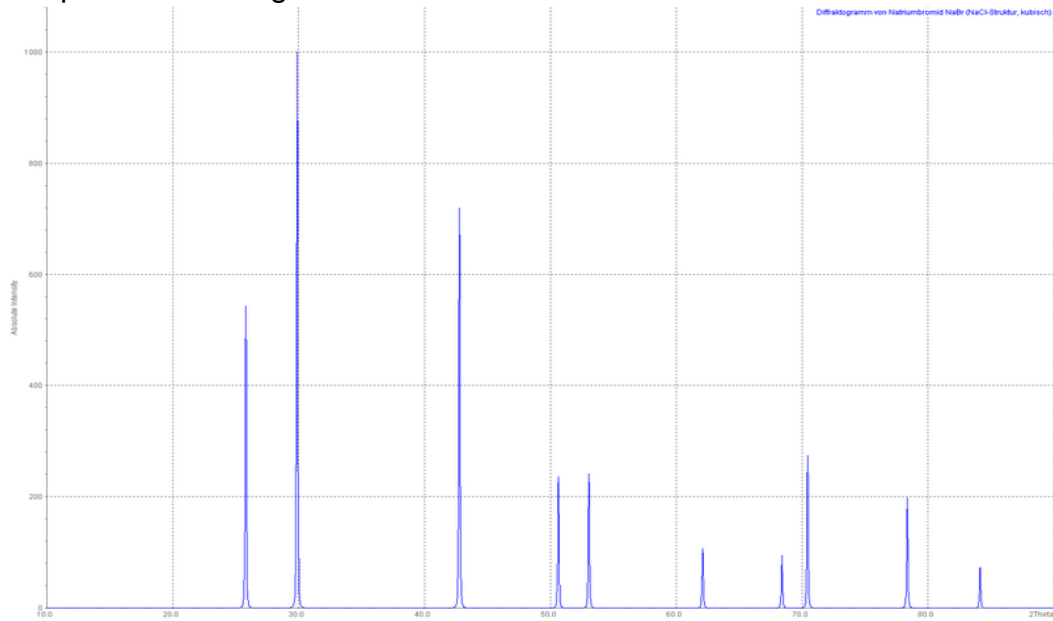


Figura III-4. Diagrama de difracción de un sólido cristalino.

En un sólido amorfo, los átomos están colocados al azar, debido a lo cual, en su diagrama de difracción se observan pocos picos, en general uno, que se caracteriza por una gran anchura angular. Analizando la anchura angular del pico junto con la intensidad y el tipo de interacción, se puede obtener la función de distribución radial, que da la distancia a primeros vecinos. En la Figura III-5 se representa el diagrama de difracción característico de un sólido amorfo.

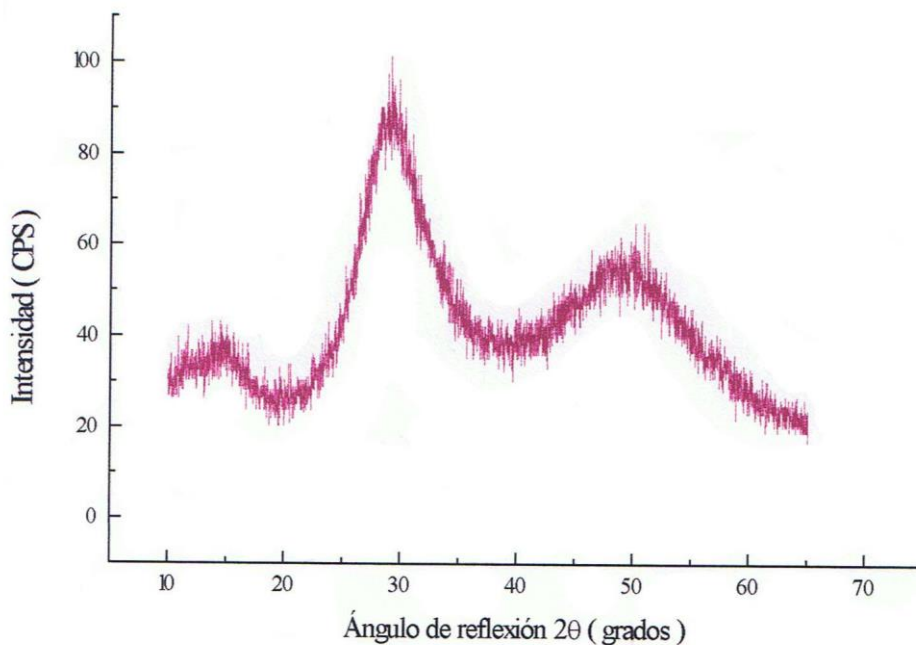


Figura III-5. Diagrama de difracción de un sólido amorfo.

En un sólido que presenta cierto grado de amorfización inducida por fisión se observa una combinación de los picos característicos de difracción de la microestructura que aún permanece en estado cristalino y un aumento en la intensidad del fondo. Este aumento no es constante para todo el rango angular sino que tiene las mismas características del difractograma presentado para un sólido amorfo. En la Figura III-6 se representa el diagrama de difracción de un sólido cristalino parcialmente amorfizado

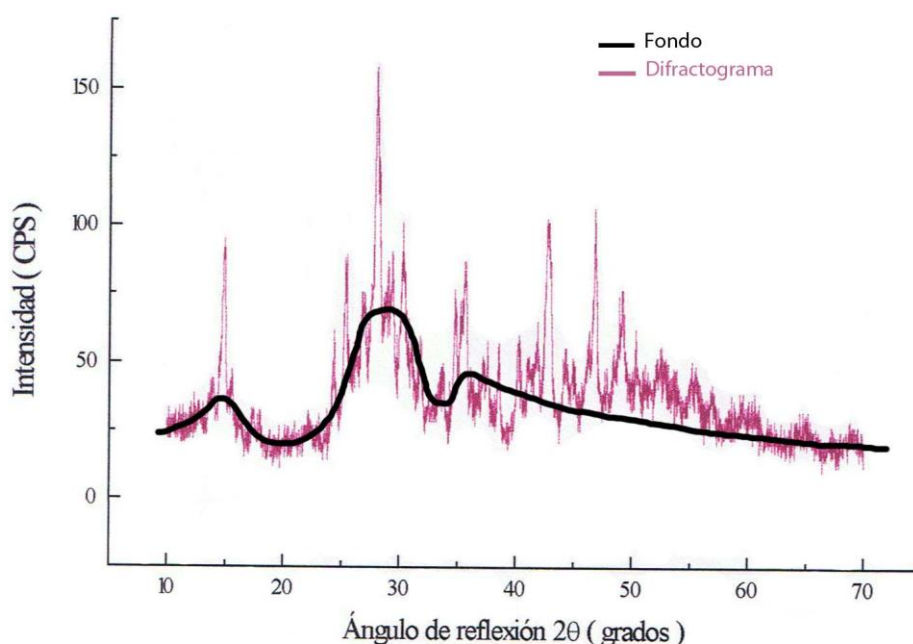


Figura III-6. Diagrama de difracción de un sólido cristalino parcialmente amorfizado.

III.2.d. Microsonda electrónica (EPMA)

Las composiciones de las fases en equilibrio de las aleaciones fueron determinadas por microanálisis cuantitativo en un equipo de microsonda CAMECA SX-50 mediante análisis de la radiación x característica dispersada en longitudes de onda por cristales monocromadores.

Para llevar a cabo el microanálisis se utilizaron tres metodologías diferentes: a) realizando determinaciones en volúmenes convenientes del orden de 1 micrón cúbico de una dada fase y al azar, b) haciendo mediciones sobre una cierta cantidad de áreas de 10 x 10 μm de manera que en cada una de ellas se incluye a todas las fases de la muestra y c) en cien puntos continuos linealmente ubicados y espaciados uniformemente cada 1 μm atravesando diferentes fases de las aleaciones.

Para las determinaciones analíticas de la composición se trabajó con un potencial de aceleración del haz de electrones de 20 kV y 20 nA de corriente en caja de Faraday, re calibrando el equipo antes de cada sesión de análisis, utilizando patrones calibrados de los elementos puros, U de 99,99 % en peso, Al de 99,999 % en peso, Si de 99,999 % en peso y Mo de 99,999 % en peso.

III.3. Preparación de muestras para irradiación

Para la irradiación de las aleaciones en el Reactor RA1 se tomaron fracciones en peso de 1 gramo de polvo de cada aleación. Estas muestras fueron introducidas en un cilindro de 8 mm de diámetro y 30mm de altura, construido por enrollamiento de papel de aluminio de calidad comercial de 0,02 mm de espesor sobre una varilla matriz con un total de 8 capas. El espesor del recipiente alcanzado (160 micrones) garantiza que los productos de fisión no atraviesen la pared del mismo y queden contenidos. Cada uno de sus extremos fue cerrado por presión con una pinza de fuerza.

Ambos cilindros conteniendo los polvos de las aleaciones fueron acondicionados dentro de recipientes estancos de aluminio de utilización estándar para la irradiación de muestras. Estos fueron posteriormente colocados dentro del canal de flujo neutrónico térmico del núcleo del reactor. En ambas irradiaciones se procuró que el daño fuera producido principalmente por los fragmentos de fisión. De allí la elección del sitio de irradiación.

III.4. Planificación de las irradiaciones

Para la planificación de la irradiación con neutrones se tuvo en consideración principalmente alcanzar un nivel de daño por radiación en las aleaciones del orden de los 0,02 dpa como parámetro principal de cálculo para lograr bajos niveles de activación de los materiales, de manera tal que se puedan obtener tiempos de decaimiento radiactivo razonables como para poder efectuar la caracterización sin la utilización de celdas calientes para su preparación.

III.4.a. Cálculo del daño por irradiación de la Aleación U_3Si_5

Masa Molecular

$3 \times 238 \text{ gr de U} + 5 \times 28 \text{ gr de Si} = 854 \text{ gr/mol}$

En 1 gramo de aleación hay $1,171 \times 10^{-3}$ moles de U_3Si_5 .

Como en 1 mol de aleación hay $6,023 \times 10^{23}$ moléculas de U_3Si_5 , en 1 gramo de aleación habrá $7,05 \times 10^{20}$ moléculas de U_3Si_5 . Este número se corresponde con un total de átomos de U y Si de $5,6423 \times 10^{21}$.

Así la cantidad total de átomos de Uranio en la aleación será de 2.11×10^{21} átomos. Como el Uranio utilizado es depletado, contiene el 0,2% del isótopo fértil U^{235} , el número átomos de este isótopo es $N_0 = 4,22 \times 10^{18}$ átomos.

El número de fisiones producidas en una aleación de U que contiene N_0 átomos del isótopo fértil sometido a un flujo Φ de neutrones térmicos de aproximadamente 0,025 eV de energía durante un tiempo de irradiación t que presenta una sección eficaz microscópica σ de fisión está dado por:

$$N^{\circ} \text{ fisiones} = \phi \times t \times \sigma \times N_0 = 1,382 \times 10^{15}$$

Donde $\Phi = 7 \times 10^{11}$ neutrones/ $\text{cm}^2 \times \text{seg}$ (en el RA1)

$t = 221$ horas (*)

$\sigma = 588$ barn [18]

(*) Este tiempo fue estimado para producir los dpa descritos en el punto III-4

Se considera que la fisión de un átomo de U^{235} provoca $\sim 10^5$ desplazamientos atómicos en sus átomos vecinos [17]. Por lo tanto en un gramo de aleación irradiado el número de desplazamiento relativo a un átomo (dpa) será:

$$\text{dpa} = \frac{N^{\circ} \text{ fisiones} \times N^{\circ} \text{ desplazamientos por fisión}}{N^{\circ} \text{ de átomos totales}}$$

$$\text{dpa} = 0,0245$$

Se determina este valor de desplazamientos por átomo como parámetro inicial de cálculo del tiempo de irradiación de la aleación $\text{Al}_{43}\text{U}_6\text{Mo}_4$ para poder hacer una comparación del comportamiento de ambas estructuras cristalinas ante el mismo daño por radiación neutrónica.

III.4.b. Cálculo del tiempo de irradiación de la Aleación $\text{Al}_{43}\text{U}_6\text{Mo}_4$

Masa Molecular

$$43 \times 27 \text{ g de Al} + 6 \times 238 \text{ g de U} + 4 \times 96 \text{ g de Mo} = 2973 \text{ gr/mol}$$

En 1 gramo de aleación hay $3,36 \times 10^{-4}$ moles de $\text{Al}_{43}\text{U}_6\text{Mo}_4$.

Como en 1 mol de aleación hay $6,023 \times 10^{23}$ moléculas de $\text{Al}_{43}\text{U}_6\text{Mo}_4$, en 1 gramo de aleación habrá $2,02 \times 10^{20}$ moléculas de $\text{Al}_{43}\text{U}_6\text{Mo}_4$. Este número se corresponde con un total de átomos de Al, U y Mo de $1,076 \times 10^{22}$.

Así la cantidad total de átomos de Uranio en la aleación será de $1,214 \times 10^{21}$ átomos. Como el Uranio utilizado es depletado que contiene el 0,2% del isótopo fértil ^{235}U , el número átomos de este isótopo es $N_0 = 2,43 \times 10^{18}$ átomos.

$$\begin{aligned}
 N^{\circ} \text{desplazamientos} &= dpa \times N^{\circ} \text{ átomos totales} = 0,0245 \times 1,076 \times 10^{22} \\
 &= 2.62 \times 10^{20} \text{ desplazamientos}
 \end{aligned}$$

Como se dijo anteriormente, la fisión de un átomo de ^{235}U provoca $\sim 10^5$ desplazamientos atómicos en sus átomos vecinos. Por lo tanto en un gramo de aleación irradiado el número de fisiones del isótopo fértil será de 2.62×10^{15} .

Así, el tiempo de irradiación de la aleación $\text{Al}_{43}\text{U}_6\text{Mo}_4$ estará dado por la siguiente expresión:

$$\begin{aligned}
 \text{Tiempo de irradiación} &= \frac{N^{\circ} \text{ de fisiones}}{\phi \times \sigma \times N_0} = \\
 &= \frac{2,62 \times 10^{15}}{7 \times 10^{11} \frac{1}{\text{cm}^2 \cdot \text{seg}} \times 588 \text{ barn} \times 2,43 \times 10^{18}} = 2,621 \times 10^6 \text{ seg} =
 \end{aligned}$$

$$\text{Tiempo de irradiación} = 728 \text{ horas} = 30,33 \text{ días}$$

IV. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

IV-1- Compuesto U_3Si_5

IV-1-a - Proceso de fabricación y caracterización del compuesto U_3Si_5 .

Para la fabricación de la aleación U_3Si_5 , los elementos puros Si y U se fundieron según la concentración estequiométrica U_3Si_5 . A esta aleación la denominaremos U_3Si_5 -AC (As Cast o de fundición). A poco tiempo de transcurrida la fusión de la muestra, la misma se transformó en polvo naturalmente sin ninguna acción externa.

Las imágenes de microscopía óptica siguientes (Figuras IV-1 y IV-2) muestran las partículas de polvo que fueron incluidas y preparadas metalográficamente donde se observan las fisuras producidas durante el proceso de solidificación.

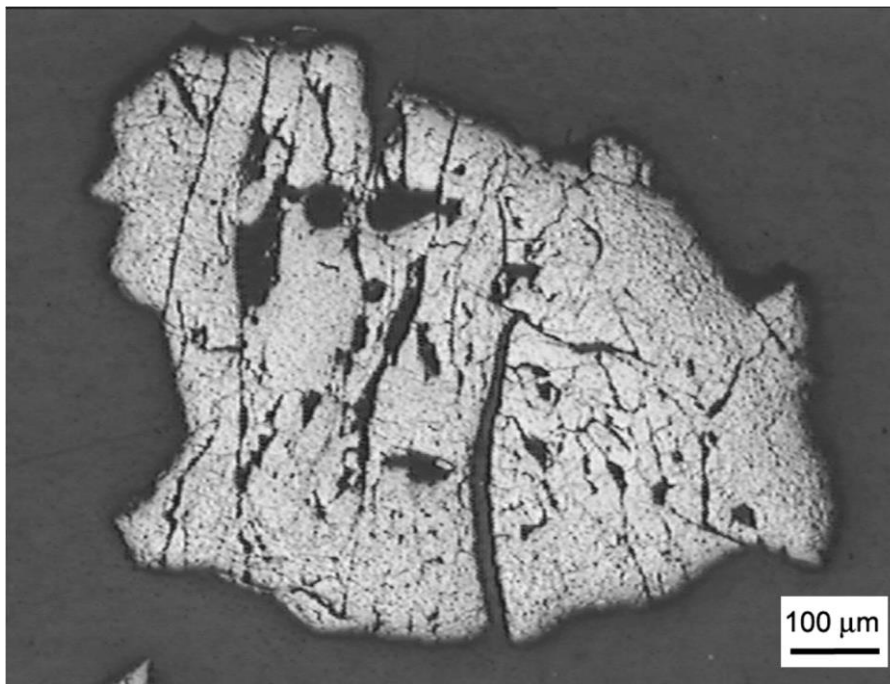


Figura IV-1. Partícula de polvo de aleación U_3Si_5 -AC. MO

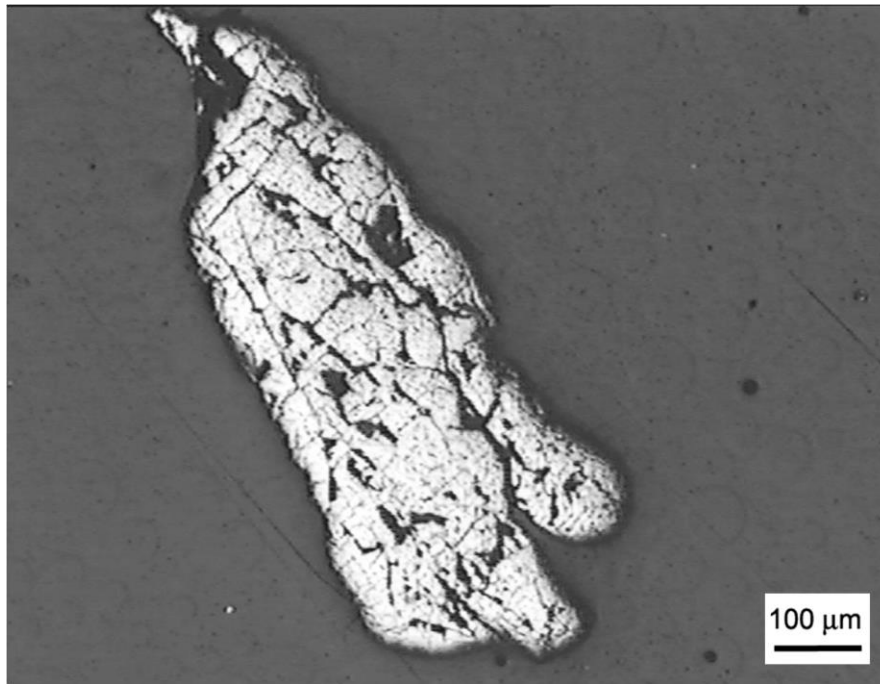


Figura IV-2. Partículas de polvo de aleación U₃Si₅-AC. MO

La importante diferencia entre el número atómico del Si y el U, permite obtener información de la cantidad de fases presentes en la muestra a través de las imágenes de electrones retrodifundidos obtenidas por SEM. Las Figuras IV-3 y IV-4 corresponden a dos partículas representativas de la muestra.

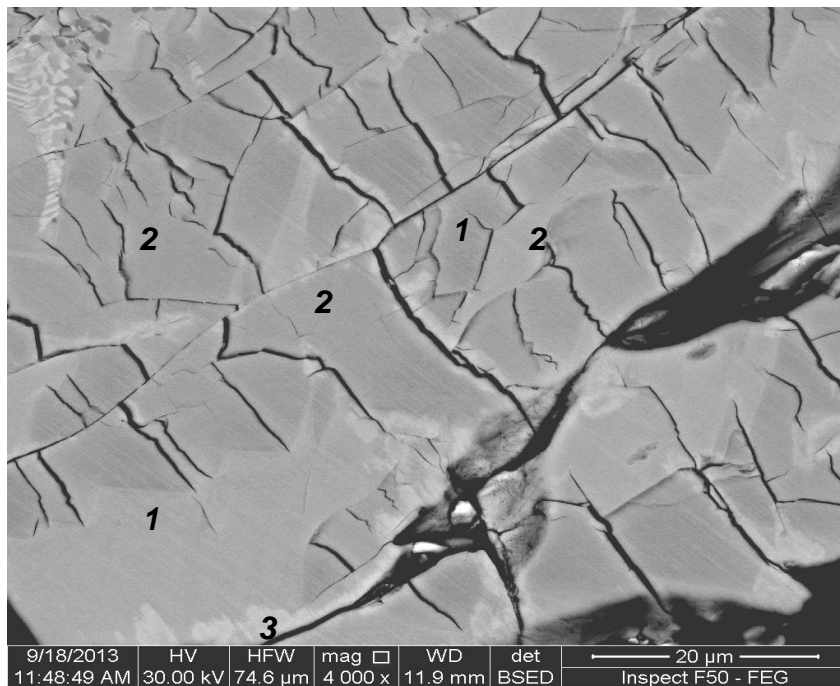


Figura IV-3. Aspecto general de las partículas representativas de la aleación U₃Si₅-AC. SEM BSE

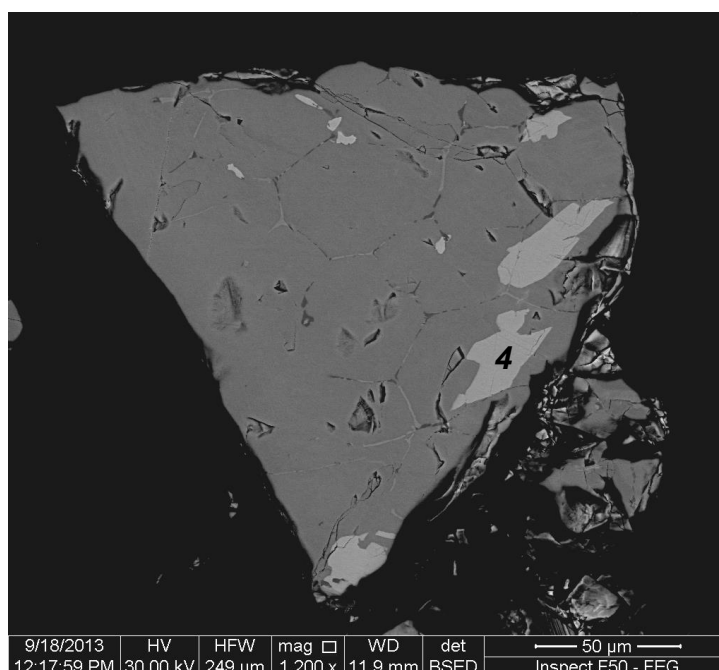


Figura IV-4. Aspecto general de las partículas representativas de la aleación U_3Si_5-AC . SEM BSE

Como puede observarse en las Figuras IV-3 y IV-4, dentro de las partículas de la aleación U_3Si_5-AC pudieron identificarse regiones con cuatro tonos de grises diferentes (indicadas con los números 1 a 4 en las imágenes anteriores) los cuales estarían indicando la presencia de, al menos, cuatro fases. Es de destacar que las regiones más claras identificadas con el número 4 fueron encontradas en un número muy chico de partículas y en muy poca cantidad. En este sentido, la Figura IV-3 sería representativa de prácticamente toda la muestra siendo importante destacar que la fase indicada como 2 presenta una gran cantidad de fisuras que no progresan hacia la fase indicada con el número 1. Estas dos fases se encontrarían en iguales proporciones dentro de la muestra.

En las Figuras IV-5 a IV-8 se muestran los espectros de RX obtenidos por EDS correspondientes a las cuatro regiones presentes en la aleación. Comparando las Figuras IV-5 y IV-6 no se observan diferencias significativas entre ellas. Con respecto a la Figura IV-7 es de destacar la presencia del pico característico del oxígeno permitiendo proponer que la Zona 3 corresponde a oxidación provocada por exudación de la muestra a través de las grietas y fisuras. Al comparar el espectro de la Figura IV-8 con los de la Figuras IV-5 y IV-6 se observa una disminución en la intensidad del pico de Si y un aumento del de U.

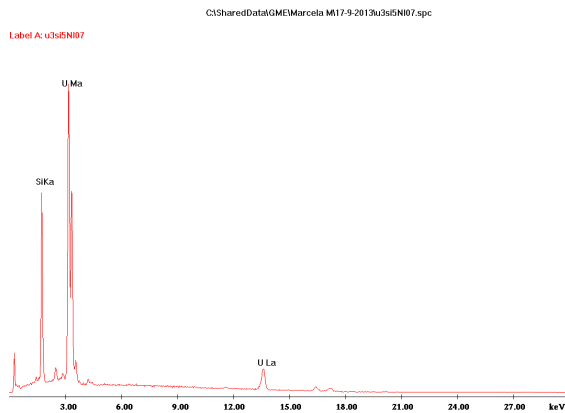


Figura IV-5. Espectro de RX correspondiente a la Zona 1. EDS

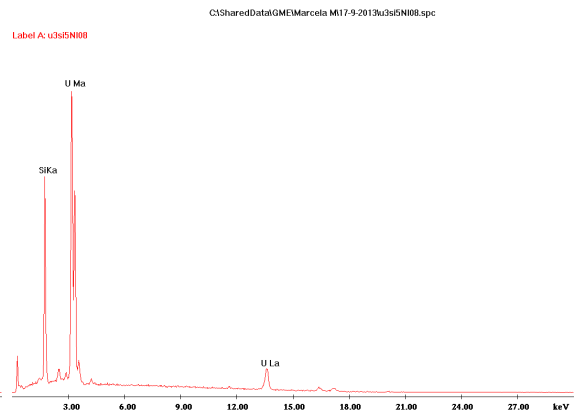


Figura IV- 6. Espectro de RX correspondiente a la Zona 2. EDS

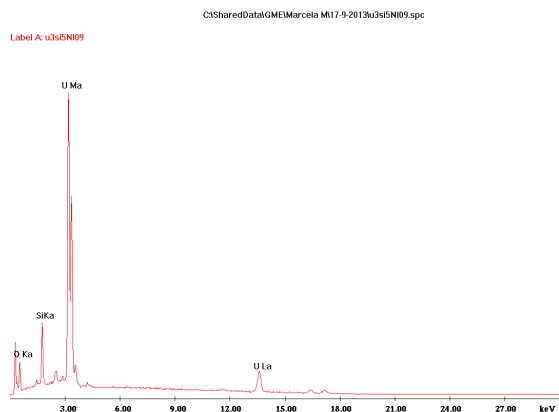


Figura IV-7. Espectro de RX correspondiente a la Zona 3. EDS

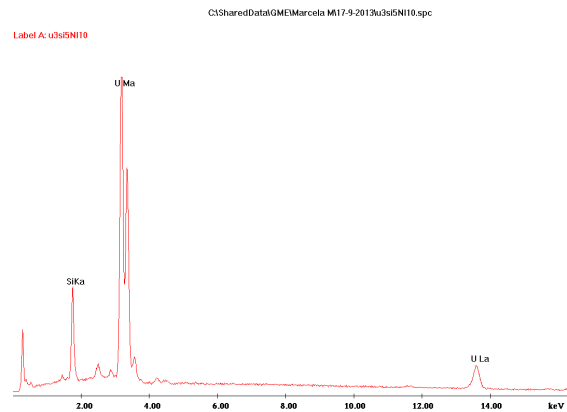


Figura IV-8. Espectro de RX correspondiente a la Zona 4. EDS

Las estructuras cristalinas correspondientes a las fases U_3Si_5 , USi_{2-x} y SiU (en muy baja proporción) junto con el óxido superficial O_2U fueron identificados por XRD, (Figura IV-9). De la comparación entre este análisis y el realizado por SEM –EDS, se propone que la Zona 1 corresponde a la fase U_3Si_5 , la Zona 2 a USi_{2-x} , la Zona 3 a UO_2 y la Zona 4 a USi . Este análisis confirma la presencia del compuesto de U_3Si_5 en la aleación U_3Si_5-AC .

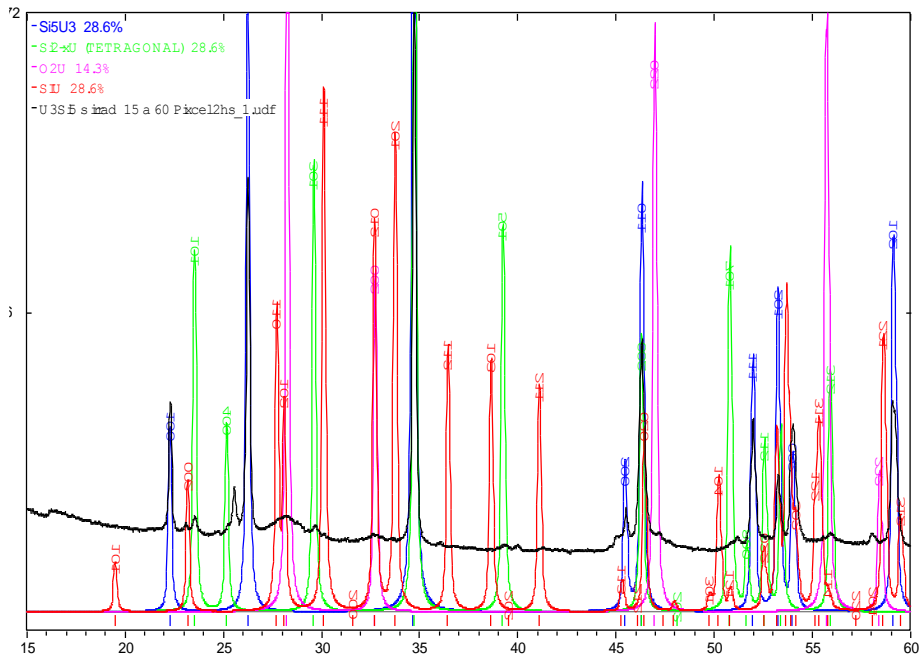


Figura IV-9.- Aleación U₃Si₅-AC. Identificación de estructuras cristalinas. XRD.

El polvo de aleación de U₃Si₅-AC fue irradiado en el reactor RA1 durante 221 h para alcanzar 0,02 dpa. Después de la irradiación la muestra se dejó durante un período de decaimiento de 270 días en almacenamiento en seco hasta llegar a las dosis seguras para ser manipulado. Daremos de ahora en más la denominación de U₃Si₅-AC-I a la aleación U₃Si₅ irradiada.

IV-1-b- Caracterización del compuesto U₃Si₅-AC-I post-irradiación

De las observaciones de SEM que se realizaron para la aleación U₃Si₅-AC-I presentadas en las Figura IV-10 se puede inferir que el aspecto general de las partículas después de la irradiación no mostró un cambio significativo en su morfología, observándose la presencia mayoritaria y en similares proporciones de al menos dos fases.

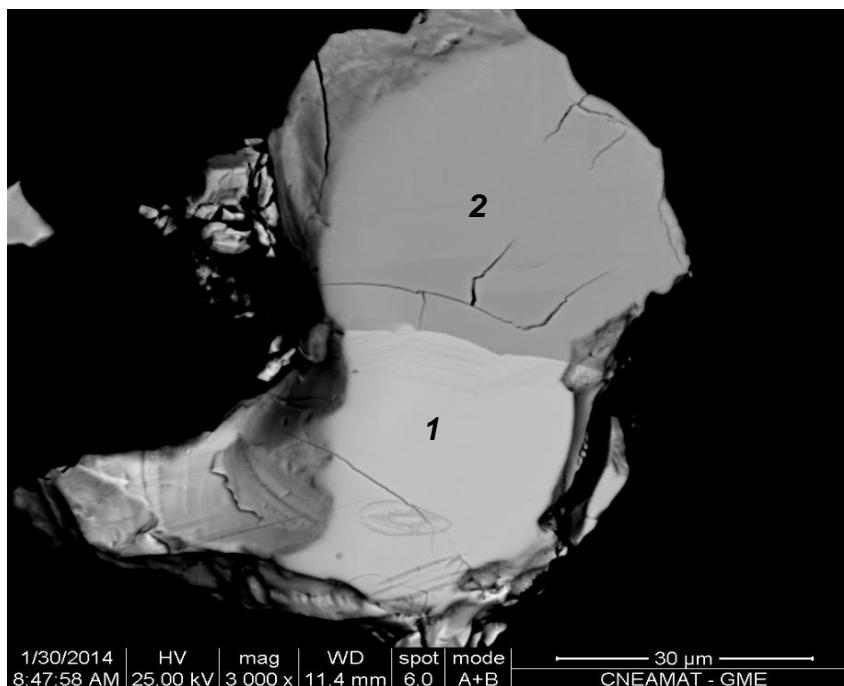


Figura IV-10. Aspecto general de partículas representativas de la aleación U_3Si_5 -AC-I. SEM.

Mediante el análisis por XRD se identificaron las mismas estructuras cristalinas en la aleación 3-AC (Figura IV-11) no habiéndose observado cambios en el nivel de fondo del difractograma, que podrían estar asociados a ciertos indicios de una posible amorfización inducida por la irradiación neutrónica.

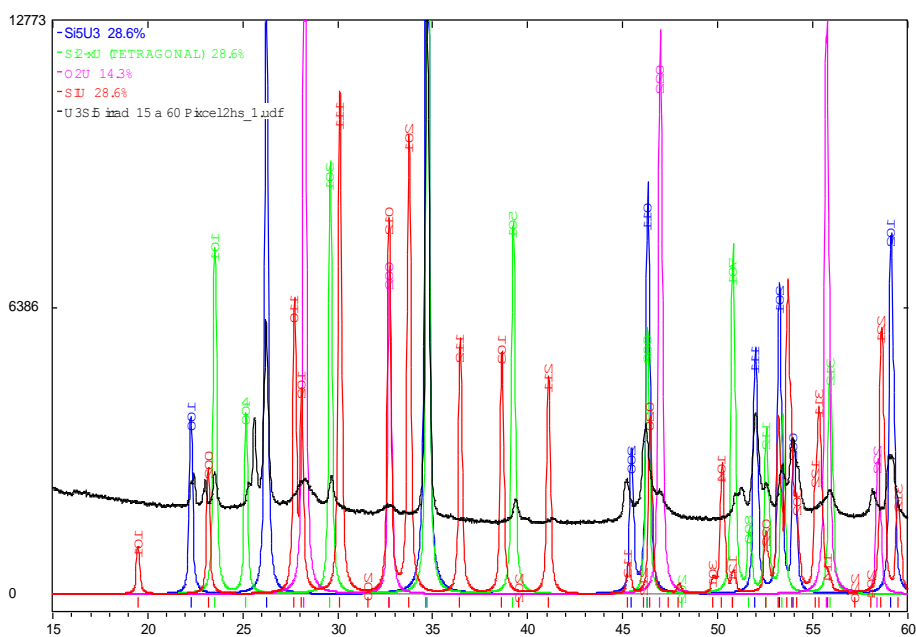


Figura IV-11 Aleación U_3Si_5 -AC-I. Identificación de la estructura cristalina.
XRD

Con respecto al análisis cualitativo por EDS, tampoco se observó un cambio en la proporción de las fases presentes en la aleación U_3Si_5 -AC-I ni la aparición de nuevas fases inducidas por irradiación. Esto se observa en las Figuras IV-11 y IV-12 siguientes que son comparables con los espectros EDS obtenidos en la aleación U_3Si_5 -AC.

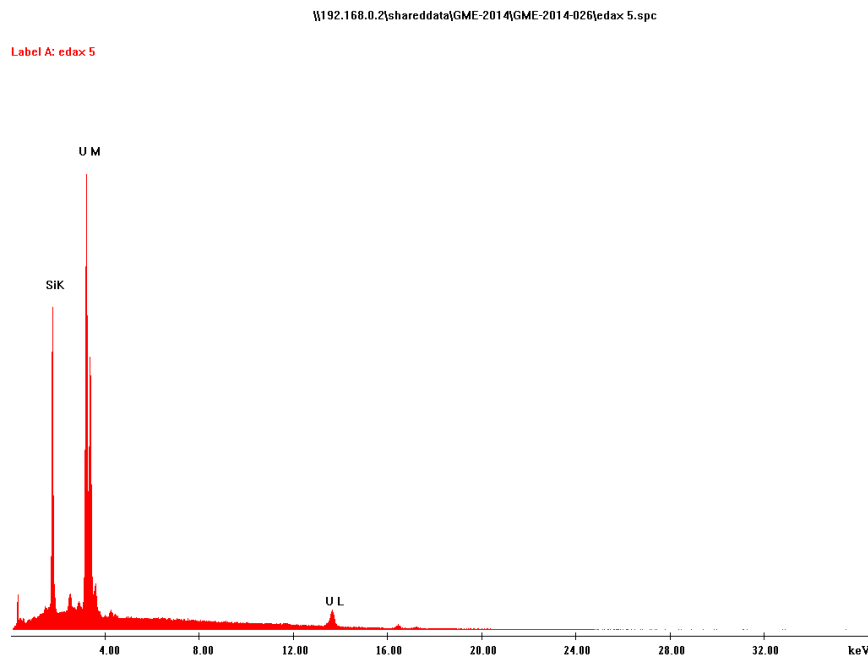


Figura IV-11. Espectro de RX correspondiente a la fase U_3Si_5 en la Aleación U_3Si_5 -AC-I. EDS

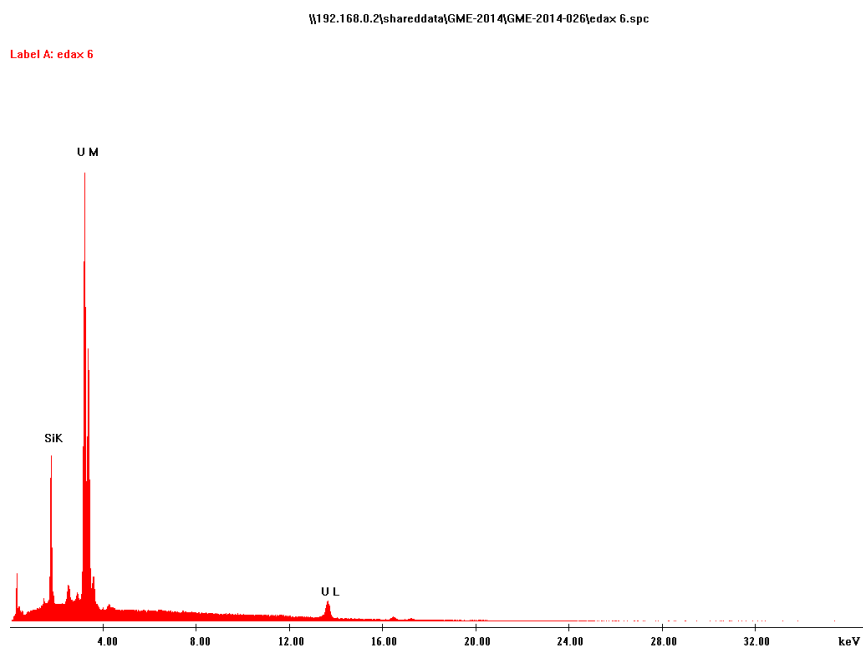


Figura IV-12. Espectro de RX correspondiente a la fase USi_{2-x} en la Aleación U_3Si_5 -AC-I. EDS

A partir de la comparación de los espectros de las Figuras IV-9 y IV-11, puede deducirse que ninguna de las fases presentes en la aleación muestra evidencia de amorfización inducida por fisión para un nivel de daño de 0.02dpa.

IV-2- Compuesto $Al_{43}Mo_4U_6$

IV-2-a - Proceso de fabricación, caracterización e irradiación del compuesto $Al_{43}Mo_4U_6$

Para la obtención de esta aleación se partió inicialmente de la composición estequiométrica teniendo como producto de la fusión la aleación $Al_{43}Mo_4U_6$ -AC, pero por razones que se explicarán seguidamente fue necesario recalcular la concentración atómica de cada elemento puro para lograr el compuesto de interés. Por este motivo, para obtener la aleación de interés, se fundió el compuesto $Al_{40}Mo_7U_6$ -AC.

A diferencia de lo sucedido para la aleación U_3Si_5 -AC, el compuesto $Al_{43}Mo_4U_6$ no se pudo obtener a partir de la estructura de fundición directamente, siendo necesario el diseño de diferentes tratamientos térmicos para lograr el compuesto de interés.

En la TABLA IV-1 se presentan las denominaciones asignadas, concentración inicial y tratamiento térmico correspondiente al proceso de obtención del compuesto $Al_{43}Mo_4U_6$.

Nombre de la muestra	Concentración para la fundición (% at)			Tratamiento Térmico
	Al	Mo	U	
$Al_{43}Mo_4U_6$ -AC	81.15	7.61	11.24	No
$Al_{43}Mo_4U_6$ -TT1	81.15	7.61	11.24	240hs -500°C

TABLA IV-1. Nombre asignado, Concentración inicial, Tratamiento térmico para la obtención del compuesto $Al_{43}Mo_4U_6$

Una vez finalizada la fundición de la *muestra* $Al_{43}Mo_4U_6$ -AC se realizó un análisis químico de la misma mediante el cual se corroboró que la concentración real presentaba una disminución en el porcentaje de Mo respecto de su concentración inicial (TABLA IV-2).

	Concentración inicial antes de la fundición			Concentración real luego de la fundición		
	Al	Mo	U	Al	Mo	U
% en peso	39.1	13	47.8	41.12	9.54	49.34
% atómico	81.15	7.61	11.24	83.37	5.5	11.1

TABLA IV-2. Concentración de la muestra $\text{Al}_{43}\text{Mo}_4\text{U}_6\text{-AC}$ antes y después de la fundición

El estudio de las estructuras cristalinas presentes en la muestra (Figura IV-13) permitió identificar las fases UAl_3 , UAl_4 y $\text{Al}_{20}\text{Mo}_2\text{U}$ no pudiéndose identificar ningún pico correspondiente a la estructura cristalina de la fase $\text{Al}_{43}\text{Mo}_4\text{U}_6$. Los picos de baja intensidad y posición angular $2\theta = 22^\circ$, 31.2° y 38.5° corresponden a la difracción de la fase UAl_3 (mayoritaria dentro de la muestra) para la radiación $\text{K}\beta$ del Co.

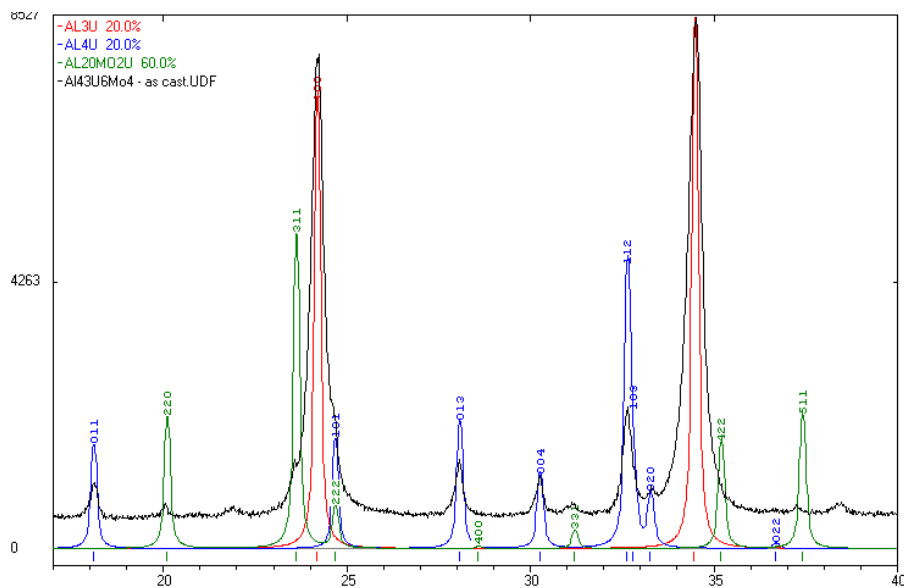


Figura IV-13. Difractogramas de la muestra $\text{Al}_{43}\text{Mo}_4\text{U}_6\text{-AC}$. XRD

La observación de la imagen generada por electrones retrodifundidos con SEM permitió corroborar la presencia de al menos tres fases dentro de la muestra (Figura IV-15).

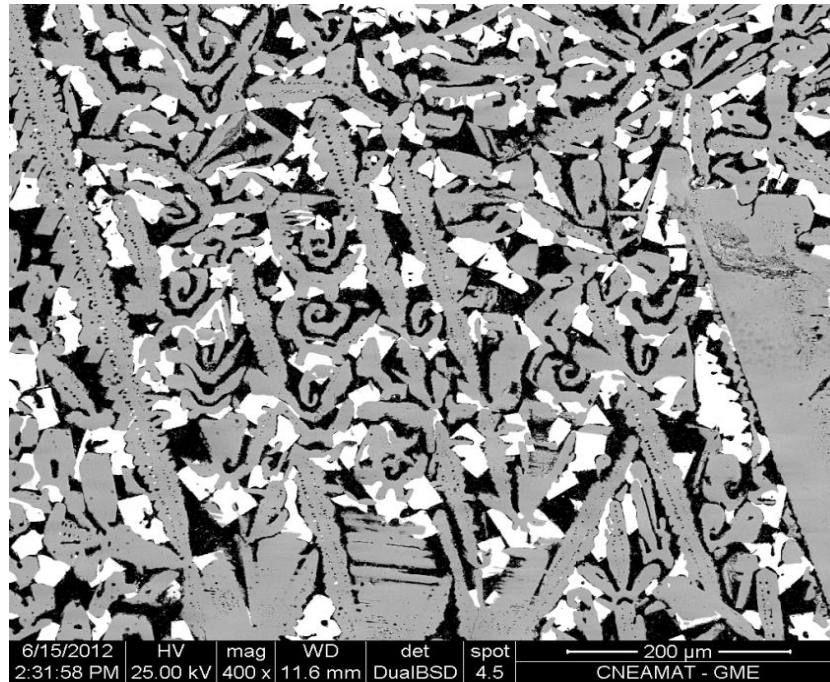


Figura IV-15. Imagen de electrones retrodifundidos de la aleación $\text{Al}_{43}\text{Mo}_4\text{U}_6$ -AC. SEM BSE

Con el objetivo de promover la formación y crecimiento de la fase de interés, $\text{Al}_{43}\text{Mo}_4\text{U}_6$, se trató la muestra térmicamente a 500°C durante 240h (*muestra $\text{Al}_{43}\text{Mo}_4\text{U}_6$ -TT1*) y se realizó una nueva identificación de estructuras cristalinas (Figura IV-14). En este caso las fases identificadas fueron las mismas mencionadas anteriormente siendo la única diferencia la relación de intensidades de los picos correspondientes a cada una de ellas. Una comparación de ambos difractogramas permitió concluir que el tratamiento térmico realizado promovió un aumento de la cantidad relativa de las fases UAl_4 y $\text{Al}_{20}\text{Mo}_2\text{U}$ y una disminución de la fase UAl_3 .

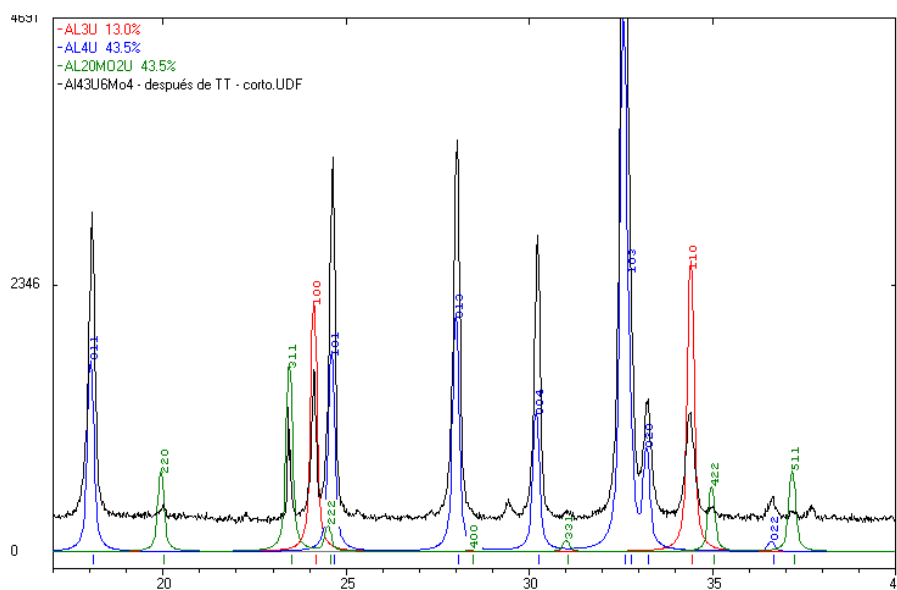


Figura IV-14. Difractogramas de la muestra $\text{Al}_{43}\text{Mo}_4\text{U}_6$ -TT1. XRD

En este difractograma se observa un mayor número de picos de baja intensidad los cuales corresponden nuevamente a la difracción para la radiación $K\beta$ del Co, pero en este caso de la fase UAl_4 . Al igual que para la muestra $Al_{43}Mo_4U_6-AC$, no se identificaron picos que pudieran ser asociados con la presencia de la fase $Al_{43}Mo_4U_6$ concluyéndose entonces que este tratamiento térmico no había promovido su formación.

En la Figura IV-15 se presenta la ubicación en un triángulo de Gibbs de las concentraciones de todas las fases identificadas por difracción de rayos X (UAl_3 , UAl_4 y $Al_{20}Mo_2U$), la fase de interés que se desea obtener ($Al_{43}Mo_4U_6$) y la concentración global real de la muestra obtenida del análisis químico realizado luego de la fundición. Como puede observarse, la concentración global de la muestra se encuentra en el interior de un triángulo cuyos vértices corresponden a las fases UAl_3 , UAl_4 y $Al_{20}Mo_2U$ por lo que cualquier tratamiento térmico que se le realice a esta muestra sólo cambiará la proporción relativa de las fases pero no promoverá la formación de la fase buscada.

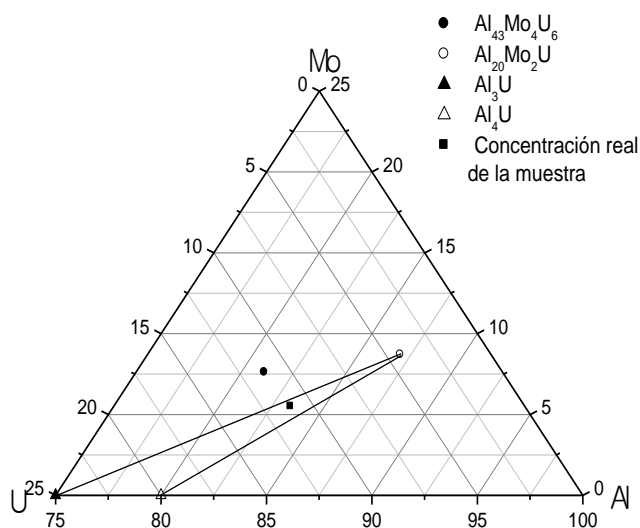


Figura IV-15. Triángulo de Gibbs con la concentración global de la muestra y las concentraciones de las fases $Al_{43}Mo_4U_6$, UAl_3 , UAl_4 y $Al_{20}Mo_2U$.

A partir de estos resultados obtenidos, y viendo que no se pudo obtener el compuesto de interés $Al_{43}Mo_4U_6$, se fundió una nueva muestra siguiendo los detalles experimentales de concentración inicial y tratamiento térmico de homogeneización descritos en [16]. Según describen los autores, para poder obtener una muestra mayoritariamente formada por la fase $Al_{43}Mo_4U_6$, la fundición debe realizarse partiendo de una mayor cantidad de Mo y menor cantidad de Al que la estequiométrica correspondiente a la fase de interés. El tratamiento térmico de homogeneización propuesto es de 384h (2 semanas) a $950^{\circ}C$.

Una vez fundida la muestra se observó la presencia de Mo puro remanente por lo que el botón se cortó con sierra de diamante rápida y se refundió según lo detallado en procedimiento experimental. Esta segunda fundición redujo el tamaño del Mo puro pero no logró eliminar por completo esta inhomogeneidad. La muestra luego de la segunda fundición es la que se denominó Al₄₀Mo₇U₆-AC en la TABLA IV-3.

Nombre de la muestra	Concentración para la fundición (% at)			Tratamiento Térmico
	Al	Mo	U	
Al ₄₀ Mo ₇ U ₆ -AC	76.1	13.4	11.3	No
Al ₄₀ Mo ₇ U ₆ -TT2	76.1	13.4	11.3	48h - 580°C + 384h - 950°C

TABLA IV-3. Nombre asignado, Concentración inicial, Tratamiento térmico para la aleación Al₄₀Mo₇U₆

La Figura IV-16 muestra una micrografía SEM de la muestra Al₄₀Mo₇U₆-AC en la que se observan por lo menos tres fases diferentes señaladas con los números 1, 2 y 3. Para cada una de ellas se presenta el diagrama EDS con los elementos identificados los cuales pueden observarse en las Figuras IV-17 a IV-19. La zona 1 corresponde a una fase formada por los tres elementos constitutivos de la muestra (U, Mo y Al), la zona 2 únicamente por U y Al y la zona 3 corresponde a Al puro remanente. El análisis de las estructuras cristalinas realizado a esta muestra, Figura IV-20, indicó la presencia de las fases Al₄₃Mo₄U₆, UAl₃, Al y, en menor cantidad, UAl₄. Estos resultados permiten asociar zona 1 con la fase ternaria de interés Al₄₃Mo₄U₆ (Figura IV-17), la zona 2 con UAl₃ y/o UAl₄ (Figura IV-18) y la zona 3 con el Al puro remanente (Figura IV-19).

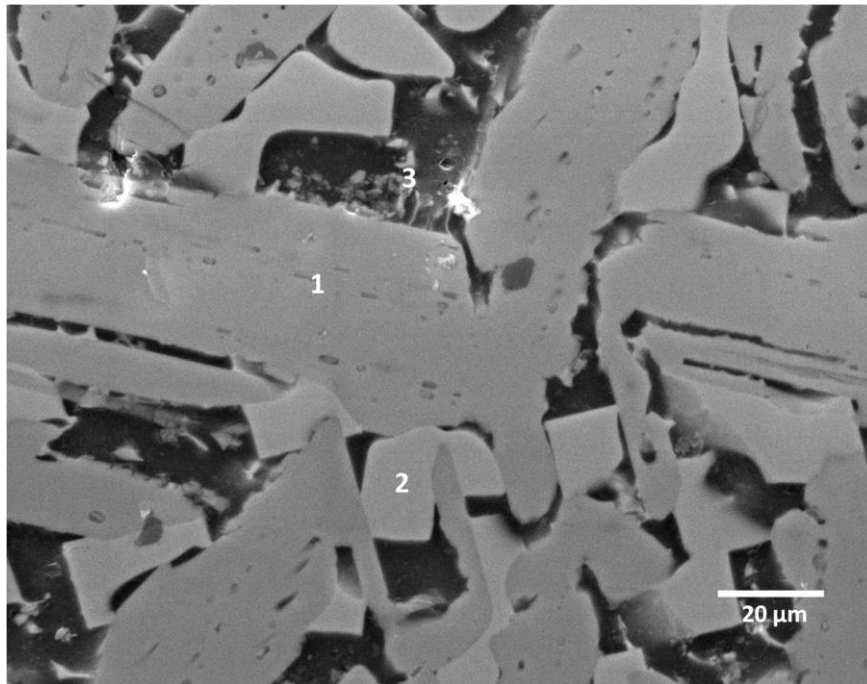


Figura IV-16. Micrografía de la muestra Al₄₀Mo₇U₆-AC e identificación de las distintas zonas observadas. SEM SE

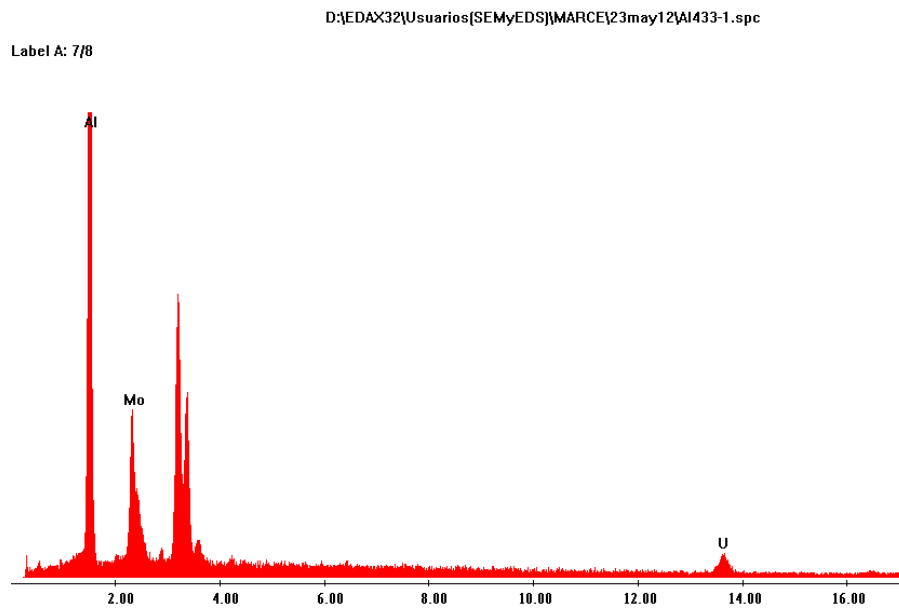


Figura IV-17. Determinación puntual de concentración en la zona 1 de la aleación Al₄₀Mo₇U₆-AC. EDS

Label A: 7/8

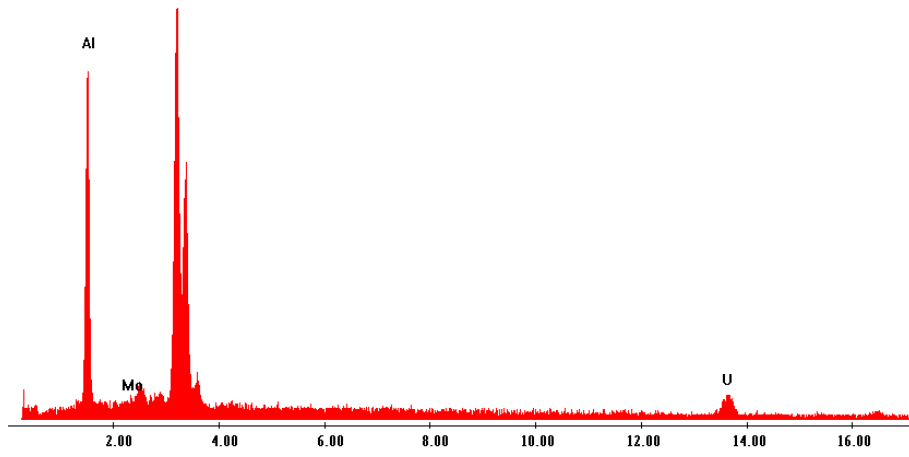


Figura IV-18. Determinación puntual de concentración en la zona 2 de la aleación $\text{Al}_{40}\text{Mo}_7\text{U}_6\text{-AC}$. EDS

Label A: 7/8

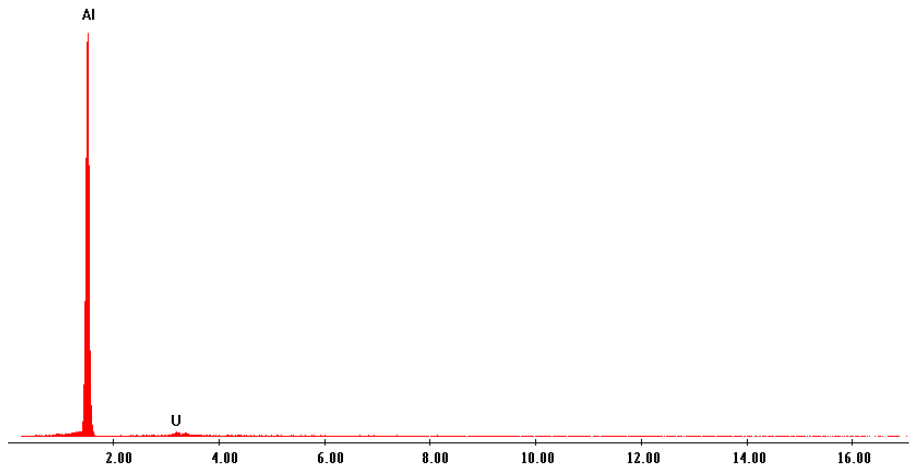


Figura IV-19. Determinación puntual de concentración en la zona 3 de la aleación $\text{Al}_{40}\text{Mo}_7\text{U}_6\text{-AC}$. EDS

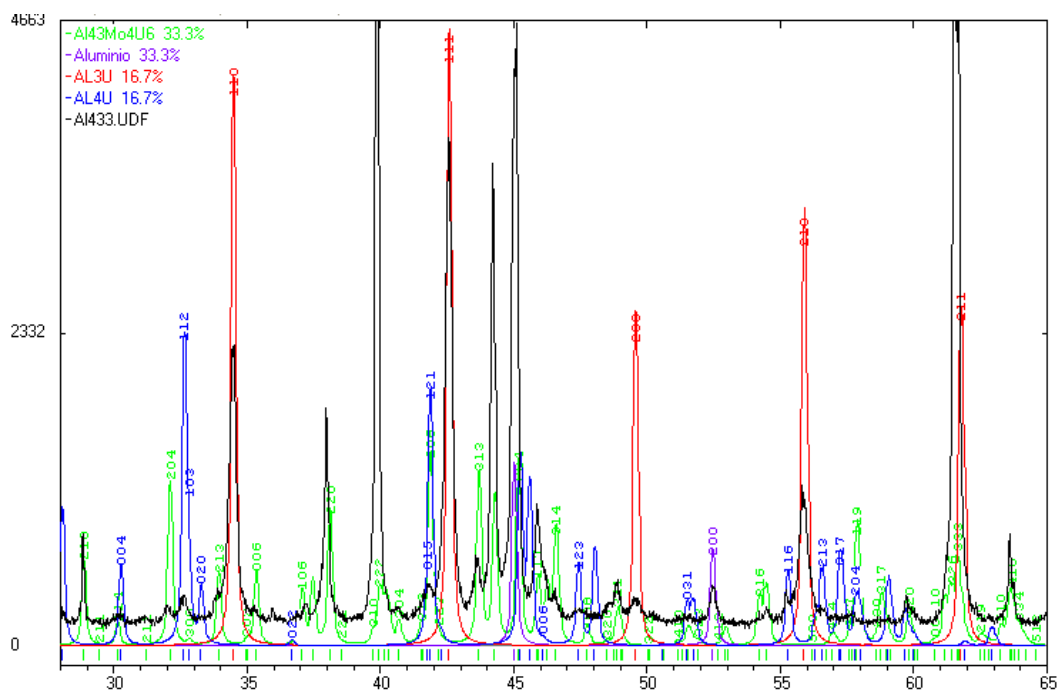


Figura IV-20. Identificación de estructuras cristalinas de la muestra $Al_{40}Mo_7U_6$ -AC. XRD

Dada la presencia de Al puro remanente en la muestra y teniendo en cuenta que su temperatura de fusión es $660^{\circ}C$, se realizó un tratamiento de 48h a $580^{\circ}C$, de modo de promover su difusión evitando así que se funda durante el tratamiento térmico de homogeneización de 384h a $950^{\circ}C$.

Luego de los tratamientos térmicos, se realizó a la muestra $Al_{40}Mo_7U_6TT2$, la identificación de estructuras cristalinas (Figura IV-21) pudiendo identificar las estructuras cristalinas de las fases $Al_{43}Mo_4U_6$ y, en menor cantidad, UAl_3 como las únicas fases presentes en la misma.

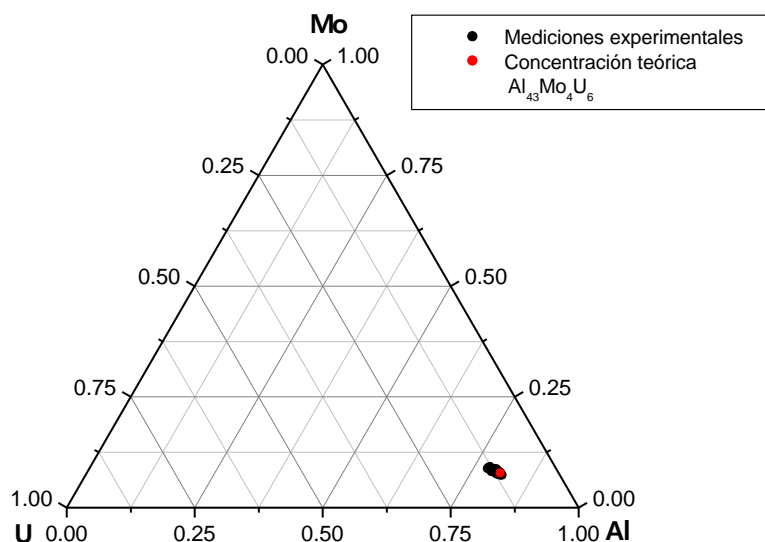


Figura IV-23. Triángulo de Gibbs con la concentración nominal de la aleación de interés y las mediciones experimentales obtenidas por EPMA.

En las Figuras IV-22 y IV-23 se observa que la concentración de los puntos medidos se encuentra alrededor de la composición nominal de la fase buscada con cierta dispersión propia de la técnica propiamente dicha. Esto permite concluir que la muestra $Al_{40}Mo_7U_6$ -TT2 está mayoritariamente formada por la fase $Al_{43}Mo_4U_6$ y una pequeña cantidad de UAl_3 , no habiendo indicios de la presencia de UAl_4 o Al puro.

Un gramo del polvo obtenido de la aleación $Al_{40}Mo_7U_6$ -TT2 (como es descrito en III-2-c) fue irradiado en el Reactor RA1 (según el plan de irradiación descrito en III-4) habiendo finalizado este proceso en Febrero de 2014 después de varios imprevistos en el funcionamiento del reactor. Actualmente se encuentra en período de decaimiento en piletta seca, y debido a los niveles de actividad que presenta, no se pudo aún realizar el estudio post-irradiación, motivo por el cual no se presentan los resultados en esta tesina.

CONCLUSIONES

El objetivo de este trabajo consistió en estudiar, independientemente, los efectos de la irradiación con neutrones en compuestos U_3Si_5 y $Al_{43}Mo_4U_6$. Con este objetivo, dos aleaciones parcialmente formadas por estas fases se irradiaron en el reactor RA1 hasta 0,02 dpa. Los primeros resultados de esta investigación llevan a las siguientes conclusiones:

Se puso a punto el método de fabricación de una aleación compuesta principalmente por la fase U_3Si_5 desde la composición estequiométrica, y a partir de su caracterización microestructural de fundición se estudió su comportamiento bajo irradiación neutrónica, no habiéndose observado cambios detectables en la morfología o en la estructura cristalina mediante las técnicas utilizadas y para los tiempos y flujos neutrónicos a los que estuvo sometida dentro del reactor. Además puede inferirse que no hay indicios de amorfización a las fluencias alcanzadas.

Se puso a punto el método de fabricación de una aleación compuesta principalmente por la fase $Al_{43}Mo_4U_6$ desde la composición no estequiométrica pudiéndose alcanzar la composición de interés mediante tratamientos térmicos de la estructura de fundición. Esta aleación ha sido irradiada en las mismas condiciones de flujo neutrónico que la aleación U_3Si_5 para poder hacer comparable el daño ante las mismas condiciones de irradiación. Por razones imponderables, a este compuesto no se le ha podido realizar aún el estudio post-irradiación.

Es importante señalar que esta investigación está en sus inicios e irradiaciones de mayor duración, junto con flujos más altos y utilizando aleaciones construidas con uranio de mayor enriquecimiento son necesarias para evaluar con mayor precisión el comportamiento de compuestos bajo irradiación de neutrones. Sin embargo, el presente trabajo fue fundamental para encontrar los parámetros para la puesta a punto del proceso de fabricación de las aleaciones, de los dispositivos de irradiación y el manejo de muestras irradiadas en relación con los equipos de caracterización.

TRABAJOS FUTUROS

- Fabricación de aleaciones con U de mayor enriquecimiento.
- Aumentar tiempos y flujos de irradiación para provocar mayor daño por radiación en las aleaciones de estudio.
- Utilización otras técnicas de caracterización con mayor sensibilidad y precisión en el estudio post-irradiación de aleaciones.

Cabe destacar que sería de gran utilidad para poder continuar avanzando en esta línea de investigación, poder contar con una instalación habilitada de

celdas calientes en la CNEA, que permita el manejo y preparación para análisis de las muestras activas salidas del proceso de irradiación neutrónica.

AGRADECIMIENTOS

Se agradece al personal técnico de la Gerencia de Materiales-GAEN-CNEA, RA1 reactor-GIRCEN-GAEN-CNEA, y Laboratorio de difracción de Rayos X-Departamento de Física de la Materia Condensada-GAI y ANN-CNEA por su apoyo.

Este trabajo fue parcialmente financiado por el Proyecto PICT-2010-1351, Agencia Nacional de Promoción Científica y Tecnológica (Argentina), FONCyT

REFERENCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1].- Tesis doctoral "Interdifusión entre aleaciones de U-Mo y Al. Ensayo de irradiación" Dra M. Mirandou. Inst. de Tecnología J. Sabato. 10-15. 2011
- [2].- Proyecto de inversión RA10, GAEN, Comunicación interna.
- [3].- <http://www.cnea.gov.ar>
- [4].- D. M. Wachs, RERTR Fuel Development and Qualification Plan, INL/EXT – 05-01017 Rev. 3, Enero, 2007.
- [5].- J. Snelgrove, G. Hofman, M. Mayer, C. Trybus, T. Wiencek, Nuclear Engineering and Design 178 (1997) pp 119-126. PII S0029-5493(97)00217-3.
- [6].- G. Hofman Y. Kim, M. Finlay, J. Snelgrove, S. Hayes, M. Mayer, C. Clark, F. Huet, 8th International Topical Meeting on Research Reactor Fuel Management (RRFM), 21-24 de Marzo, 2004, Munich, Alemania. <http://www.euronuclear.org/meetings/rfrm2006>
- [7].- G. Hofman, M. Finlay y Y. Kim, RERTR-2004 International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, 7-12 de Noviembre, 2004, Viena, Austria. <http://www.rertr.anl.gov>.
- [8].- P. Staples y N. Butler, 11th International Topical Meeting on Research Reactor Fuel Management (RRFM) and Meeting of the International Group on Reactor Research (IGORR), 11-15 de Marzo, 2007, Lyon, Francia. <http://www.euronuclear.org/meetings/rfrm2007>.
- [9].- J Gan. D.D. Kaiser Jr, B.D. Miller, D.M. Wachs, T.R. Allen, M. Kirk, J. Rest "Microstructure of RERTR DU-alloys irradiated with krypton ions up to 100 dpa". Journal of Nuclear Materials, 411, 174-180, 2011
- [10].- A.M. Fortis, "Daño por Radiación", Maestría en Cs. y Tecn. de Materiales, Instituto J. Sabato-UNSAM-CNEA, Apunte 84/12, 2012.
- [11].- J.A. Brinkman, Am. J. Phys., 24, n° 1-9, (1956), 246.
- [12].- A. Seeger, Proc. Second. International Conf. on Peaceful uses of Atomic Energy, New York, (1958), 250.
- [13].- G.H. Kinchin y R.S. Pease, Report on the Progress in Physics, 18, (1955), 1.
- [14].- M.J. Norgett, M.T. Robinson, e I.M. Torrens, Nucl. Eng. Des., 33, (1975), 50.
- [15].- T. Diaz de la Rubia y M.W. Guinan, Mat. Sci. Forum 97-99, (1992), 23.

- [16].- H. Noel, O. Tougait, S. Dubois, Nucl. Mater. 389 (2009) 93-97.
- [17].- M.W. Thompson, "Defects and Radiation Damage in Metals", Cambridge University Press, (1969).
- [18].- G.Fenning, H. Klewe Nebenius, W. Seelmann Eggebert. Karlsruher Nuklidkarte. 6 Auflage 1995.