



**INSTITUTO DE
TECNOLOGIA**

PROF. JORGE A. SABATO

**UNIVERSIDAD NACIONAL
DE GENERAL SAN MARTIN**

**COMISION NACIONAL
DE ENERGIA ATOMICA**

**MAESTRIA EN
CIENCIA Y
TECNOLOGIA
DE MATERIALES**

**FRAGILIZACIÓN POR IRRADIACIÓN
EN ACEROS DE RECIPIENTE A
PRESIÓN DE CENTRALES NUCLEARES.
ESTUDIO POR LAZOS DE HISTÉRESIS
MAGNÉTICOS**

Nicolás Guerra Méndez

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

FRAGILIZACIÓN POR IRRADIACIÓN EN ACEROS DE
RECIPIENTE A PRESIÓN DE CENTRALES NUCLEARES.
ESTUDIO POR LAZOS DE HISTÉRESIS
MAGNÉTICOS(*)

por Ing. Nicolás Guerra Méndez

Directores

Dra. Ana María Fortis
Dr. Joaquín Sacanell

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

República Argentina

2012



AGRADECIMIENTO

Primero agradezco a Dios, por todo lo logrado hasta ahora, a mis directores de tesis, la Dra. Ana María Fortis y al Dr. Joaquín Sacanell, por su valiosa colaboración y paciencia.

Agradezco al Lic. Rodolfo Kempf por su dedicación y aporte de ideas fundamentales para el desarrollo de esta tesis.

A los integrantes de la División Daño por Radiación y personal del reactor RA-1 de la CNEA por su afectuoso e incondicional apoyo en todo este tiempo. Al Centro atómico Constituyente y al Instituto Jorge Sabato, quienes permitieron realizar mis ensayos y me formaron con sus conocimientos.

DEDICATORIA

Este logro alcanzado se lo dedico a mis padres, Dr. Nicolás Guerra Bozza y Carmen Méndez González por haberme dado todo su apoyo y por ser unos grandes amigos.

A Johanna Huamán A. por su amor, paciencia y comprensión a mis hermanas, sobrinos y primos por darme confianza, valor y fuerza para nunca rendirme.

Índice General

RESUMEN	1
ABSTRACT	2
OBJETIVOS	3
INTRODUCCIÓN	4
CAPÍTULO 1	7
1. Fundamentos teóricos	7
1.1 Defectos en la estructura cristalina	7
1.2 Daño en la matriz por radiación neutrónica	8
1.3 Sección eficaz de desplazamiento	9
1.4 Formación de defectos	11
1.5 Distribución espacial del daño neutrónico	15
1.6 Daño en la matriz por precipitados en solución sólida	16
CAPÍTULO 2	18
2. Efecto de la radiación sobre las propiedades de los materiales	18
2.1 Introducción	18
2.2 Principales efectos de la irradiación neutrónica	19
2.3 Endurecimiento por irradiación	20
2.4 Fragilidad en los recipientes a presión por irradiación	22
2.5 Campos magnéticos	24
2.6 Materiales ferromagnéticos	26
2.7 Dominios y ciclos de histéresis	26
2.8 Método de análisis del menor lazo de histéresis	30
CAPÍTULO 3	32
3. Introducción	32
3.1 Antecedentes	32
3.2 El reactor RA1	32
3.3 Irradiación	34
3.4 Ensayo Charpy en las Celdas Calientes	37
3.5 Ensayo Magnético	40

CAPÍTULO 4	46
4. Resultados.....	46
4.1 Resultados del ensayo tipo Charpy	46
4.2 Resultados del ensayo magnético	48
CAPÍTULO 5	57
5. Discusión	57
CAPÍTULO 6	63
6. Conclusiones.....	63
REFERENCIAS	64
APÉNDICE A	68
APÉNDICE B.....	70
PUBLICACIONES.....	83

Índice de figuras

Figura 1.1 Comienzo de la cascada de colisiones.....	12
Figura 1.2 Esquema de la zona desnuda según Brinkman	13
Figura 1.3 Modelo de Seeger.....	14
Figura 1.4 Formación de lazos de dislocaciones por colapso de aglomerados de vacancias e intersticiales.	15
Figura 2.1 Región de transición dúctil-frágil en acero ferríticos.....	23
Figura 2.2 Corrimiento de transición dúctil-frágil en acero ferríticos irradiados.....	24
Figura 2.3 Dominios magnéticos en un grano.....	27
Figura 2.4 Estructura del Fe BCC con los momentos magnéticos alineados en la dirección del campo aplicado	27
Figura 2.5 Dominios magnéticos y paredes de Bloch.....	28
Figura 2.6 Crecimiento y reorientación de los dominios con la aplicación de un campo magnético	29
Figura 2.7 Ciclo de histéresis con la orientación de los dominios magnéticos.	30
Figura 2.8 Menor lazo de histéresis.	31
Figura 3.1 Reactor nuclear RA-1	33
Figura 3.2 Columna central de irradiación.....	34
Figura 3.3 Probeta tipo Charpy según norma ASTM A370.....	36
Figura 3.4 Cápsula para irradiación	36
Figura 3.5 Facilidad para irradiar	37
Figura 3.6 Máquina de Ensayo Tipo Charpy	38
Figura 3.7 Sistema de calentamiento y enfriamiento.....	39
Figura 3.8 Máquina de Ensayo Tipo Charpy instrumentado del CAE	39
Figura 3.9 Esquema de curva Charpy para material irradiado y no irradiado.....	40
Figura 3.10 Magnetómetro de muestra vibrante VersaLab.....	41
Figura 3.11 Partes del magnetómetro de muestra vibrante (Versalab).....	42
Figura 3.12 Caja de guantes del CNEA	43

Figura 3.13	Porta muestra para análisis en el magnetómetro de muestra vibrante	43
Figura 3.14	Medición de la muestra irradiado con el dosímetro	43
Figura 3.15	Ciclo de histéresis creciente.....	44
Figura 3.16	Ciclo de histéresis	45
Figura 3.17	Variables para el cálculo del campo coercitivo y para la determinación del error.	45
Figura 4.1	Curva de temperatura de transición dúctil-frágil de material no irradiado e irradiado a diferentes factores de avance.....	48
Figura 4.2	Curva de magnetización del acero SA 508 clase 3 con campo magnético aplicado creciente hasta 100 Oe	50
Figura 4.3	Tres ciclos de la muestra no irradiada con campo magnético aplicado de 100 Oe para cálculo del campo coercitivo promedio y errores	51
Figura 4.4	Curva del campo coercitivo del acero SA 508 clase 3 muestra no irradiada.....	53
Figura 4.5	Curva del campo coercitivo con sus respectivos errores del acero SA 508 clase 3 muestra no irradiada	54
Figura 4.6	Curva del campo coercitivo con sus respectivos errores del acero SA 508 clase 3 muestra irradiada con FA= 500.....	56
Figura 5.1	Curva de comparación entre campos coercitivos de los aceros de las muestra no irradiada e irradiadas con distintos factores de avance	58
Figura 5.2	(a) Esquema de distancia (D) entre defectos para muestra con FA=250. (b) Esquema de distancia (d) entre defectos para muestra con FA=500.....	60

Índice de tablas

Tabla 1.1 Valores de camino libre medio entre desplazamientos para algunos metales.....	11
Tabla 1.2 Etapas de la cascada de colisiones	15
Tabla 3.1 Plan de irradiación.....	35
Tabla 3.2 Composición química del acero en estudio (wt. %).....	36
Tabla 4.1 Temperaturas de ensayo de impacto Charpy de las probetas no irradiadas	47
Tabla 4.2 Temperaturas de ensayo de impacto Charpy de las probetas irradiadas con FA=250.....	47
Tabla 4.3 Temperaturas de ensayo de impacto Charpy de las probetas irradiadas con FA=500.....	47
Tabla 4.4 Peso de las muestras del polvo de acero SA 508 clase 3.....	49
Tabla 4.5 Campos Coercitivos interpolados y promediados de la muestra No irradiada del ciclo 1.....	50
Tabla 4.6 Campo coercitivo promedio muestra No irradiada ciclo 2.....	51
Tabla 4.7 Campo coercitivo promedio muestra No irradiada ciclo 3.....	52
Tabla 4.8 Campo coercitivo de la muestra no irradiada	52
Tabla 4.9 Error de medición del campo coercitivo.....	54
Tabla 4.10 Campo coercitivo de la muestra irradiada con FA= 250.....	55
Tabla 4.11 Error de medición del campo coercitivo muestra irradiada con FA= 250	55
Tabla 4.12 Campo coercitivo de la muestra irradiada con FA= 500.....	56
Tabla 4.13 Error de medición del campo coercitivo muestra irradiada con FA= 500	56

RESUMEN

El estudio de la fragilización por irradiación en recipientes a presión de centrales nucleares estudiado por lazos de histéresis magnéticos es un proyecto del grupo Daño por Radiación del Departamento Materiales. El proyecto busca conocer el efecto que tiene la aceleración de la irradiación en el comportamiento mecánico de los aceros que componen los recipientes a presión y comprobar si los resultados de los programas acelerados son conservativos. En este caso se estudió el acero SA 508 clase 3 que es el utilizado en la fabricación de los recipientes a presión de la Atucha II y del reactor Carem. Se estudió el comportamiento magnético de este acero como otra técnica con la que es posible obtener información sobre el estado del material bajo distintas condiciones de irradiación, esta técnica es prometedora dentro de los programas de vigilancia de los recipientes a presión ya que requiere menor cantidad de material y una facilidad experimental superior. Se muestran los corrimientos de la temperatura de transición dúctil-frágil obtenidos en las irradiaciones llevadas a cabo en el reactor RA-1 donde se irradiaron dos juegos de probetas Charpy con entalla en V con factores de avance de 500 y 250, con respecto al un juego de probetas Charpy sin irradiar que se tiene como referencia. Las irradiaciones se realizaron en un dispositivo bajo atmósfera controlada, a temperaturas idénticas a las de servicio y se obtuvieron datos fractomecánicos a través de ensayos en celdas calientes. Sobre el material irradiado se aplicó el método magnético obteniéndose diferencias en el comportamiento para los distintos estadios de irradiación. Del estudio de los lazos menores de histéresis magnética se obtuvo una correlación entre los diferentes factores de avance de la irradiación y los valores del campo coercitivo. Se interpreta este comportamiento teniendo en cuenta las diferencias en la estructura de defectos creadas por las distintas condiciones de irradiación y su interacción con las paredes de dominios magnéticos.

ABSTRACT

In this thesis it is presented the results obtained within the project to study the effect of lead factors on the mechanical behavior of Reactor Pressure Vessel steels. Two sets of Charpy specimens with V notch of SA-508 type 3 steel, material of Atucha II and CAREM Reactor Pressure Vessels, were irradiated in the RA-1 reactor and one set of Charpy specimens is use as reference. The irradiations were made at the same in service power reactor temperature, and with different lead factors to obtain mechanicals data and to know their dependence on the diffusion of alloying elements. It is shown the shifting of the ductile-brittle transition temperature in each case. A method to obtain the magnetic coercive field of irradiated materials was applied. It is studied the magnetic behavior of this steel as another technique that can obtain information on the status of the material under different conditions of irradiation; this technique is promising in the monitoring programs of pressure vessels requiring fewer experimental material. From the study of magnetic hysteresis minor loops a correlation between different lead factors and coercive field values was obtained. This behavior is interpreted taking into account differences in the structure of defects created by different irradiation conditions and their interaction with magnetic domain walls.

OBJETIVOS

El objetivo de esta tesis es encontrar un método alternativo, como lo es el método magnético, para obtener información sobre los defectos en la red cristalina de los aceros y estudiar la posibilidad de que pueda ser técnicamente aplicado para las mediciones in situ del estado de fragilización de los recipientes a presión de los reactores nucleares. La variación de las propiedades magnéticas y su posible correlación con las propiedades mecánicas permitirían reemplazar los ensayos convencionales de los programas de vigilancia por la aplicación de una técnica que requiere menos material, con la consecuente economía y seguridad en las operaciones involucradas.

Para la realización de esta tesis se partió de un acero SA 508 clase 3 que fue irradiado en el reactor RAI (CAC-CNEA) bajo distintas condiciones y que fue ensayado mecánicamente para obtener los corrimientos de la temperatura de transición dúctil-frágil en cada caso.

Los objetivos específicos de esta tesis fueron:

- Realizar el estudio preliminar de las propiedades magnéticas de las muestras no irradiadas.
- Medir el campo coercitivo H_c para cada estructura de defectos y de precipitados, es decir, para cada condición de irradiación y obtener las curvas de magnetización y los lazos de histéresis en los materiales irradiados y no irradiados.
- Correlacionar las propiedades magnéticas y la estructura de defectos generada por la irradiación neutrónica.
- Determinar si con las propiedades magnéticas se puede obtener un método alternativo no destructivo y con menor material para establecer el estado de fragilización de aceros de recipiente a presión (RPV) y el efecto del factor de avance.

INTRODUCCIÓN

La integridad de los componentes de los reactores de potencia a lo largo de su vida en servicio se ve comprometida por la degradación que sufren los materiales que los componen. Esta degradación proviene de las condiciones ambientales, particularmente la acción de la radiación. Esta última provoca tal deterioro que hace que la vida de los reactores dependa esencialmente de que las propiedades de los materiales estructurales se mantengan durante un tiempo limitado, más allá del cual el costo de reemplazar ciertos componentes hacen inviable continuar operando la instalación.

Entre los componentes posibles del daño por radiación están los recipientes a presión de centrales como las de Atucha I, Atucha II y CAREM. Por radiación un recipiente a presión fragiliza de modo tal que bajo ciertas condiciones accidentales podría producirse la rotura catastrófica del mismo y, como consecuencia, el fin de la planta y el incommensurable impacto ambiental.

Desde el punto de vista de la tecnología nuclear, la importancia fundamental del fenómeno de fragilización de un recipiente a presión radica en que, al ser un componente no redundante ni reemplazable del sistema primario en una central nuclear, la vida efectiva de utilización de la planta se ve limitada a un periodo en que las propiedades del recipiente sean confiables.

Para garantizar la integridad de las plantas se realizan programas de vigilancia irradiando muestras del acero en forma acelerada para seguir la evolución del material a distintas dosis de irradiación. En estos programas de vigilancia se realizan ensayos de impacto Charpy en muestras irradiadas en ciertos lugares de los reactores bajo vigilancia donde reciben mayor flujo neutrónico que el propio recipiente, o se ensayan muestras del material irradiadas en reactores experimentales. Sin embargo la naturaleza del daño por irradiación hace que la aceleración de la irradiación en estos casos no siempre dé resultados conservativos con respecto a lo que realmente está sucediendo con el recipiente en servicio.

Al irradiar con neutrones una muestra de acero ferrítico se produce un corrimiento de la temperatura de la transición dúctil-frágil del material (DBTT). Esto se comprueba experimentalmente analizando los resultados de los ensayos de impacto tipo Charpy. Este ensayo mide la energía absorbida por la muestra durante el impacto, antes y después de la

irradiación. Al correrse la DBTT a valores mayores de temperatura pone al recipiente en condiciones de fragilidad en el caso que deba bajarse bruscamente la temperatura por accidente (tipo LOCA; "Lost of Coolant Accident).

Los estudios basados en termodinámica, cinética y micromecánica del proceso de daño de materiales por irradiación neutrónica permitieron identificar dos mecanismos de fragilización [1][2]:

- Daño de la matriz debido a la formación durante la irradiación de agregados de defectos puntuales y lazos de dislocaciones (SMD, stable matrix defects).
- Formación de nano precipitados ricos en cobre y otros aleantes favorecidos por la irradiación (CRP, Cu rich precipitates).

Ambos procesos se traducen en un incremento del número de obstáculos para el movimiento de las dislocaciones, lo que en última instancia causa la fragilización.

El Grupo de Daño por Radiación del Dpto. Materiales de CNEA ha llevado a cabo irradiaciones de aceros de recipientes a presión (RPV) de las centrales nucleares Atucha II y CAREM con distintas aceleraciones con el objeto de determinar su efecto en el comportamiento mecánico, en particular su fragilidad [3].

Las normas para realizar programas de vigilancia en recipientes a presión refrigerados por agua (ASTM, E 185-82) recomiendan que los factores de avance (FA) se encuentren en el rango de uno a tres. Los ensayos realizados hasta ahora en distintos reactores experimentales del mundo del material de nuestras centrales llegan a factores mucho más altos (≥ 800), lo que no garantiza que el daño por radiación sea similar al sufrido por los recipientes en servicio. Es decir, si bien existen normas que aconsejan cual es la aceleración máxima admisible (factor de avance), no se sabe con certeza cuál es su efecto en propiedades que dependen, entre otros factores, de la difusión de aleantes, o sea de la intensidad de la irradiación y del tiempo.

Como una alternativa al ensayo de impacto Charpy, un método de estudio de la evolución del daño que requiere poco material irradiado, con lo que se garantiza además la posibilidad del manipuleo del mismo sin riesgos para los investigadores, es el de la determinación de la variación de las propiedades magnéticas de los materiales irradiados. La evolución de las

propiedades se realiza determinando en la curva de magnetización, la magnitud del campo magnético coercitivo H_c y la modificación del ciclo de histéresis y el consecuente cambio del área. La radiación neutrónica genera aglomerados de defectos y favorece la creación de nano precipitados ricos en Cu, Mn y otros aleantes que provocan la modificación de la forma del ciclo de histéresis [4]. Al mismo tiempo, las propiedades sensibles a la estructura magnética dan cuenta de la distribución y la densidad de dislocaciones.

En este trabajo se describen los resultados de los ensayos mecánicos llevados a cabo y la técnica magnética aplicada, y se analiza la validez de ésta última para mostrar diferencias en comportamiento para diferentes condiciones de irradiación. Se discute la validez de la técnica magnética como complementaria de otras técnicas para determinar el estado de fragilización del acero estudiado.

CAPÍTULO 1

1. Fundamentos teóricos

1.1 Defectos en la estructura cristalina

El cristal perfecto no existe, todos tienen un gran número de defectos e imperfecciones de características bien variadas, que pese a que comparativamente representan pequeñas desviaciones del concepto de cristal perfecto, juegan un papel muy importante en el control de las propiedades físicas del material.

La presencia en el medio ambiente de partículas atómicas o subatómicas y ondas electromagnéticas de distinta longitud de onda producto de la desintegración radiactiva nuclear se la conoce con el nombre general de radiación. También abarca a los rayos X aunque no sean éstos producto de procesos nucleares.

La radiación interactúa con los materiales introduciendo modificaciones en la cantidad y naturaleza de los defectos de los materiales cristalinos, lo que trae como consecuencia una variación importante en sus propiedades.

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.

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 intenso. El arreglo espacial de defectos y su naturaleza después de que un material ha sido irradiado se describe como "daño por radiación".

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 interactuar 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 un proceso de

dispersión elástica, lo que da como resultado la mayor parte de los cambios físicos y químicos de los materiales irradiados.

1.2 Daño en la matriz por radiación neutrónica

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 y estabilidad microscópica.

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

En las reacciones de fisión que se producen en los combustibles nucleares por el bombardeo neutrónico, se liberan a su vez otros neutrones; algunos continúan la reacción de fisión y otros "escapan" e interactúan con los materiales estructurales. Estos neutrones impactan en los aceros ferríticos que forman los recipientes de presión de los reactores de agua pesada provocando a los largo del tiempo la modificación de sus propiedades. Por esta razón es que es imprescindible predecir el daño que esta radiación pueda ocasionar para prevenir accidentes y estimar la vida útil del reactor [5][6][7].

El daño por radiación abarca desde la creación de defectos en la estructura atómica hasta la variación sustancial de las propiedades físicas debidas a la evolución de dichos defectos.

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, y pueden ocurrir en todo el volumen de los materiales en forma homogénea,

independiente de sus tamaños. Esto implica que las propiedades mecánicas son alteradas en forma profunda por el bombardeo neutrónico.

Las colisiones de los neutrones con los núcleos de los materiales pueden ser tanto elásticas (colisiones clásicas de esferas duras), o inelásticas. Para que ocurra una colisión tal que produzca un desplazamiento atómico el neutrón debe tener una energía $E_n > 100$ eV. La energía umbral para los desplazamientos, T_d , depende del núcleo blanco y de la dirección de colisión, pero, en principio es de unas decenas del eV [8].

1.3 Sección eficaz de desplazamiento

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

$$\sigma(\Omega) = \frac{\text{n}^\circ \text{ de partículas desplazadas en } \delta\Omega \text{ por unidad de tiempo}}{\text{intensidad incidente}} \quad [\text{Ecuación 1.1}]$$

Se deduce que $\sigma(\Omega)\delta\Omega = \sigma(E_n, T_p) \delta T_p = -2\pi p \delta p$, en donde Ω es el ángulo sólido, p el parámetro de impacto y T_p la energía del átomo desplazado o energía transferida [1].

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

$$\sigma_d(T_p) = \int_0^{T_p^m} P(T_p) \frac{\delta\sigma}{\delta T_p}(E_n, T_p) \delta T_p \quad [\text{Ecuación 1.2}]$$

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

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

$$T_p = \Lambda E_n \text{sen}^2(\varphi/2) \quad [\text{Ecuación 1.3}]$$

Con

$$A = \frac{4M_n M_p}{(M_n + M_p)^2}$$

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

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

$$T_p^m \cong \frac{4}{A} E_n \quad [\text{Ecuación 1.4}]$$

Donde A es la masa atómica del átomo colisionado.

Si la dispersión es isotrópica, entonces, la energía transferida promedio es $T = T_p^m/2$. Si se toma $T_p = T_d \approx 25$ eV, se obtiene la energía neutrónica mínima para desplazar un átomo en colisión directa que, por ejemplo para Mg es 150 eV, para el Zn y para el Cu es 400 eV y para el Zr, 575 eV [9].

Si un haz de neutrones es de densidad $n[\text{cm}^{-3}]$ y velocidad $v[\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}]$, 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 $\Sigma nv = \Sigma \phi$ da el número de interacciones entre neutrones y núcleos por cm^3 de material irradiado y por segundo, 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 :

$$\text{Ritmo de interacción} = \frac{nv}{\lambda} \left[\frac{\text{neutrones}}{\text{cm}^3/\text{s}} \right] = \Sigma nv \quad [\text{Ecuación 1.5}]$$

O sea,

$$\lambda = \frac{1}{\Sigma} = \frac{1}{n_0 \sigma} \quad (cm) \quad [\text{Ecuación 1.6}]$$

Entonces el camino libre medio para producir desplazamientos podrá expresarse:

$$\lambda_d = \frac{1}{n_0 \sigma_d} \quad [\text{Ecuación 1.7}]$$

En la Tabla 1.1 se dan algunos valores de camino libre medio entre desplazamientos para algunos metales y para energías neutrónicas típicas.

Tabla 1.1 Valores de camino libre medio entre desplazamientos para algunos metales

	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	86	2.46	0.43	9.4

Como se observa de los valores de esta tabla, la distancia entre choques es del orden de los centímetros, lo que indica que para una muestra de dimensiones normales el evento es poco probable, siendo muy posible que el neutrón atraviese la muestra sin haber interactuado. Sin embargo, en un medio como el núcleo de un reactor, con flujos neutrónicos del orden de $10^{12} - 10^{13} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ o mayores, los eventos se producen en forma homogénea en todo el volumen del material irradiado.

1.4 Formación de defectos

La formación del primer átomo chocado y desplazado (PKA , primary knock-on atom) es equivalente a la formación de un par intersticial-vacancia, llamado par de Frenkel, y constituye la estructura básica del daño (Fig. 1.1). 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.[8].

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

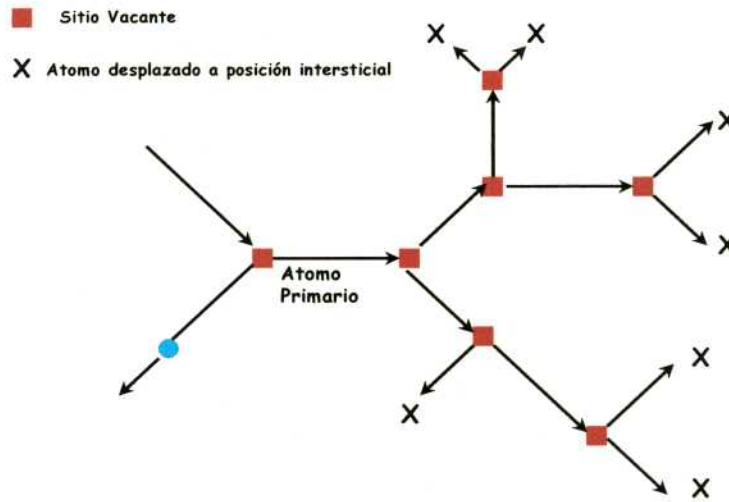


Figura 1.1 Comienzo de la cascada de colisiones

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.

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 permiten no sólo estimar el número de átomos desplazados, sino también su distribución espacial. Además se obtiene el camino libre medio entre colisiones de

desplazamiento en función de la energía incidente. A medida que la energía del primer átomo vaya decayendo tras sucesivas colisiones binarias, estas colisiones se producen a intervalos espaciales cada vez más cortos hasta que las distancias entre dos colisiones se hacen comparables con la distancia interatómica. Luego empieza una interacción colectiva. La energía límite del átomo para el cual el camino libre medio se hace igual a la distancia interatómica se la conoce como energía límite (TL). En el caso del cobre, por ejemplo, esta energía se estima en 4 Kev.

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) [10], como se muestra en la figura 1.2. Si la energía de la partícula incidente es muy grande, la cascada exhibe la tendencia a separarse en subcascadas.

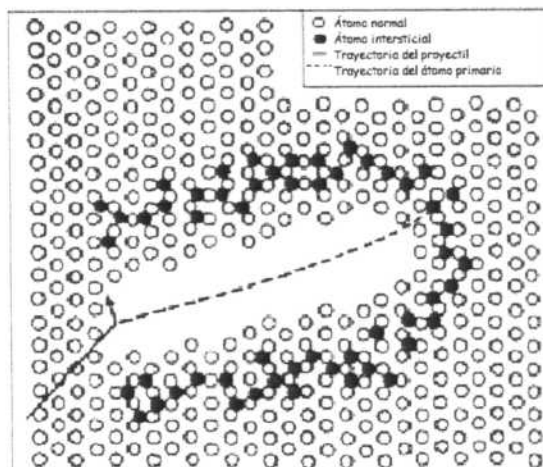


Figura 1.2 Esquema de la zona desnuda según Brinkman

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 (modelo de Seeger) [11].

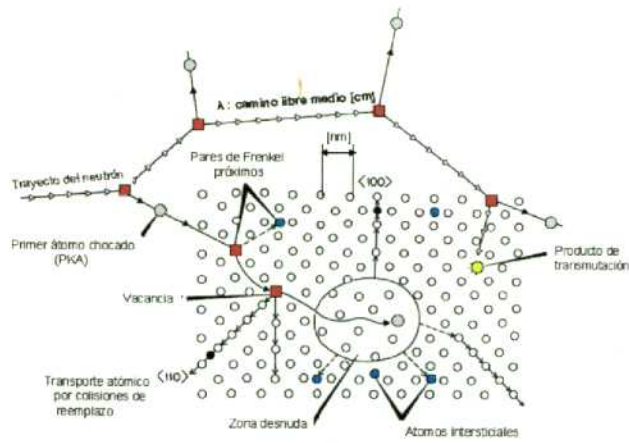


Figura 1.3 Modelo de Seeger

- 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.
- Debido a la transferencia relativamente lenta de energía entre los componentes de los subsistemas de iones y electrones (la cual en primera aproximación es proporcional a la relación de masas entre el electrón y el ion), o sea la termalización, requiere un tiempo mayor de 10^{-11} segundos, que es un tiempo en el que ocurren varias vibraciones atómicas. El posterior desarrollo en la cascada suele llamarse fase de relajación y es 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 termo-transporte (movimiento de vacancias contra el gradiente térmico de la periferia al centro de la cascada) y el movimiento de intersticiales a lo largo de los gradientes de temperatura y concentración. Entonces el desarrollo completo de la cascada de colisiones se puede separar esquemáticamente en varias etapas lo que se resume en la siguiente tabla 1.2.

Las primeras tres etapas ocurren a tiempos menores que 10^{-11} segundos y están determinadas por los procesos de colisión. La consecuente distribución de defectos formados: defectos aislados, pares de Frenkel, zonas desnudas, se conoce como estado

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

Tabla 1.2 Etapas de la cascada de colisiones

Evento	Tiempo (s)	Resultados
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.

1.5 Distribución espacial del daño neutrónico

Como resultado del impacto de cada neutrón con un átomo blanco, se forma entonces una cascada conformada por un gran número de defectos puntuales y con una colisión colectiva al final del trayecto del PKA; se genera una distribución espacial en donde en cada colisión colectiva surge un aglomerado de vacancias, con los intersticiales desplazados ubicados en la periferia; las vacancias son comprimidas hasta formar discos que son transformados luego en lazos de dislocaciones (Fig. 1.4). Se puede demostrar que cuando un aglomerado tiene un número suficiente de vacancias, un lazo de dislocaciones tiene la menor energía de formación [11].

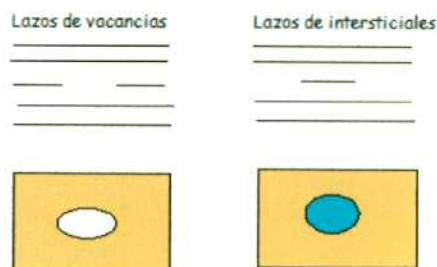


Figura 1.4 Formación de lazos de dislocaciones por colapso de aglomerados de vacancias e intersticiales.

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

A diferencia de los lazos de vacancias, este tipo de proceso con los intersticiales requiere cierta activación térmica, por lo que será factible después de cierto tiempo cuando los procesos de difusión hayan comenzado a modificar la estructura inicial del daño. Sin embargo, luego de algunas simulaciones hechas con dinámica molecular, existe alguna evidencia de la formación atómica de cierto tipo de aglomerados de intersticiales en los primeros instantes de vida de la cascada [9].

Si los lazos de dislocaciones son suficientemente grandes ($\geq 20 \text{ \AA}$), pueden ser resueltos por microscopía electrónica de transmisión y, además, su tipo (vacancia/intersticial) puede determinarse por técnicas de contraste. Sin embargo los lazos resultantes del evento de colisión (lazos atómicos) 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 [9].

1.6 Daño en la matriz por precipitados en solución sólida

Cuando se irradia a un material se produce un número de defectos puntuales, en particular vacancias, por encima del equilibrio termodinámico. Esta sobreconcentración de vacancias puede incrementar los procesos difusivos conduciendo esto a una redistribución de solutos sustitucionales.

Los solutos conforman precipitados que van cambiando su tamaño y naturaleza según la sobreconcentración de vacancias, es decir, del ritmo del flujo neutrónico a que está sometido el material.

Los precipitados así conformados intervienen en la variación de las propiedades mecánicas, en particular el endurecimiento por irradiación.

La fragilidad (o pérdida de ductilidad) aumentada por la radiación es la consecuencia inmediata del fenómeno de endurecimiento por irradiación.

La fragilización de los aceros de bajo carbono y de baja aleación utilizados en la fabricación de los RPV, proviene principalmente del endurecimiento por irradiación. Este consiste de dos componentes: una, el endurecimiento debido a los aglomerados de defectos puntuales generados en las cascadas de desplazamientos que sigue la ley de potencia $\frac{1}{2}$ con la fluencia, ya que no se alcanzan dosis neutrónicas que se aparten del comportamiento lineal, como se vio en 1.4, y otra componente que está asociada con la redistribución de solutos sustitucionales, en donde el papel preponderante lo juegan el cobre y otros aleantes. Altas concentraciones de cobre producen endurecimiento y aumento de la fragilidad en los aceros y las soldaduras. Las vacancias creadas en las cascadas aumentan la difusión del soluto cobre y pueden facilitar la nucleación de precipitados [9][12].

CAPÍTULO 2

2. Efecto de la radiación sobre las propiedades de los materiales.

2.1 Introducción

En el diseño de las centrales nucleares se deben tener en cuenta los efectos de la radiación sobre las propiedades físicas, químicas y mecánicas de los componentes de las plantas. La respuesta de los materiales a la radiación es muy compleja, y es muy difícil y costoso obtener datos que cubran todas las condiciones que se experimentan en servicio.

Para asegurar la integridad de los componentes durante la vida útil de las plantas se analizan los datos obtenidos directamente de los componentes ya irradiados, los provenientes de programas de vigilancia de algunos componentes críticos y los obtenidos en ensayos realizados en reactores experimentales para la prueba de materiales (MTR, materials testing reactor) en lugares donde el flujo neutrónico normalmente es muy superior al que recibe el RPV. Las extrapolaciones no siempre son confiables, por lo que uno de los objetivos del programa en el que está incluida esta tesis es determinar el efecto del flujo neutrónico en la fragilidad de este componente crítico. Además, la teoría, la modelización y la caracterización son herramientas indispensables para la evaluación de las modificaciones microestructurales producidas por la irradiación y su efecto en las propiedades macroscópicas.

Los objetivos principales del estudio de los materiales para componentes nucleares son: la elección de materiales para una mejor performance del reactor, la optimización de las restricciones operacionales, la seguridad del reactor y del medio que lo rodea y la posible prolongación de su vida útil más allá de las expectativas de diseño.

En esta tesis se analizarán algunas propiedades que se alteran en un ambiente radiactivo como el endurecimiento por irradiación y los cambios en los dominios

magnéticos; esto enfocado a la fragilización de los recipientes de presión de las centrales tipo PWR (Pressure Water Reactor).

2.2 Principales efectos de la irradiación neutrónica.

Como en parte se vio en el capítulo 1 los defectos que produce la radiación neutrónica son:

- Defectos puntuales.
- Átomos de impurezas (productos de transmutación).
- Pequeños aglomerados de vacancias (zonas desnudas).
- Lazos de dislocaciones (con o sin fallas de apilamiento, de tipo vacancia o intersticial).
- Líneas de dislocación (los lazos sin fallas de apilamiento se juntaron con la red de dislocaciones preexistente).
- Cavidades (voids y burbujas de He).
- Precipitados (en el caso de aceros inoxidable, carburos o fases intermetálicas).

Y los procesos modificados se pueden resumir en:

- Incremento de la difusión
- Formación y disolución de precipitados
- Producción y re-solución de gases
- Desorden y reordenamiento
- Nucleación y formación de nuevas fases
- Segregación
- Amorfización

Y en cuanto a las propiedades modificadas se pueden mencionar:

- Endurecimiento y fragilización
- Aceleración de la termofluencia (creep)
- Hinchado (swelling)
- Crecimiento por irradiación.

Teniendo en cuenta que en esta tesis solo se estudia el endurecimiento y fragilización en los RPV producida por la irradiación neutrónica.

2.3 Endurecimiento por irradiación

Los primeros experimentos que tienden a determinar los efectos de la radiación neutrónica sobre las propiedades mecánicas fueron realizados en cobre; se utilizó este material por su abundancia, su neto carácter metálico, y su relativamente rápido decaimiento radiactivo, lo que lo hizo apto para ensayos pos-irradiación. Además su estructura cristalina cúbica simplificaba algunos problemas como la obtención de monocristales.

Efectivamente, los primeros estudios se hicieron sobre monocristales, con el objeto de eliminar todo otro defecto que pudiera complicar la interpretación del mecanismo de endurecimiento, como son los bordes de grano.

También se utilizaron materiales de muy alta pureza y en un principio se irradió a temperatura de reactor, para pasar luego a las bajas temperaturas para congelar defectos. Estos experimentos comenzaron alrededor de 1950, y fueron realizados por Blewitt y sus colaboradores [14][15]. Y continuados posteriormente por otros investigadores.

Los efectos de la irradiación son considerables, por ejemplo, la tensión de fluencia de un monocristal de cobre resulta incrementada en un factor 22 para una fluencia neutrónica de 2×10^{19} neutrones/cm².

De los experimentos se obtuvieron suficientes evidencias de que el endurecimiento por irradiación no está asociado directamente con la presencia de defectos puntuales. Entre ellas podemos mencionar que durante el recocido desde bajas temperaturas la tensión de corte siempre decrece; si los defectos puntuales fuesen un factor de endurecimiento uno debería esperar en ciertos rangos de temperaturas, alguna modificación importante de la tensión donde ocurre la migración de estos defectos puntuales; y esto no ocurre, el decrecimiento con la temperatura de la tensión de corte es monótono.

Por otra parte, cuando el endurecimiento se elimina totalmente por recocido, esto ocurre a unos 200 °C por encima del punto más alto donde ocurre migración de defectos puntuales. Se piensa entonces en los aglomerados resultantes de la cascada de colisiones como origen del endurecimiento.

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

Si la irradiación provoca que lazos de dislocaciones se ubiquen en planos preferenciales, sobre esos planos el endurecimiento será máximo. Las dislocaciones buscarán otros planos en donde moverse y el resultado es una curva con creciente endurecimiento. Si los defectos se distribuyen en todos los planos es posible que el endurecimiento no presente gran incremento, pero romperá a menor deformación (será más frágil).

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

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

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

Para explicar las observaciones experimentales se propusieron dos mecanismos de endurecimiento. El más conocido fue propuesto por Seeger y es conocido como modelo de endurecimiento por barreras dispersas (EBD). En este modelo, las zonas diluidas al final de la cascada, formadas por un aglomerado de vacancias, colapsan como lazos de dislocaciones o como fallas de apilamiento tetraedrales en la fase de enfriamiento de la cascada [11].

En el modelo de Seeger se supone que estos lazos o aglomerados son barreras para el movimiento de las dislocaciones en los planos de deslizamiento y, por lo tanto, son la principal fuente de endurecimiento por radiación. Es un mecanismo idéntico al propuesto por Orowan para el endurecimiento debido a precipitados y a partículas dispersas.

El otro modelo fue desarrollado considerando la formación de “nubes de defectos” a lo largo de las líneas de dislocaciones preexistentes (antes de la irradiación). Estas dislocaciones no pueden actuar como fuentes de nuevas dislocaciones, o sea, la deformación plástica no puede iniciarse hasta que ellas se liberen de la nube de defectos. La tensión necesaria para destrabarlas de modo que puedan actuar como fuentes, determina la tensión de fluencia del material irradiado. Este mecanismo es conocido como endurecimiento de fuente (EF).

En el pasado faltaba un detallado conocimiento de la morfología del daño producido en las cascadas. Sólo recientemente se ha mostrado a través de simulaciones por computadora, que varios aglomerados de vacancias ocurren con cada impacto neutrónico, que también en forma atómica se forman aglomerados de intersticiales y que algunos pueden ser móviles. Algunos de estos aglomerados pueden jugar un papel importante en la “decoración” de las dislocaciones, con lo que la descripción de la naturaleza del daño es más complicada de lo que se pensaba en los primeros tiempos.

2.4 Fragilidad en los recipientes a presión por irradiación

La radiación puede producir cambios significativos en las propiedades mecánicas y magnéticas de los aceros ferríticos utilizados en la fabricación de recipientes a presión de centrales nucleares. Por lo general, se observa un aumento en la resistencia a la tracción, acompañado de la dureza y una disminución en la ductilidad. Los aceros ferríticos utilizados en los RPV exhiben una temperatura de transición de dúctil a frágil (DBTT). La energía absorbida en el mecanismo de fractura se incrementa con el aumento de la temperatura al pasar por la zona de transición, seguida de una región de energía de fractura relativamente alta y constante (upper shelf).

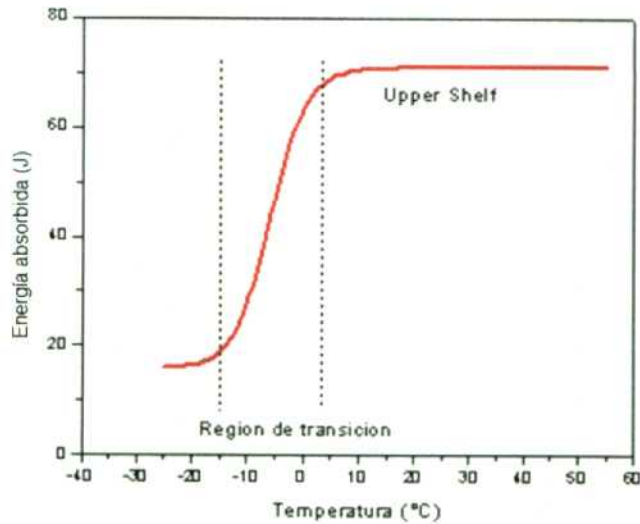


Figura 2.1 Región de transición dúctil-frágil en acero ferríticos

Existen además evidencias de fractura intergranular de los aceros de RPV, lo que no ocurre en un acero no irradiado dada su gran ductilidad; el endurecimiento por irradiación daría una explicación ya que la segregación intergranular de impurezas como el fósforo o el azufre reducen la cohesión del borde de grano.

Los recipientes de presión (RPV) de los reactores operan a temperaturas bajas (150 – 300°C) y reciben flujos neutrónicos bajos (típicamente $10^9 - 10^{11} \text{ n/cm}^2\text{s}^{-1}$). Pero se debe asegurar la integridad del RPV a lo largo de 30 o 40 años de servicio. Existe la probabilidad de una fractura inestable. La menor temperatura y el menor flujo neutrónico permiten el uso de aceros más baratos. Tanto en los reactores rápidos como en los térmicos se usan aleaciones de acero ferríticos; se plaquea con una capa de inoxidable, que va soldada al acero del cuerpo del RPV. Así no se necesita la resistencia a la corrosión de los inoxidables y es mucho más barato. Es necesario conocer la magnitud del endurecimiento por radiación y el grado de fragilización de esos aceros [16].

Uno de los ensayos mecánicos más usados es el de impacto en probetas con entalla en V (Ensayo de impacto Charpy). La irradiación puede correr la temperatura de transición (DBTT) en más de 100 °C, lo que coloca a los aceros de recipiente de presión en situación comprometida, fundamentalmente en los casos de parada brusca

con enfriamiento, algún incidente de criticidad o en la simple operación de parada del reactor.

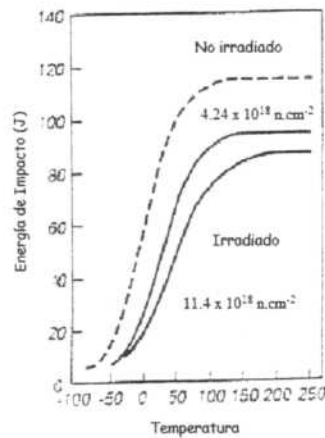


Figura 2.2 Corrimiento de transición dúctil-frágil en acero ferríticos irradiados

Se está estudiando una forma alternativa al ensayo tipo Charpy que no necesite mucho material irradiado para obtener resultados confiables, este es el método magnético en el cual se estudia el cambio de las propiedades magnéticas como el campo coercitivo el cual se ve influenciado por la radiación neutrónica que genera nano precipitados ricos en Cu, Mn y otros aleantes, los cuales van a provocar un obstáculo al movimiento de las paredes de dominio como se verá más adelante [4].

La relación entre el magnetismo y las dislocaciones en los metales ferromagnéticos fue investigado por el grupo de Stuttgart de Max-Planck Institute [17]. El campo de tensión en torno a las dislocaciones ejerce una influencia sobre los lazos de histéresis magnéticos a través del acoplamiento magnetoelástico en metales ferromagnéticos tales como Ni, Fe, Co y otros metales.

2.5 Campos magnéticos

El magnetismo es una propiedad de la materia, es una manifestación de la energía de los electrones, las partículas fundamentales de la carga eléctrica negativa. Los electrones son el origen fundamental del magnetismo y cada electrón tiene un momento magnético, es decir, cada uno se comporta como un pequeñísimo imán el cual puede actuar en cualquiera de dos direcciones opuestas.

El hierro, algunos aceros y la magnetita son ejemplos bien conocidos de materiales que exhiben propiedades magnéticas. No tan familiar sin embargo, es el hecho de que todas las sustancias están influidas de una u otra forma por la presencia de un campo magnético.

Las propiedades magnéticas de un material se caracteriza no sólo por la magnitud y el signo de (M) también por la forma en que M varía con H. La relación de estas dos cantidades se llama susceptibilidad (κ).

$$\kappa = \frac{M}{H} \text{ [emu/cm}^3 \cdot \text{Oe]} \quad \text{[Ecuación 2.1]}$$

Donde H es el campo externo aplicado y M es la magnetización/cm³, entonces κ se refiere a unidad de volumen y a veces es llamada susceptibilidad en volumen ya que indica cómo responde un material a un campo aplicado [18].

Una muestra de sustancia paramagnética situada en un campo magnético es atraída hacia la región donde el campo es más intenso, al contrario de lo que le ocurre a una sustancia diamagnética que es atraída hacia la región donde el campo es más débil.

El paramagnetismo se produce cuando las moléculas de una sustancia tienen un momento magnético permanente. El campo magnético externo produce un momento que tiende a alinear los dipolos magnéticos en la dirección del campo. La agitación térmica aumenta con la temperatura y tiende a compensar el alineamiento del campo magnético. En las sustancias paramagnéticas la susceptibilidad magnética es muy pequeña comparada con la unidad.

En cambio los materiales ferromagnéticos son materiales que pueden ser magnetizados permanentemente por la aplicación de un campo magnético externo. Este campo externo puede ser tanto un imán natural o un electroimán.

Los materiales paramagnéticos son materiales atraídos por imanes, pero no se convierten en materiales permanentemente magnetizados. Los materiales

diamagnéticos no son atraídos por imanes, son repelidos y no se convierten en imanes permanentes.

2.6 Materiales ferromagnéticos

El ferromagnetismo se observa cuando los dominios adyacentes tienden a alinearse paralelamente en el mismo sentido. A altas temperaturas el comportamiento será el de un sistema paramagnético. Cuando la temperatura disminuye la susceptibilidad se incrementa más rápidamente de lo esperado para un sistema paramagnético, el punto de máxima pendiente se denomina temperatura de Curie, T_c , y por debajo de ésta se considera que el sistema se ha ordenado ferromagnéticamente.

La magnetización se incrementa continuamente al disminuir la temperatura y la susceptibilidad es muy dependiente del campo por debajo de la temperatura de Curie. Muchos de estos sistemas tienen magnetización permanente, es decir permanecen imantados aún cuando se elimina la acción del campo magnético externo. Este es el comportamiento más interesante por sus aplicaciones tecnológicas, pero en la práctica muy pocos compuestos son verdaderamente ferromagnéticos, ocurriendo con frecuencia que a pesar de existir interacciones ferromagnéticas de corto alcance el ordenamiento global es antiferromagnético. Los principales materiales ferromagnéticos son los metales de transición (hierro, cobalto, níquel) y sus aleaciones.

Los materiales ferromagnéticos están caracterizados por curvas de magnetización y curvas de histéresis. El acero SA 508 clase 3 usado en este estudio es un material ferromagnético.

2.7 Dominios y ciclos de histéresis

En los materiales ferromagnéticos los momentos magnéticos individuales de grandes grupos de átomos o moléculas se mantienen alineados entre sí debido a un fuerte acoplamiento, aún en ausencia de campo exterior.

Estos grupos se denominan dominios, y actúan como un pequeño imán permanente. Los dominios tienen tamaños entre 10^{-12} y 10^{-8} m³ y contienen entre 10^{21} y 10^{27} átomos. Los dominios se forman para minimizar la energía magnética entre

ellos. En ausencia de campo aplicado, los dominios tienen sus momentos magnéticos netos distribuidos al azar [18].

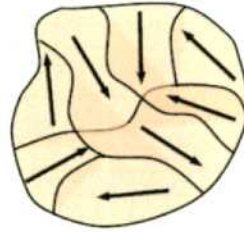


Figura 2.3 Dominios magnéticos en un grano.

Cuando se aplica un campo exterior, los dominios tienden a alinearse con el campo. Este alineamiento puede permanecer en algunos casos de muy fuerte acoplamiento cuando se retira el campo, creando un imán permanente. Las características esenciales del ferromagnetismo son:

- Los materiales ferromagnéticos se magnetizan fuertemente en el mismo sentido que el campo magnético aplicado. Resulta así que aparece una fuerza de atracción sobre el cuerpo respecto del campo aplicado.
- La susceptibilidad magnética es positiva y grande y la permeabilidad relativa es entonces mucho mayor que 1.

En la figura 2.4 se observa un esquema de la estructura del hierro (BCC - cúbica de cuerpo centrado). Los momentos magnéticos están alineados ya que existen fuertes interacciones entre ellos.

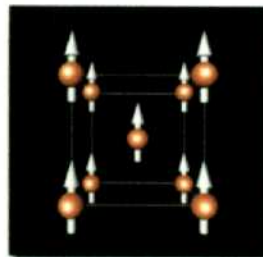


Figura 2.4 Estructura del Fe BCC con los momentos magnéticos alineados en la dirección del campo aplicado

A temperaturas inferiores a la de Curie, los momentos magnéticos de los átomos en los materiales ferromagnéticos tienden a alinearse paralelamente en pequeñas regiones, dentro de los granos, denominadas dominios magnéticos. Si el material ha sido enfriado en ausencia de campo por encima de su temperatura de Curie, los dominios se orientan completamente al azar, de manera que el material no presenta imantación neta. Los dominios adyacentes se encuentran separados por las paredes de Bloch, regiones en las cuales la orientación de los espines cambia gradualmente (Fig. 2.5). El espesor de las paredes de Bloch es del orden de los 100 nm mientras que los dominios pueden llegar a ser de 0.05 mm [19].

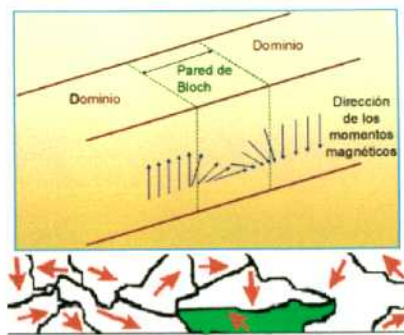


Figura 2.5 Dominios magnéticos y paredes de Bloch

Cuando se aplica un campo magnético externo, los dominios que se encuentran inicialmente al azar, empiezan a alinearse en la misma dirección del campo aplicado. Para que este fenómeno se produzca es preciso que se muevan las paredes, lo que puede hacerse por la energía proporcionada por el campo magnético. Inicialmente los dominios crecen con dificultad y se necesitan incrementos de campo importantes para que aparezca una pequeña imantación. Pero a medida que aumenta el campo, y que a éste se suma el efecto de los dominios ya alineados, el crecimiento de los dominios paralelos se acelera y la imantación crece rápidamente. Finalmente, cuando acaba el crecimiento del dominio, si el campo aplicado es lo suficientemente alto se producirá una rotación del mismo hasta su alineación completa con el campo aplicado. En este momento, el material presentará su imantación máxima, conocida como imantación de saturación (M_s).

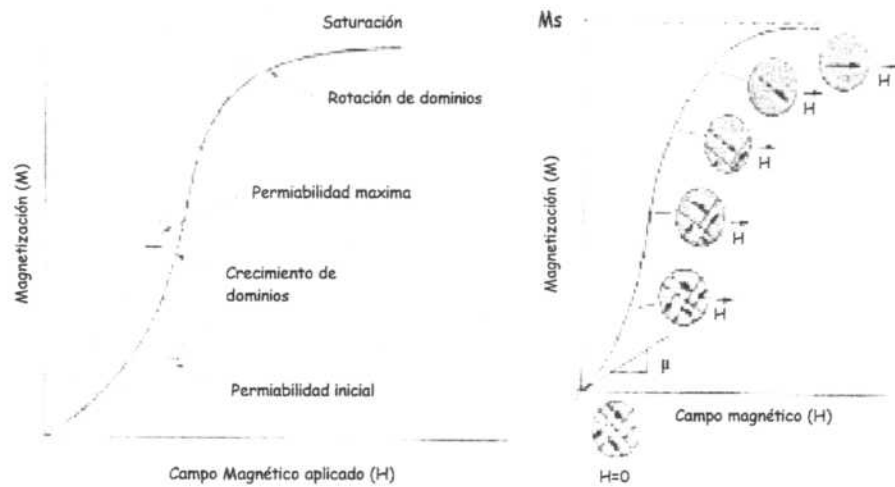


Figura 2.6 Crecimiento y reorientación de los dominios con la aplicación de un campo magnético

Cuando se retira el campo aplicado, los dominios tienden a volver a su alineación original, pero las paredes de Bloch carecen de la energía necesaria para moverse por lo que una parte importante de la imantación alcanzada se mantiene (imantación remanente, M_r) y el material se comporta como un imán permanente. Por tanto, a medida que el campo aplicado decrece la curva no vuelve por su camino original. Se produce un retraso, histéresis, entre la magnetización M y el campo aplicado H . Cuando el campo aplicado se anula, la magnetización no es nula de manera que la muestra presenta una imantación remanente. Para conseguir que M se anule va a ser preciso aplicar un campo en sentido opuesto a la dirección original; cuando el valor de ese campo es lo suficientemente alto los dominios se orientan completamente al azar y la imantación se anula. A ese campo se le denomina campo coercitivo ($-H_c$). Si se sigue aumentando el campo aplicado en la dirección opuesta, se alcanzará nuevamente la saturación pero con un alineamiento inverso de los espines. Una segunda inversión del campo hasta el punto de la saturación original dará lugar a una remanencia negativa ($-M_r$) y a una coercitividad positiva ($+H_c$) y en conjunto a un ciclo de histéresis (Fig. 2.7) [18].

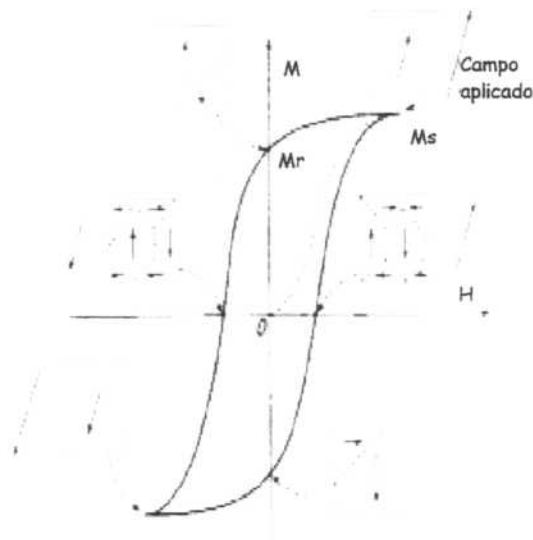


Figura 2.7 Ciclo de histéresis con la orientación de los dominios magnéticos.

El tamaño y la forma de su ciclo de histéresis definen las propiedades de un material ferromagnético y determinan sus posibles aplicaciones. Además, el área dentro de un ciclo de histéresis representa la pérdida de energía por ciclo de imantación-desimantación, esta pérdida se traduce en calor que se genera en el material y ocasiona un incremento de la temperatura del mismo. Por este motivo, la repetición sucesiva de ciclos de histéresis con campos decrecientes permite desimantar completamente un imán ferromagnético.

Las propiedades magnéticas no están limitadas a las sustancias ferromagnéticas, sino que las presentan también todas las sustancias, aunque en mucho menor escala. En esta categoría entran dos tipos de sustancias las paramagnéticas y las diamagnéticas.

2.8 Método de análisis del menor lazo de histéresis

Recientemente, un método de análisis del menor lazo de histéresis ha sido encontrado en monocristales de Fe, en policristales de Fe, y en acero de bajo carbono [20][21]. Los lazos menores de histéresis son los que se obtienen para campos magnéticos aplicados para los que no se llega a la saturación. Se determinan estos campos luego del primer ciclo o lazo principal, en donde se hallan los valores de saturación M_s . Los lazos menores son mucho más sensibles a las variaciones de las propiedades por efecto de las dislocaciones y límites de grano que el tradicional lazo

principal. Además, se pueden obtener los coeficientes buscados con un campo magnético aplicado mucho más bajo.

Para el análisis del menor lazo de histéresis, se introducen las propiedades como se muestra en la (Fig. 2.8): momento magnético M_a , momento magnético de saturación M_s , campo magnético aplicado H_a , fuerza coercitiva H_c , momento magnético remanente M_r , y la susceptibilidad X_H . Estos parámetros se utilizan para representar las características de un conjunto de ciclos de histéresis [22]. Las propiedades magnéticas obtenidas en el menor lazo de histéresis contienen información de las paredes de dominios esto fue estudiado por Kronmüller y Fähnle [17].

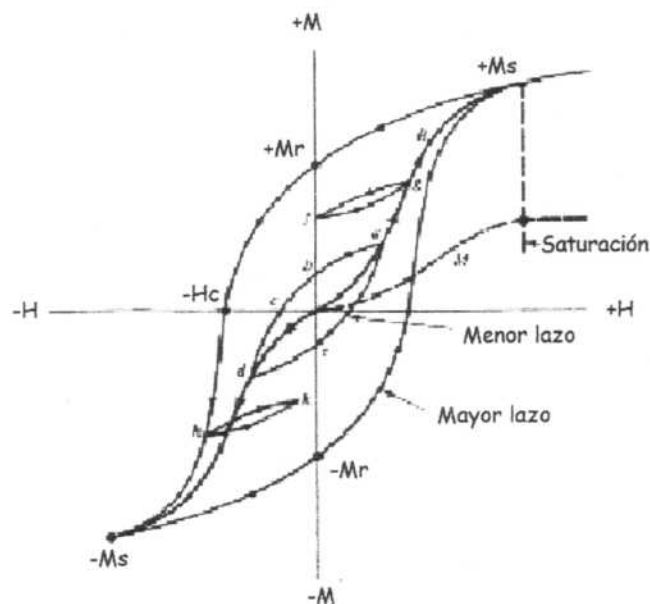


Figura 2.8 Menor lazo de histéresis.

El campo coercitivo es la propiedad más sensible que caracteriza a los materiales ferromagnéticos. Este es el campo magnético necesario para reducir a cero la inducción magnética.

El estudio de estas propiedades magnéticas se vinculara a la morfología de los defectos creados por la irradiación en los aceros de los RPV.

CAPÍTULO 3

3. Introducción

En este capítulo se describen los experimentos que fueron los antecedentes de este trabajo para luego presentar la parte experimental específica de este trabajo de Tesis de Maestría, que es la medición a través de curvas de histéresis magnética del efecto de la irradiación en aceros de recipientes a presión de centrales nucleares.

3.1 Antecedentes

Uno de los objetivos del estudio que dio origen a esta tesis, es determinar cuánto afecta la aceleración del daño (conocida como factor de avance) el comportamiento fractomecánico de los aceros. Si bien existen normas que aconsejan cual es la aceleración máxima admisible, nadie sabe con certeza cuál es su efecto en propiedades que dependen, entre otros factores, de la difusión de aleantes, o sea de la intensidad de la irradiación y del tiempo.

Para esto se pensó en irradiar en condiciones de temperatura idénticas a las de servicio con probetas de ensayos fractomecánicos del acero del RPV de Atucha II y del reactor CAREM, pero con distintos factores de avance en el reactor RA1. En un tiempo razonable sería posible, además, irradiar material hasta completar la dosis de la vida entera de la central.

3.2 El reactor RA1

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

El reactor tiene una potencia de 40 Kw de potencia térmica, es del tipo tanque abierto, con núcleo de uranio enriquecido al 20% con ^{235}U , reflejado por grafito, su moderador y refrigerante es agua liviana desmineralizada [23].



Figura 3.1 Reactor nuclear RA-1

Su flujo neutrónico promedio es de $\sim 10^{12}$ neutrones $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$; como es un reactor de bajo flujo tiene la ventaja de poseer menor ruido térmico y menos vibraciones mecánicas; es más fácil el control de la temperatura y la estimación del tiempo de irradiación; el producto del flujo neutrónico por el tiempo de irradiación constituye la llamada dosis o fluencia neutrónica.

En el centro del núcleo se encuentra la llamada columna central para irradiar muestras que son introducidas y extraídas tanto manualmente como en forma neumática (*Fig. 3.2*).

Existe además una posición de irradiación rodeada de elementos combustibles en el centro de la grilla en donde puede ubicarse un dispositivo para irradiar bajo condiciones controladas de temperatura y flujo neutrónico. Allí el flujo de neutrones rápidos es de $3,5 \times 10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$.

En este último lugar es que se instaló una facilidad para irradiar y en donde se realizaron las irradiaciones de las probetas que se ensayaron mecánicamente y de donde luego se extrajo el material para esta tesis.

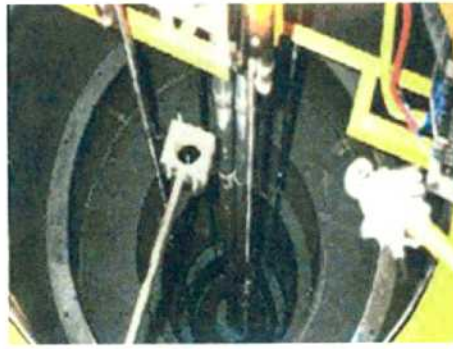


Figura 3.2 Vista de las posiciones de irradiación en el Reactor

3.3 Irradiación

El plan consistió en la irradiación de 2 conjuntos de 8 probetas del acero JF cada uno de los conjuntos, en el reactor RA-1 a iguales dosis integradas pero con distintos tiempos de irradiación (distintos factores de avance (FA)). Los distintos factores de avance se lograron irradiando en el RA-1 a potencia máxima e irradiando bajo las mismas estrictas condiciones pero a menor potencia. Es decir tiempos de irradiación más largos pero idéntica dosis neutrónica y temperatura. Un conjunto de probetas sin irradiar sirvió como referencia. El factor de avance (FA) es la relación entre el flujo neutrónico instantáneo en la posición del espécimen de vigilancia y el flujo neutrónico máxima calculada en la superficie interna de la pared del recipiente y da una medida de la aceleración de la irradiación:

$$FA = \Phi_{\text{VIGILANCIA}} (E > 1\text{MeV}) / \Phi_{\text{RPV}} (E > 1\text{MeV}). \quad [\text{Ecuación 3.1}]$$

El daño en la pared del recipiente es producido en la mayoría de los casos por un flujo no muy intenso de neutrones rápidos, luego de un largo periodo de irradiación. Cuando hablamos de un flujo poco intenso queremos significar que es bajo respecto del valor del flujo que existe en el núcleo de un reactor. Por ejemplo el flujo en la pared interna del recipiente de la Central Nuclear Atucha I (CNA-I) es $\Phi_{\text{PI}} (E > 1\text{MeV}) = 1.19 \times 10^{10} \text{ n cm}^{-2} \text{ seg}^{-1}$ y el flujo promedio en el núcleo de un reactor de potencia es de $\Phi (E > 1 \text{ MeV}) \sim 3 \times 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ seg}^{-1}$.

Aun así hay que tener en cuenta que en CNA-I el flujo rápido en la pared interna (PI) del recipiente a presión es alto comparado con el de RPV de centrales más modernas y la razón es que los PWR construidos a principios de los 70 tenían la pared más cerca del núcleo. A medida que la producción de aceros de recipientes a presión se modernizó, aumentó la potencia de las centrales y aumentó el espacio núcleo-RPV, con lo que el flujo en el RPV disminuyó a valores cercanos a $\Phi_{RPV}(E>1\text{MeV}) \approx 1 \times 10^9 \text{ n cm}^{-2} \text{ seg}^{-1}$.

Teniendo en cuenta esto es que se estimó que el flujo de neutrones rápidos en la pared interna del recipiente a presión de la CNA-II es $\Phi_{IP}(E>1\text{MeV}) = 2 \times 10^9 \text{ n cm}^{-2} \text{ seg}^{-1}$. [Comunicación privada Bariloche]. Se ha estimado también que para 40 años calendario de vida útil de diseño (VUD) se llega a una fluencia de $\approx 2.5 \times 10^{18} \text{ n cm}^{-2}$.

Los tiempos y condiciones de irradiación fueron los siguientes:

Tabla 3.1 Plan de irradiación

Juego de probetas irradiadas	Flujo (N/cm ² s)	Fluencia (N/cm ²)	Factor de avance	Duración (horas)	Temperatura (°C)
Primer Juego de muestras	1X10 ¹²	1,78X10 ¹⁸	500	492	280-290
Segundo Juego de muestras	5X10 ¹¹	1,78X10 ¹⁸	250	984	280-290

Previo a la irradiación se había realizado la fabricación de las probetas tipo Charpy, la construcción de una cápsula para la irradiación y el diseño de la facilidad para irradiar a temperatura en el núcleo del reactor RA1[24].

Se seleccionó un acero similar al que se utilizó en la fabricación del RPV de Atucha II el cual está nombrado como un JF provisto por IAEA para el programa de intercomparación. En el informe del Japan Steel Works SA Muroran Plant se lo especifica según el código ASME como un acero forjado SA-508 clase 3. En la tabla II se especifica la composición química según informe de Japan Steel Works, Ltd Muroran Plant.

Tabla 3.2 Composición química del acero en estudio (wt. %)

C	Mn	P	S	Si	Ni
0.25 máx.	1.20/ 1.50	0.012 máx.	0.015 máx.	0.15/ 0.30	0.40/ 0.80
Cr	Mo	V	Cu	Al	Ta
0.20 máx.	0.45/ 0.60	0.03	0.10 máx.	0.050 máx.	0.030 máx.

De este cupón de acero se construyeron 24 probetas tipo Charpy con entalla en V y orientación T-L según norma ASTM A370 del acero JF. Las probetas son de dimensiones 10 x 10 x 55mm (*Fig. 3.3*). Dos juegos de 8 probetas cada uno se irradiaron en el reactor RA-1 y el último juego de 8 probetas se utilizó como referencia.

Todas las probetas están orientadas en la dirección T-L. Es decir, con la entalla en la dirección del trabajado mecánico. En esa dirección se absorben energías menores en el ensayo de impacto y se favorece la determinación de la temperatura de transición dúctil-frágil.

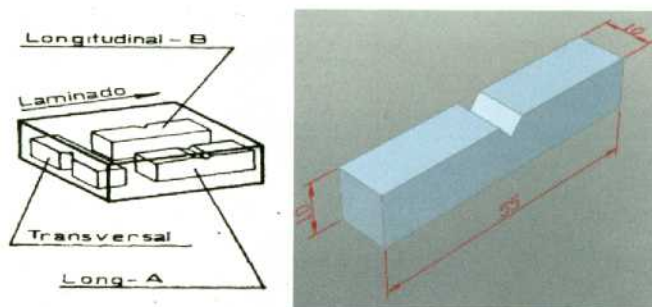
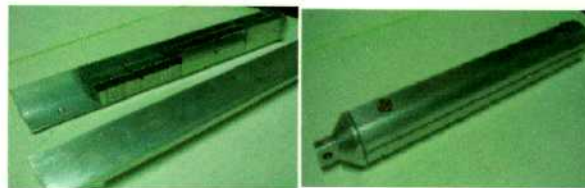


Figura 3.3 Probeta tipo Charpy según norma ASTM A370

En La Figura 3.4 se observa la cápsula utilizada para irradiar y en la Figura 3.5 parte de la facilidad para irradiar.



La facilidad para irradiar instalada en el reactor contiene un un horno que funciona por efecto Joule con un elemento calefactor de NiCr, de forma tal que la potencia máxima por unidad de superficie es de 2.3 W/cm^2 . El mismo se ubica de forma que coincida con la zona de máximo flujo del núcleo del reactor a la altura del nivel medio de los elementos combustibles. De esta forma y al instalarse en el reactor permitirá reproducir, en forma controlada mediante su horno y termocuplas, las condiciones de temperatura en la pared interna del recipiente a presión, alrededor de los 300°C , alojando la cápsula con las 8 probetas del material JF incorporadas. El dispositivo está refrigerado exteriormente por el circuito primario del reactor RA-1.



Figura 3.5 Facilidad para irradiar

Todo material que se irradia, a través de procesos de interacción de la radiación con la materia queda activo, es decir, en estado inestable, decayendo a su estado estable con la emisión de partículas y radiación electromagnética. Como esto es inevitable, el manipuleo de muestras irradiadas requiere de la intervención de oficiales de seguridad para la protección radiológica.

Es necesario además esperar un tiempo prudencial para que la radiactividad decaiga a un nivel que permita que las muestras sean extraídas de la facilidad para irradiar. Una vez que se llegó al nivel permitido de actividad, las probetas se trasladaron al laboratorio de ensayos mecánicos.

3.4 Ensayo Charpy en las Celdas Calientes

Cuando se expuso el acero a la irradiación en el RA-1 este sufrió el fenómeno de endurecimiento por radiación antes mencionado. El endurecimiento por radiación

está asociado a la fragilidad y para poder estudiar a fondo este fenómeno se realizó el ensayo Charpy en las Celdas Calientes ubicadas en el Centro Atómico Ezeiza.

Para poder realizar este trabajo, se obtuvo de la ARN la autorización de práctica para los ensayos con el equipo Charpy instrumentado que se encuentra en las Celdas Calientes del Laboratorio LAPEP de la Gerencia Ciclo Combustible en el Centro Atómico Ezeiza (CAE). Para tal fin, se dispuso de herramientas de manipuleo y un recipiente blindado para el transporte.

El ensayo Charpy consiste en un péndulo con una masa en su extremo que impacta en las probetas y obteniéndose así la energía absorbida para determinar la tenacidad del material. Se coloca la probeta horizontalmente, de forma que sea golpeada por el martillo en la cara opuesta a la entalla, precisamente en el momento en que el martillo se encuentre en el punto más bajo de su trayectoria (la que se toma como referencia para medir la diferencia de alturas) esto permite medir la energía absorbida en el proceso de fracturar la probeta (*Fig. 3.6*). La máquina de ensayo determinará el trabajo absorbido por el material cuando éste es roto de un solo golpe por la masa pendular y su valor en Joule, o relacionándolo con la sección o volumen de la probeta; según el método nos indicará la resistencia al choque o capacidad del material para absorber cargas dinámicas de impacto (resiliencia). La máquina utilizada es un equipo Charpy instrumentado de 300 Joule de capacidad marca Wolpert.

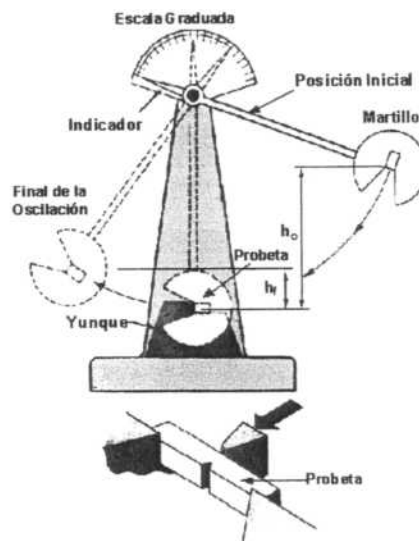


Figura 3.6 Máquina de Ensayo Tipo Charpy

Para poder realizar el ensayo Charpy, se necesitó diseñar un sistema de calentamiento y enfriamiento en el cual se introduce una resistencia calefactora en un termo que contiene nitrógeno líquido; la función de esta resistencia es calentar el nitrógeno y presurizarlo para poderlo transportar hacia la cámara ambiental que se encuentra dentro de las Celdas Calientes y enfriar/calentar las probetas hasta la temperatura previamente elegida y ajustada en un controlador de temperatura (Fig. 3.7). Este proceso se realizó con cada probeta y a diferentes temperaturas para obtener la curva energía absorbida vs. temperatura de ensayo.

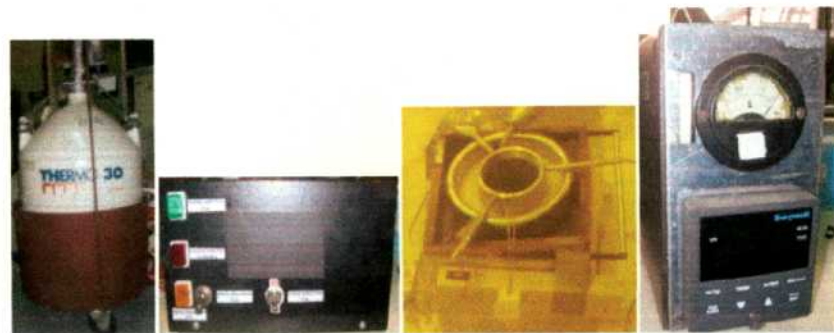


Figura 3.7 Sistema de calentamiento y enfriamiento

Los ensayos necesitaron de un operador entrenado porque el tiempo que se necesita para posicionar y ensayar la probeta debe ser pequeño para que esta no varíe su temperatura (Fig. 3.8).

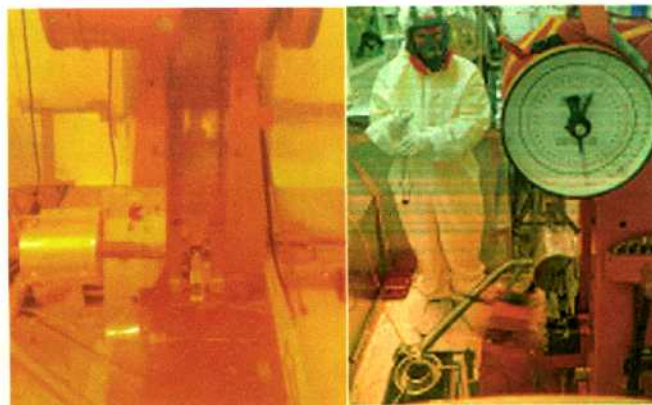


Figura 3.8 Máquina de Ensayo Tipo Charpy instrumentado del CAE

Los ensayos se realizaron a temperaturas entre -30°C hasta 25°C . En la Figura 3.9 se observan dos curvas típicas de material irradiado y sin irradiar. Es un ejemplo en donde se indica el corrimiento de temperatura correspondiente a 41 Joule (ASTM E 2215-02) entre las dos curvas.

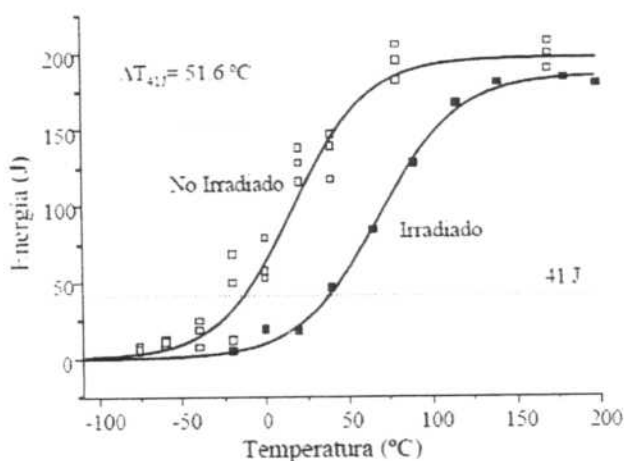


Figura 3.9 Esquema de curva Charpy para material irradiado y no irradiado

Hasta aquí se han descrito los pasos previos a los trabajos experimentales específicos de esta tesis. El material utilizado fue el proveniente de las probetas Charpy irradiadas y sin irradiar que se utilizaron en los ensayos mecánicos.

3.5 Ensayo Magnético

Los métodos magnéticos para determinar el efecto que el daño por radiación produce en los materiales son una alternativa viable que requiere, a diferencia de los ensayos Charpy u otros ensayos de tenacidad a la fractura, mucho menos material, reduciendo así el nivel de exposición del personal que realiza el ensayo y minimizando la cantidad de material necesario para hacer las determinaciones de la fragilización por irradiación. Otra de las ventajas es que son métodos que, convenientemente implementados, podrían realizarse “in situ”.

El concepto fundamental del método es obtener a través de los acoples magnetoelásticos la interacción entre los defectos creados o modificados por la irradiación y los dominios magnéticos del material. Si bien se participó activamente en

parte de las irradiaciones y ensayos en celda caliente el desarrollo experimental de esta parte del trabajo constituyó la mayor parte de este trabajo de tesis.

Para realizar estos ensayos es necesario magnetizar una pequeña muestra de material y obtener ciclos de histéresis magnética.

Para obtener las curvas de magnetización y los ciclos de histéresis se utilizó un magnetómetro de muestra vibrante marca VersaLab Quantum Design, (*Fig. 3.10*), perteneciente al Departamento de Física de la Materia Condensada, Gerencia de Investigación y Aplicaciones, CNEA; el mismo permite medir la magnetización en función de la temperatura entre 50 y 400 K bajo la aplicación de un campo magnético de hasta 3 Tesla con presión de 0,001 atm.



Figura 3.10 Magnetómetro de muestra vibrante VersaLab

El VersaLab consta de 4 partes: el criostato y la parte electrónica en un solo gabinete como se ve en la figura 3.11a y 2 partes más que son el compresor y el gabinete de control de temperatura (*Fig. 3.11 b*). El compresor cumple un enfriamiento en dos etapas. La primera etapa proporciona aproximadamente 5 W de capacidad de enfriamiento a 60 K, y la segunda etapa proporciona aproximadamente 0,1 W a 4,2 K. La primera etapa del enfriador se utiliza para las tareas de refrigeración, incluyendo la cámara de la muestra, los blindajes térmicos, y la captura de las fugas de calor de los componentes conectados a temperatura ambiente. La segunda etapa se utiliza principalmente para enfriar el imán superconductor, y la olla de carbón del interruptor térmico.

El campo magnético en VersaLab es generado por un superconductor de niobio-titanio (NbTi). El solenoide es montado en el espacio vacío del criostato. El imán genera un campo magnético vertical máximo de 3 Tesla de campo a unos 20 A de corriente. Mientras que la mayoría de los imanes son enfriados por helio líquido o gaseoso, el imán del VersaLab es enfriado por sólidos de conducción. Son cintas de cobre conectadas al imán en la segunda etapa de enfriamiento con el fin de que se enfríe [25].

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

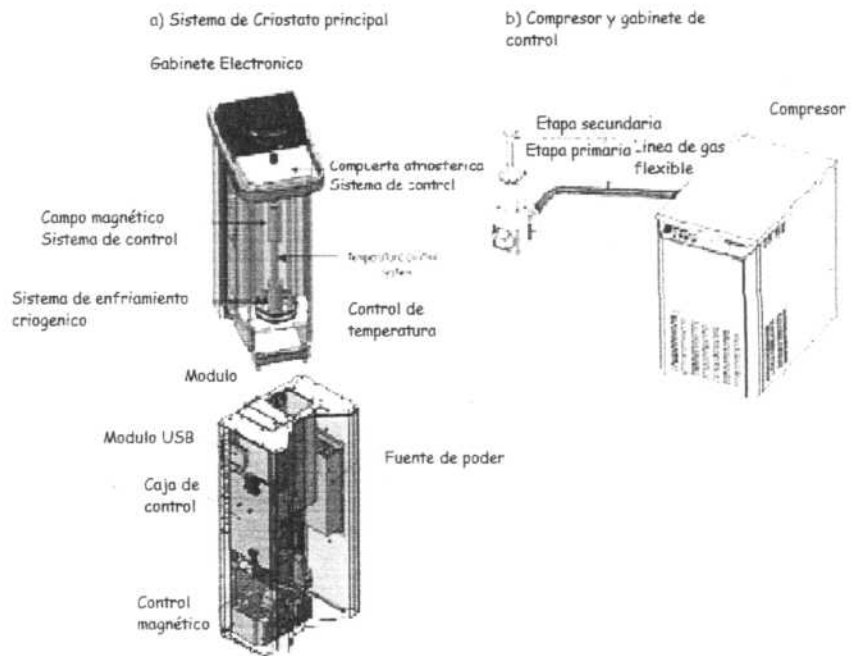


Figura 3.11 Partes del magnetómetro de muestra vibrante (Versalab)

Para obtener las muestras que se necesita para el análisis, se cortaron trozos de las probetas provenientes de los ensayos Charpy en una caja de guantes pertenecientes a la unidad de combustibles del CNEA (Fig. 3.12). Los cortes se realizaron con una pulidora de mano refrigerada con alcohol. Se mantuvo refrigerada la muestra para evitar afectar al material durante el corte producido por el calor del disco de diamante. El corte con la pulidora de mano se realiza hasta obtener material en forma de polvo el

cual es recolectado por medio de un imán pequeño para evitar inducir un campo magnético grande a la muestra y que afecte en el momento de medición de la misma.



Figura 3.12 Caja de guantes de CNEA

El polvo de acero se colocó en pequeñas cantidades (1-2 mg) en un porta muestra (Fig. 3.13), y se midió la cantidad de radiación que tenía la muestra en ese momento con el dosímetro marca Graetz que tiene un rango de operación de 0,1 μ Sv-10 Sv con el cual siempre puede controlar la seguridad del operador (Fig. 3.14).



Figura 3.13 Porta muestra para análisis en el magnetómetro de muestra vibrante



Figura 3.14 Medición de la muestra irradiada con el dosímetro

Luego se introdujo en el magnetómetro de muestra vibrante y se realizaron ciclos de pruebas aplicando campos magnéticos crecientes desde 50 hasta 5000 Oe, a diferentes temperaturas entre 50 y 300 K, para así obtener el campo coercitivo de saturación de la muestra y poder después aplicar ciclos crecientes desde 50 hasta 3000 Oe a temperatura de 300 K (Fig. 3.15). Este procedimiento se realizó para el material de las probetas irradiadas a diferentes factores de avance y para el del juego sin irradiar.

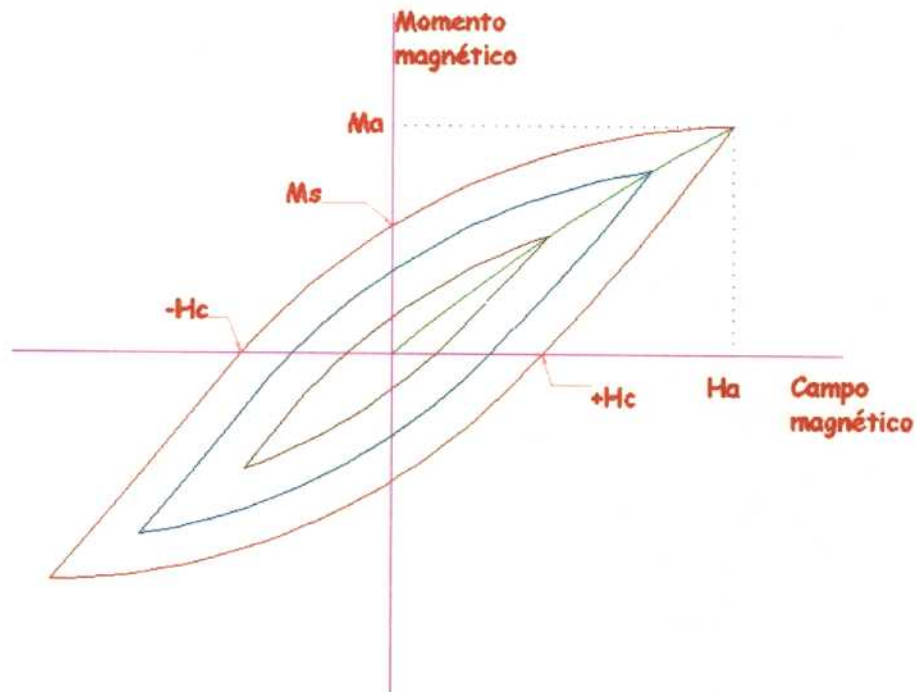


Figura 3.15 Ciclo de histéresis creciente

Una vez obtenidos todos los datos de campo magnético aplicado y momento magnético de saturación (Fig. 3.16), se puede obtener el valor del campo coercitivo que es el valor de interés en esta tesis, ya que el campo coercitivo es la propiedad más sensible que caracteriza a los materiales ferromagnéticos. Este es el campo magnético necesario para reducir a cero la inducción magnética. El campo coercitivo aumenta cuanto mayor es el contenido de defectos y también cuando aumentan las tensiones internas.

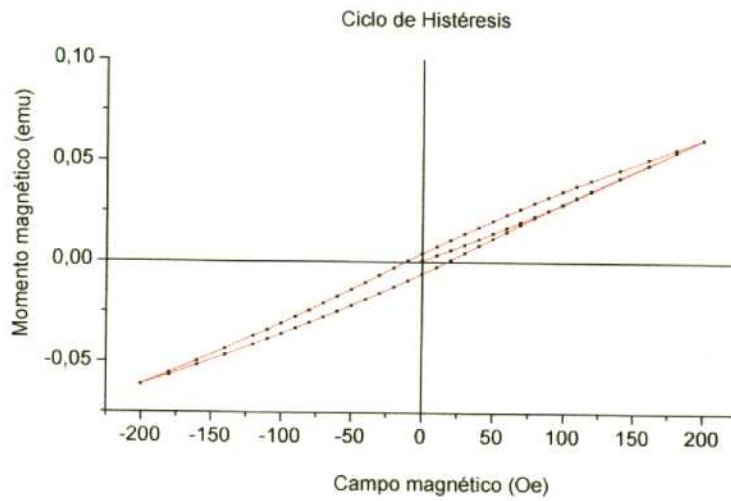


Figura 3.16 Ciclo de histéresis

Para obtener el valor del campo coercitivo (H_c) se graficaron todos los ciclos desde 50 – 3000 Oe y por medio de una interpolación lineal se obtuvo el valor de H_c . Para la interpolación se toman dos valores muy cercanos al eje de las abscisas que en este caso es el eje del campo magnético aplicado. El campo coercitivo se mide cuando el campo magnético aplicado es cero, entonces de los valores próximos se extrae un valor de H_c en donde el error surge de la proximidad al eje de abscisas de los puntos tomados.

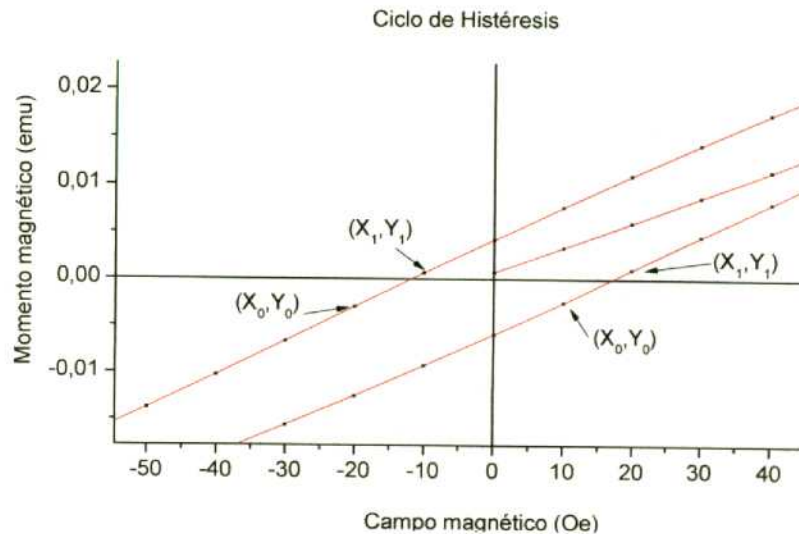


Figura 3.17 Variables para el cálculo del campo coercitivo y para la determinación del error.

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

CAPÍTULO 4

4. Resultados

En este capítulo se muestran los resultados obtenidos en los ensayos de impacto Charpy realizados por el grupo Daño por Radiación del Departamento Materiales del cual se participó en el ensayo del juego de probetas irradiadas con FA=250. Estos ensayos fueron realizados en las Celdas Calientes de Ezeiza. Los ensayos de magnetismo fueron desarrollados en el magnetómetro de muestra vibrante del laboratorio del Departamento de Física de la Materia Condensada, tanto para las muestras irradiadas a diferentes factores de avance como para el juego de probetas no irradiadas que se utiliza como referencias.

4.1 Resultados del ensayo tipo Charpy

Se realizaron ensayos de impacto Charpy en el acero SA 508 clase 3 y se determinó como puede variar la temperatura de transición dúctil-frágil de este acero al irradiarlo a distintos factores de avance. Este corrimiento de la temperatura de transición se observa a 41 Joule de energía absorbida según la norma nuclear.

El primer ensayo de impacto Charpy en realizarse en las Celdas Calientes de Ezeiza es el de las 8 probetas no irradiadas que sirven de referencia con respecto a las muestras irradiadas con diferentes factores de avance. Ubicando la primera probeta dentro de la cámara ambiental llevándola a una temperatura superior a la ambiente aproximadamente 50°C por medio del sistema de calentamiento mencionado en el capítulo 3. Cuando alcanza la temperatura antes indicada se procede a retirarla de la cámara y ensayarla en la máquina de ensayo Charpy. Este mismo procedimiento se realizó a cada una de las 8 probetas no irradiadas a diferentes temperaturas como lo indica la tabla 4.

Solo se obtuvieron 6 resultados de las 8 probetas porque 2 de ellas fallaron durante el ensayo por motivo de variación de temperatura al colocar la muestra en la máquina de ensayo Charpy.

Tabla 4.1 Temperaturas de ensayo de impacto Charpy de las probetas no irradiadas

Probetas No Irradiadas						
Temperatura (°C)	50	25	13	-2.5	-11	-25
Energía absorbida (J)	182	150	135	87	60.5	35.5

Después de ensayar las probetas no irradiadas se ensayaron las probetas irradiadas a diferentes factores de avance aplicando el mismo procedimiento que las muestras no irradiadas. Los valores obtenidos en los ensayos de impacto Charpy para las muestras irradiadas con factor de avance de 250 y 500 se los muestra en la tabla 4.2 y 4.3 respectivamente.

Tabla 4.2 Temperaturas de ensayo de impacto Charpy de las probetas irradiadas con FA=250

Probetas Irradiadas con FA= 250								
Temperatura (°C)	25	12.7	5	0	-3	-7	-17	-31
Energía absorbida (J)	54	54	47	37.5	38	29	9	9

Tabla 4.3 Temperaturas de ensayo de impacto Charpy de las probetas irradiadas con FA=500

Probetas Irradiadas con FA= 500								
Temperatura (°C)	55	25	10	-2.5	-5	-7	-11	-25
Energía absorbida (J)	80	68	65	52.3	50	42	20	18

En las tablas anteriores se observa como varía la energía absorbida con el cambio de temperatura en el acero. Con estos datos se construye la curva energía absorbida vs temperatura, utilizando el software Origin, el cual usa una sigmoideal para aproximar los puntos y visualizar la temperatura de transición dúctil-frágil de cada juego de probetas. Esta temperatura se ve afectada en las muestras irradiadas con distintos factores de avance. Este cambio se lo observa a los 41 Joule de energía.

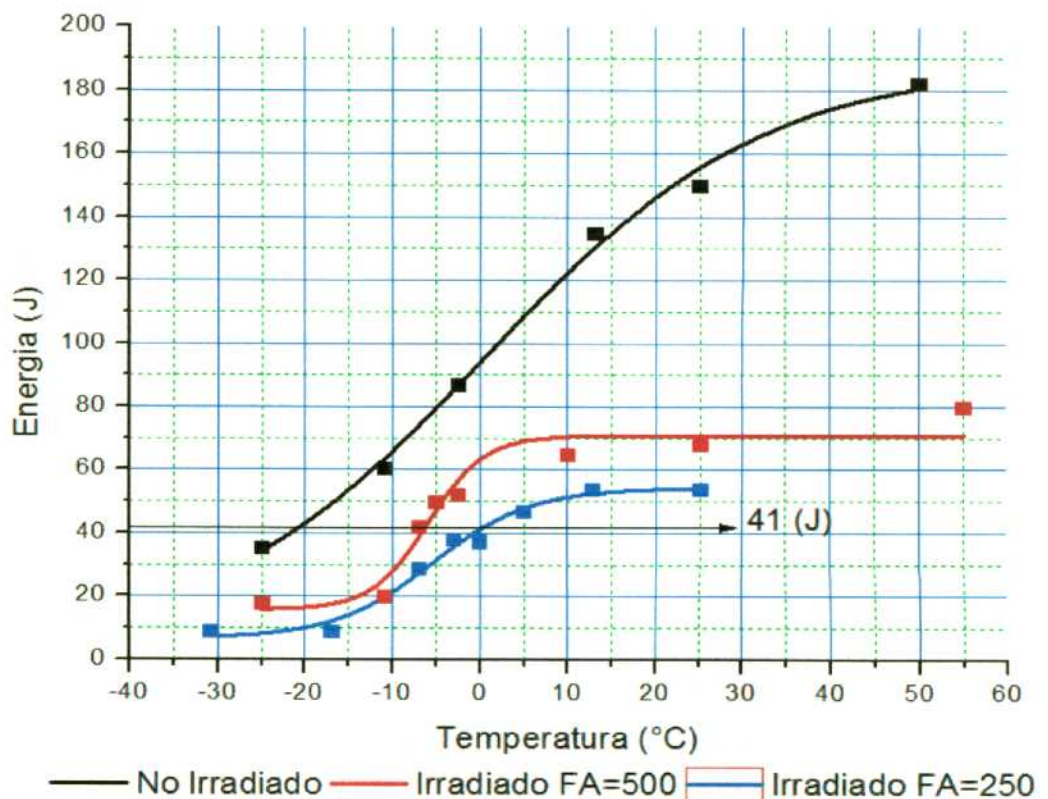


Figura 4.1 Curva de temperatura de transición dúctil-frágil de material no irradiado e irradiado con diferentes factores de avance

En la figura 4.1 la temperatura de transición a 41 Joule de energía se ha desplazado hacia la derecha teniendo un $\Delta T_T = 15^\circ\text{C}$ aproximadamente entre el juego de probetas no irradiado y el juego irradiado con un FA= 500 y un $\Delta T_T = 20^\circ\text{C}$ aproximadamente entre el juego de probetas no irradiado y el juego irradiado con un FA= 250.

4.2 Resultados del ensayo magnético

Después de realizar el ensayo de impacto Charpy al acero SA 508 clase 3 se procedió a cortar una probeta no irradiada, una irradiada con FA= 500 y una irradiada con FA= 250, en la caja de guantes del Departamento de Combustibles de CNEA obteniendo polvo de acero el cual se introdujo en los porta muestras de plástico formando 3 juegos de muestras de polvo de acero con diferentes masas.

Se pesan las 3 muestras de polvo de acero no irradiado e irradiados a diferentes factores de avance en una balanza obteniendo los siguientes resultados:

Tabla 4.4 Peso de las muestras del polvo de acero SA 508 clase 3

Tipo de muestra	Peso de muestra (mg)
No irradiada	4,5
Irradiada con FA=250	4,9
Irradiada con FA=500	6,8

Se pesan las muestras tanto irradiadas como no irradiadas para después poder normalizar las curvas de magnetización y ciclos de histéresis con respecto al momento magnético y poder comparar dichas curvas entre sí.

Una vez pesadas todas las muestras irradiadas y sin irradiar se selecciona la primera muestra que es la no irradiada y se coloca en el porta muestra dentro del magnetómetro de muestra vibrante y por medio del software del equipo se aplica una secuencia de campo creciente desde 0 hasta 3000 Oersted a 300 K de temperatura (ver apéndice A), para observar la variación del campo coercitivo con el aumento del campo magnético aplicado.

Los ciclos crecientes van en este orden, primero se aplica a la muestra un campo magnético desde 0 hasta 50 Oersted para luego desmagnetizar la misma con un campo de -50 Oersted y así producir un ciclo de histéresis que es el objetivo de este estudio para obtener los valores de los campo coercitivos de cada ciclo de histéresis, esto se realiza para cada uno de los siguientes campos 100, 200, 500, 1000, 2000 y 3000 Oersted.

A continuación en la figura 4.2 se observa la curva de magnetización del material no irradiado con un campo magnético creciente hasta 100 Oersted, el resto de las graficas se observan en los apéndices B.

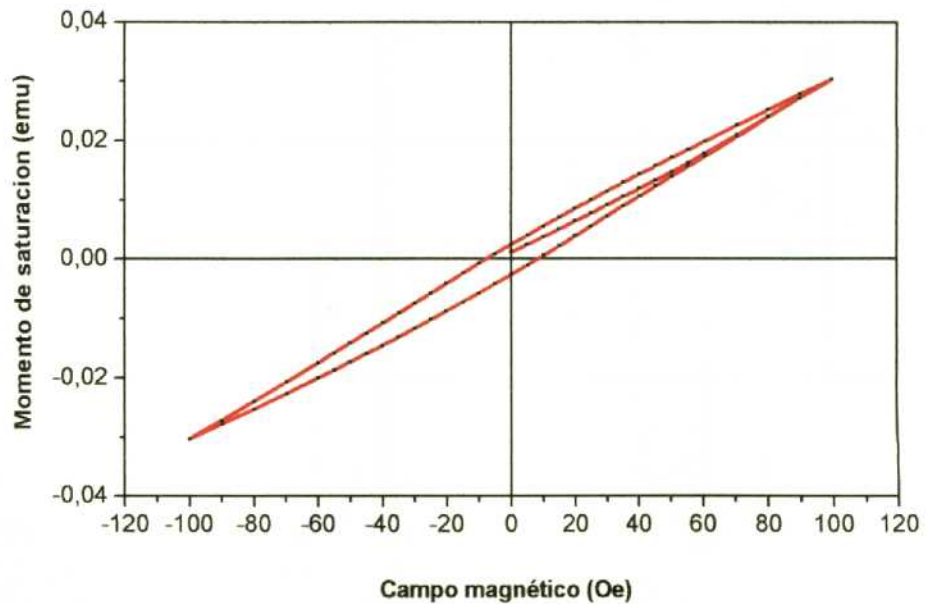


Figura 4.2 Curva de magnetización del acero SA 508 clase 3 con campo magnético aplicado creciente hasta 100 Oe

Después de obtener todas las graficas de las curvas de magnetización de los campos crecientes antes mencionados, se calcula el campo coercitivo negativo y positivo de cada curva aplicando una interpolación entre puntos muy cercanos a las abscisas. Luego de interpolar los campos coercitivos negativos y positivos se los promedia para obtener un solo campo coercitivo como se muestra en la tabla 4.5 que es el campo que se utiliza para analizar cómo va a variar este con respecto a las muestras irradiadas.

Tabla 4.5 Campos Coercitivos interpolados y promediados de la muestra No irradiada del ciclo 1

Campo magnético	Campo coercitivo negativo (-H_{c1})	Campo coercitivo positivo (+H_{c1})	Campo coercitivo promedio (H_{c1})
(Oe)	(Oe)	(Oe)	(Oe)
50	-5,99	6,27	6,13
100	-7,67	8,34	8,01
200	-11,81	17,20	14,51
500	-22,48	29,55	26,02
1000	-30,97	32,84	31,90
2000	-34,49	33,66	34,07
3000	-34,52	34,26	34,39

Se realiza la secuencia programada en el magnetómetro que se mencionó anteriormente para la misma muestra de polvo de acero no irradiado por dos veces más, en total se tendrá 3 ciclos (Fig.4.3) para cada campo magnético (50, 100, 200, 500, 1000, 2000, 3000 Oe), esto sirve para obtener los errores de medición de la muestra no irradiada. Se aplica el procedimiento anterior para calcular el coercitivo promedio de estos 2 ciclos restantes (Tabla 4.6 y 4.7).

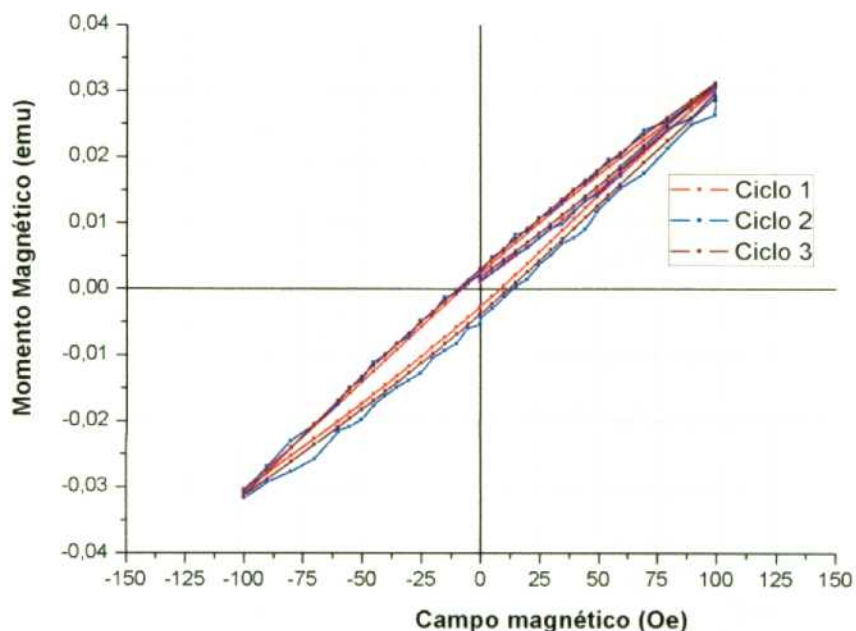


Figura 4.3 Tres ciclos de la muestra no irradiada con campo magnético aplicado de 100 Oe para cálculo del campo coercitivo promedio y errores

Tabla 4.6 Campo coercitivo promedio muestra No irradiada ciclo 2

Campo magnético (Oe)	Campo coercitivo negativo (-Hc ₂) (Oe)	Campo coercitivo positivo (+Hc ₂) (Oe)	Campo coercitivo promedio (Hc ₂) (Oe)
50	-7,51	10,02	8,77
100	-8,35	13,55	10,95
200	-28,34	9,95	19,15
500	-19,55	35,37	27,46
1000	-33,41	36,83	35,12
2000	-34,55	38,82	36,69
3000	-34,90	34,26	34,58

Tabla 4.7 Campo coercitivo promedio muestra No irradiada ciclo 3

Campo magnético	Campo coercitivo negativo (-Hc₃)	Campo coercitivo positivo (+Hc₃)	Campo coercitivo promedio (Hc₃)
(Oe)	(Oe)	(Oe)	(Oe)
50	-5,99	6,27	6,13
100	-9,63	11,87	10,75
200	-12,73	21,44	17,09
500	-19,72	34,17	26,94
1000	-26,05	38,29	32,17
2000	-31,52	35,75	33,63
3000	-34,13	34,26	34,20

Después de obtener el campo coercitivo promedio de los 3 ciclos de la muestra no irradiada se procede a promediar estos 3 ciclos para calcular el campo coercitivo negativo total y siguiendo el mismo procedimiento para calcular el campo coercitivo positivo total. Luego se promedia ambos coercitivos negativos y positivos totales para obtener el campo coercitivo del material no irradiado (Hc_{no irradiado}) como se muestra en la tabla 4.8.

Tabla 4.8 Campo coercitivo de la muestra no irradiada

Campo magnético	-Hc_{total}	+Hc_{total}	Campo coercitivo no irradiado
(Oe)	(Oe)	(Oe)	(Oe)
50	-6,50	7,52	7,01
100	-8,55	11,26	9,90
200	-17,63	16,20	16,91
500	-20,58	33,03	26,81
1000	-30,15	35,99	33,07
2000	-33,52	36,07	34,80
3000	-34,52	34,26	34,39

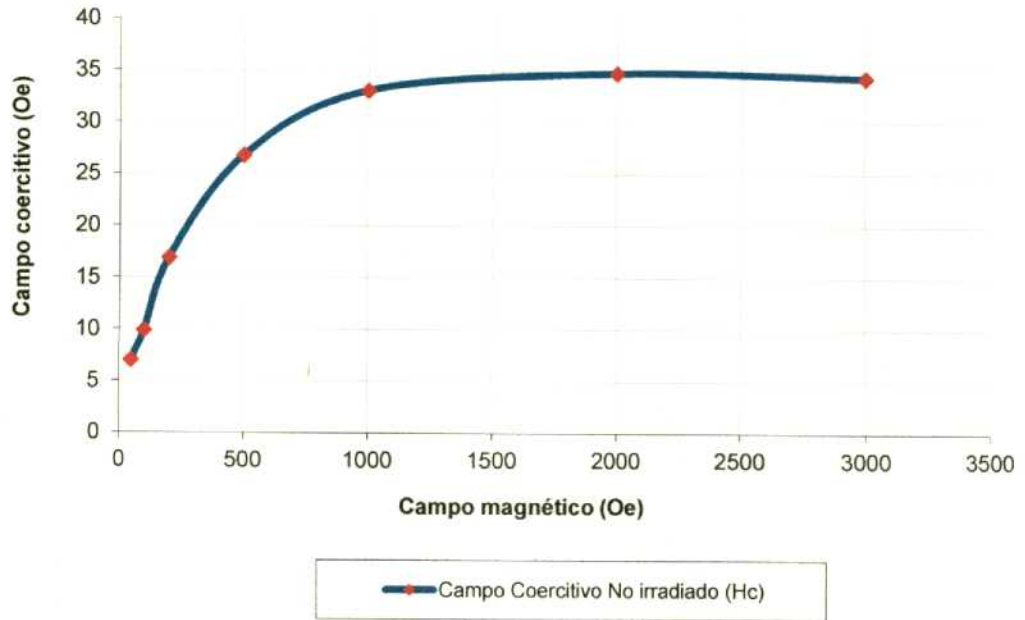


Figura 4.4 Curva del campo coercitivo del acero SA 508 clase 3 muestra no irradiada

Para calcular los errores de medición entre los tres ciclos anteriores se lo realiza mediante la siguiente ecuación, tomando como ejemplo los valores del campo coercitivo de cada uno de los ciclos a 50 Oe de campo aplicado del material no irradiado [26][27]:

$$-Hc_{Error} = \frac{ABS(-Hc_1 - (-Hc_{total})) + ABS(-Hc_2 - (-Hc_{total})) + ABS(-Hc_3 - (-Hc_{total}))}{3}$$

$$-Hc_{Error} = \frac{(-5.99 - (-6.50)) + (-7.51 - (-6.50)) + (-5.99 - (-6.50))}{3}$$

$$-Hc_{Error} = 0.68(Oe)$$

Error del campo coercitivo negativo para muestra no Irradiada con campo magnético de 50 Oe.

La tabla 4.9 muestra los errores de medición del campo coercitivo de la muestra no irradiada que es la suma de el error $-Hc_{Error}$ y el $+Hc_{Error}$.

Tabla 4.9 Error de medición del campo coercitivo

Campo magnético	$-H_{cError}$	$+H_{cError}$	H_{cError}
(Oe)	(Oe)	(Oe)	(Oe)
50	0,68	1,67	2,34
100	0,72	1,94	2,66
200	0,46	4,54	4,99
500	1,26	2,31	3,58
1000	2,73	2,10	4,83
2000	1,33	1,83	3,16
3000	0,26	0,0016	0,26

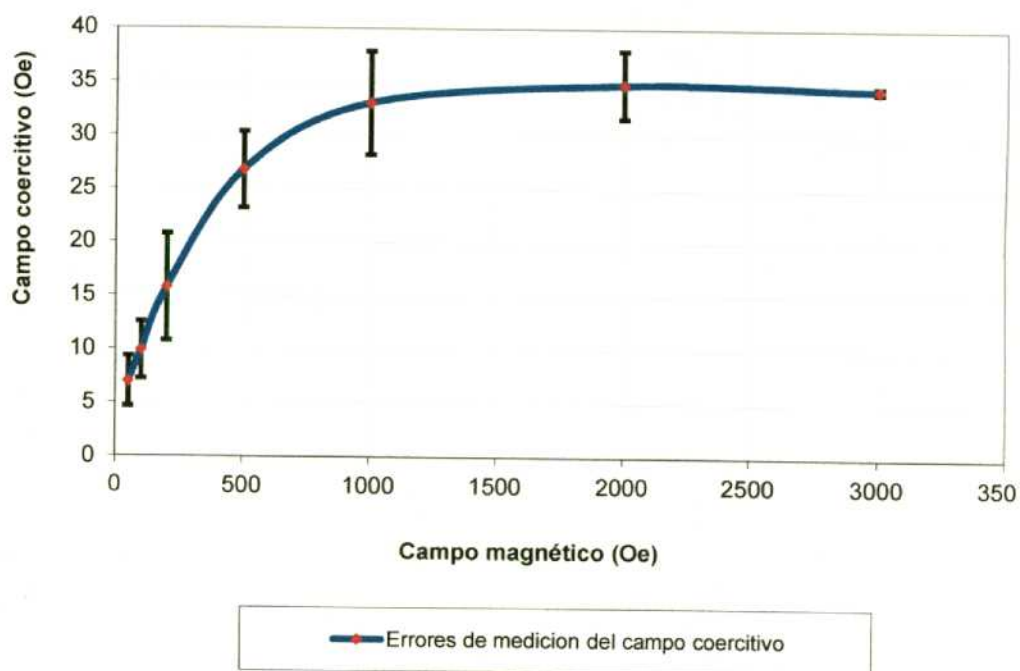


Figura 4.5 Curva del campo coercitivo con sus respectivos errores del acero SA 508 clase 3 muestra no irradiada

La grafica anterior muestra como varía el campo coercitivo con la variación del campo magnético aplicado. Esta grafica es utilizada como referencia para comparar como el material es afectado cuando se lo irradia con diferentes factores de avance.

El mismo procedimiento de los cálculos de la muestra no irradiada se le realiza a las muestras irradiadas con FA= 500 y FA= 250 para obtener el campo coercitivo. Las gráficas de las muestras irradiadas se observan en el apéndice B. A continuación se muestran las tablas y graficas finales que se obtiene de las muestras irradiadas con sus respectivos errores.

Tabla 4.10 Campo coercitivo de la muestra irradiada con FA= 250

Campo magnético	-Hc_{total}	+Hc_{total}	Campo coercitivo no irradiado
(Oe)	(Oe)	(Oe)	(Oe)
50	-8,24	8,86	8,55
100	-10,92	12,97	11,95
200	-16,03	20,71	18,37
500	-23,14	36,43	29,78
1000	-30,59	42,74	36,67
2000	-36,35	41,89	39,12
3000	-38,31	40,24	39,28

Tabla 4.11 Error de medición del campo coercitivo muestra irradiada con FA= 250

Campo magnético	-Hc_{Error}	+Hc_{Error}	Hc_{Error}
(Oe)	(Oe)	(Oe)	(Oe)
50	1,12	2,38	3,50
100	0,52	2,19	2,71
200	1,35	4,25	5,60
500	3,55	4,77	8,32
1000	5,00	3,17	8,17
2000	1,02	1,15	2,18
3000	0,67	0,51	1,18

Tabla 4.12 Campo coercitivo de la muestra irradiada con FA= 500

Campo magnético (Oe)	-Hc _{total} (Oe)	+Hc _{total} (Oe)	Campo coercitivo no irradiado (Oe)
50	-8,40	10,98	9,69
100	-11,54	14,77	13,15
200	-15,84	29,91	22,88
500	-26,89	44,17	35,53
1000	-33,63	47,99	40,81
2000	-39,72	45,42	42,57
3000	-45,62	44,01	44,82

Tabla 4.13 Error de medición del campo coercitivo muestra irradiada con FA= 500

Campo magnético (Oe)	-Hc _{Error} (Oe)	+Hc _{Error} (Oe)	Hc _{Error} (Oe)
50	0,80	0,51	1,31
100	1,60	2,62	4,22
200	0,82	1,35	2,17
500	1,40	1,24	2,64
1000	0,75	1,42	2,17
2000	0,40	0,56	0,96
3000	3,03	0,64	3,67

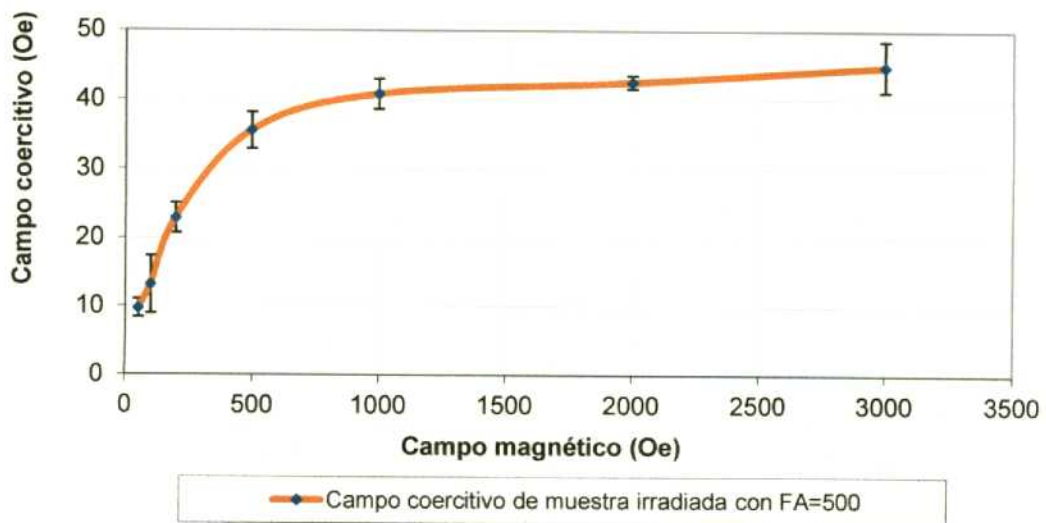


Figura 4.6 Curva del campo coercitivo con sus respectivos errores del acero SA 508 clase 3 muestra irradiada con FA= 500

En el capítulo siguiente se analizarán los resultados obtenidos para los tres casos estudiados.

CAPÍTULO 5

5. Discusión

Hasta ahora no se había realizado en ninguna parte del mundo un ensayo sistemático del estudio del efecto del factor de avance en el comportamiento mecánico de aceros de RPV. Fue posible en este caso porque se contó con un reactor como el RA1 que tiene la posibilidad de ser mantenido por tiempos prolongados a potencias menores que la máxima, ya que no interfiere con otros experimentos como sucede en la mayoría de otros reactores MTR del mundo.

El estudio sistemático consistió en irradiar a temperatura de operación de las centrales nucleares de potencia, con un control estricto de la temperatura, y bajo un mismo espectro neutrónico. Se irradió en una facilidad construida ad-hoc que fue ubicada en una posición de irradiación idéntica en ambos casos y con dos potencias del reactor: 40 kW y 20 kW. Esto corresponde a flujos rápidos de $1 \times 10^{16} \text{ n m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ y $5 \times 10^{15} \text{ nm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ respectivamente. La primera irradiación a 40 kW fue de 492 horas y la segunda a 20 kW de 984 horas. Esto significó, con respecto a los flujos estimados en la pared interna del RPV de Atucha II, que se irradió con dos factores de avance: 500 y 250 respectivamente.

Una de las conclusiones previas a este trabajo, correspondientes a los ensayos Charpy, pone de manifiesto el carácter no conservativo de los resultados obtenidos en experimentos llevados a cabo en reactores MTR, en donde se irradia el material de recipientes a presión a flujos muy por encima de lo que indica la norma y en donde en períodos de irradiación muy cortos (por ejemplo 2,5 meses en el caso de la irradiación en Mol, en Bélgica) se pretendió simular la fluencia correspondiente a 32 años de plena potencia de Atucha I.

Evidentemente la aceleración de la irradiación con factores de avance que en algunos casos es mayor a 800, no refleja el real estado de fragilización de los RPV.

Si bien no había hasta ahora pruebas contundentes de este fenómeno las normas de los programas de vigilancia siempre propusieron factores de avance < 3 [ASTM, E 185-82]. Este requisito no se cumplió en los ensayos realizados para el caso de la central Atucha 1:

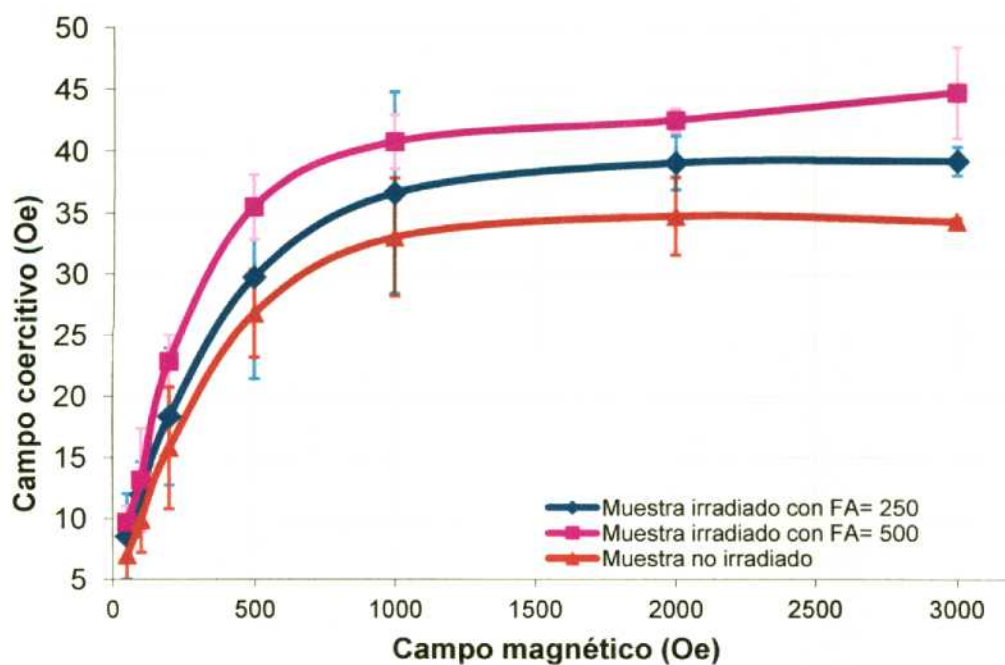
se irradió material de su recipiente en el reactor VAK de Alemania con un FA de 183, y en el BR-2 de Bélgica (FA>800) [28].

Es indudable que realizar los programas de vigilancia con aceleraciones mayores a la norma no da garantías para determinar la vida útil real de los recipientes a presión frente a los valores de la vida útil por diseño de 32 años equivalentes de plena potencia.

Es imprescindible entonces contar con programas de vigilancia en las propias centrales, lo que implica irradiar especímenes para ensayos mecánicos en las zonas más comprometidas de los RPV que son voluminosos y complejos de analizar.

En este trabajo de tesis se intentó ensayar un método posible de análisis del estado de los recipientes a presión, aplicando una técnica magnética.

La técnica magnética iniciada en esta tesis da la posibilidad de obtener el estado de los RPV de forma operativamente más sencilla y con mayor economía de material; es una técnica prácticamente no destructiva y se muestra en este trabajo que es posible, a través de los ciclos menores de histéresis y de la medida del campo coercitivo, diferenciar los distintos estadios de irradiación.



En la figura 5.1 se han representado las curvas de campo coercitivo vs el campo magnético aplicado en el material sin irradiar y en los irradiados con distintos factores de avance según lo desarrollado en el Capítulo de resultados. Se observa que, dentro de los errores experimentales es posible diferenciar el comportamiento en cada caso.

La interpretación de los resultados obtenidos se basa en la experiencia existente en el comportamiento de los dominios magnéticos con material deformado plásticamente [22].

En este trabajo se probó la hipótesis de que los defectos creados por la irradiación influyen en la dinámica de los dominios magnéticos, como se comprueba en el caso del aumento en la densidad de dislocaciones por trabajado mecánico.

Para interpretar los resultados obtenidos hay que pensar que las paredes de dominios magnéticos avanzan como tales, como una ola que va cambiando la magnetización y que cualquier obstáculo a este movimiento se manifiesta en los ciclos de histéresis.

Se observó que el menor campo coercitivo se obtuvo para el material no irradiado. En este caso la distribución de aleantes en forma de precipitados pre-existentes permite que las paredes de dominio retrocedan cuando se aplican campos externos opuestos a la magnetización inicial, de modo que con campos menores se obtiene la magnetización cero.

Las dos muestras irradiadas con distintos factores de avance pero con la misma fluencia neutrónica se supone que tienen igual volumen total de defectos, sólo que su distribución es distinta. Esta hipótesis necesita ser corroborada por técnicas que permitan identificar la concentración volumétrica de defectos.

En el caso de la muestra irradiada con un factor de avance de 250, es decir a un flujo de $5 \times 10^{15} \text{ n.m}^{-2}\text{s}^{-1}$, la sobreconcentración de vacancias por encima del equilibrio termodinámico permite la conformación de precipitados (CRP) que tuvieron tiempo de alcanzar una distribución de tamaños mayores dado el mayor tiempo de irradiación, como se observa en la figura 5.2 (a). Estos precipitados con mayor tamaño pero en menor cantidad permiten, aunque con mayor dificultad que en caso sin irradiar, el movimiento de las paredes de dominio y los campos coercitivos necesarios son superiores a los de las muestras sin irradiar. Conjuntamente con los precipitados los defectos de la matriz (SMD) se propone que actúan de modo similar bloqueando el avance de las paredes de dominio

dependiendo de su tamaño y distancia entre sí. Hay que recordar que la temperatura de irradiación permite sólo la recuperación parcial de los aglomerados de defectos creados por irradiación [9].

Cuando el factor de avance es de 500, si bien la sobreconcentración de vacancias es mayor, mayor es su recombinación, quedando menos vacancias para la difusión y, además, el tiempo para este proceso es menor por lo tanto la distribución de precipitados es en mayor número y de menor tamaño que en el caso anterior, provocando un bloqueo mayor al movimiento de las paredes de dominio (ver figura 5.2 (b)); esto se refleja en un aumentando en los valores del campo coercitivo. Es un mecanismo similar al endurecimiento en materiales envejecidos.

Como se observa en la figura 5.2 (b) la muestra que se irradió con factor de avance de 500 tiene una distancia d entre defectos menor que la distancia D de la muestra irradiada con factor de avance de 250; así se obstaculiza el paso de las paredes de dominio, ya que estas paredes están en un rango mayor que d . Este impedimento en el movimiento de las paredes de dominio se refleja en un aumento en el campo coercitivo para poder vencer este impedimento. En cambio la muestra irradiada con factor de avance de 250 tiene una distancia D mayor la cual facilita el movimiento de las paredes de dominio y su campo coercitivo es menor como se observa en la figura 5.2 (a).

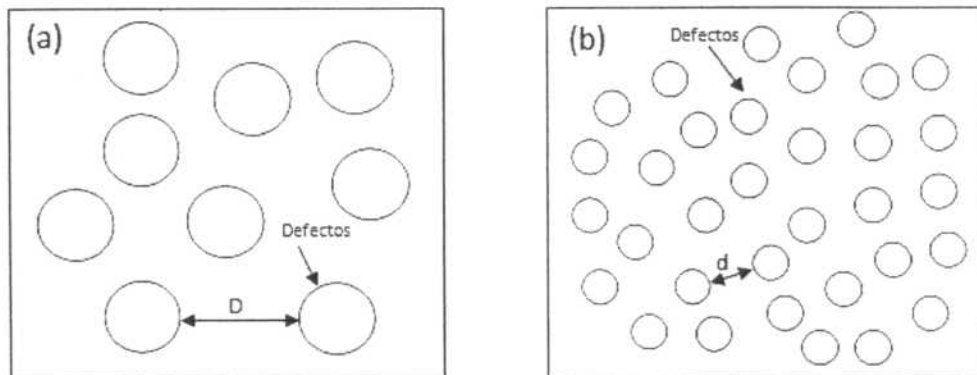


Figura 5.2 (a) Esquema de distancia (D) entre defectos para muestra con $FA=250$. (b) Esquema de distancia (d) entre defectos para muestra con $FA=500$.

Esta explicación de la fenomenología medida tiene que corroborarse con estudios más detallados de la morfología de los precipitados. Además se está suponiendo que la acción conjunta precipitados más efectos de la red (SMD + CRP, ver Cap. 1) actúan en el mismo

sentido, es decir, los aglomerados de vacancias e intersticiales (lazos de dislocaciones) se comportan frente al tiempo de irradiación con una dinámica que depende del mismo modo de la difusión de vacancias e intersticiales libres que migran hacia los aglomerados como sumideros. Los factores de avance mayores para la misma fluencia, corresponden a una distribución de defectos de la matriz que bloquean a su vez los dominios magnéticos dando campos coercitivos mayores.

En la actualidad varias técnicas se aplican simultáneamente para identificar la microestructura que se desarrolla en cada aleación y condición de irradiación [29]:

- Metalografía óptica
- Fricción interna
- Microscopía electrónica de transmisión
- Microscopía electrónica de barrido
- EDAX
- SANS (dispersión de neutrones a bajo ángulo)
- Espectroscopía de aniquilación de positrones
- Tomografía atómica de fuerza
- Coeficiente Seebeck de resistividad

Ninguna técnica por sí sola puede identificar los defectos en cada caso. Usadas en forma complementaria pueden dar una poderosa capacidad para revelar interacciones a nivel atómico para ayudar al desarrollo de modelos mecanísticos del problema de la fragilización por irradiación [30][31][32][33][34][35].

En el proyecto encarado por el Grupo de Daño por Radiación se están desarrollando varias de estas técnicas para lograr la máxima comprensión del proceso de fragilización de aceros para RPV.

Para identificar inequívocamente la distribución de SMD y CRP en cada caso las técnicas como TEM y SANS se están aplicando aunque son complejas ya que es muy difícil aplicarlas en material irradiado, o se requieren instalaciones especiales para realizarlas.

Las técnicas magnéticas como las desarrolladas en esta tesis en conjunto con las mencionadas, una vez identificada inequívocamente la estructura de daño en función del tiempo de irradiación, permitirán una mejora en los programas de vigilancia de los RPV de Centrales Nucleares.

CAPÍTULO 6

6. Conclusiones

De este trabajo de Maestría podemos destacar las siguientes conclusiones:

Se han podido obtener diferencias mensurables utilizando una técnica magnética, midiendo el campo coercitivo a partir de los lazos menores de histéresis.

Se han planteado hipótesis sobre la microestructura que evoluciona con la irradiación para explicar el comportamiento obtenido.

Esta técnica, complementada con otras de identificación de la microestructura en cada caso, permite evaluar en forma sencilla el estado del acero irradiado. Esto podría reemplazar los costosos métodos de evaluación de la fragilidad, una vez que se haya podido correlacionar los resultados mecánicos con los magnéticos.

REFERENCIAS

- [1] E.A. Little, "Factors Controlling the Irradiation Embrittlement Response of Low Alloy Pressure Vessel Steels", in Dimensional Stability and Mechanical Behaviour of Irradiated Metals and Alloys, BNES Vol2, p.143, 1984.M. W.,
- [2] W.J. Pythian, C.A. English and J.T.Buswell "The Microstructural and microchemical examination of Reactor Pressure Vessel Steels", Invited Paper presented at 5th. International Meeting on Enviromental Degradation of Reactor Materials- Water Reactors, Monterey, California, 1991.
- [3] R. Kempf, A. M. Fortis, S. C. Tolosa, "Avances en el estudio de la fragilización por irradiación en aceros de recipientes a presión de centrales nucleares", AATN (2008).
- [4] S. Takahashi, H. Kikuchi, and K. Ara, N. Ebine, Y. Kamada and S. Kobayashi, M. Suzuki, "In situ magnetic measurements under neutron radiation in Fe metal and low carbon steel", Journal of Applied Physics 100, 023902 (2006).
- [5] S.Glasstone y A. Sensonske, "Ingeniería de Reactores Nucleares", Ed. Reverté Bs.As.
- [6] H. Semat "Física Atómica y Nuclear", Ed. Aguilar Madrid.
- [7] I. Kaplan "Física Nuclear", Ed. Aguilar Madrid.
- [8] M. W. Thompson, "Defects and Radiation Damage in Metals", Cambridge University Press, 1969.
- [9] A. M. Fortis, "Daño por Radiación", Cap. 3 "Daño por Radiación Neutronica", IT/A-76/03.
- [10] J.A. Brinkman, "Production of Atomic Displacements by High Energy Particles", Am. J. Phys., 24, nº 1-9, (1956), 246.-267.

- [11] A. Seeger, "On the theory of Radiation Damage and Radiation Hardening", Proc. Second. International Conf. on Peaceful uses of Atomic Energy, Ginebra, (1958), 250-273.
- [12] W.J. Phytian, A.J.E. Foreman, C.A.English, J.T. Buswell, M. Hetherington, K. Roberts y S. Pizzini "The Structure and Hardening Mechanism of Copper Precipitation in Thermally Aged or Irradiated Fe-Cu and Fe-Cu-Ni Model Alloys", presentado en el 15th International Symposium, Nashville, 1990.
- [13] F. W. Young, Jr., "Radiation Damage in Metals", American Soc. for Metals, Metals Park, Ohio, 1976, 95.
- [14] T. Blewitt y R. Colman, Phys Rev 82, (1951), 760.
- [15] T. Blewitt, R. Colman, R. Jamison y J. Redman, J. of Nucl. Mat. 2, (1960), 277.
- [16] M.S. Wechsler, R.G. Berggen, N. E. Hinkle and W. J. Stelzman, "Irradiation Effects in Structural Alloys for Thermal and Fast Reactors", STP-457 ASTM, (1969).
- [17] H. Kronmüller and M. Fähnle, "Micromagnetism and the Microstructure of Ferromagnetic Solids", (Cambridge University Press, Cambridge, 2003).
- [18] B. D. Cullity "Irradiation to Magnetic Materials", University of Notre Dame, (1972), Cap 1,4,9.
- [19] Ch. Kittel, "Introducción a la Física del sólido", N.Y. USA, tercera edición, Cap. 15.
- [20] S. Takahashi, T. Ueda, and L. Zhang, J. Phys.: Condens. Matter 15, 7997 (2003).
- [21] S. Takahashi, T. Ueda, and L. Zhang, J. Phys. Soc. Jpn. 73, 239 (2004).
- [22] S. Kobayashi, H. Kikuchi, S. Takahashi, Y. kamada, K. Ara, T. Yamamoto, D. Klingensmith, G.R. Odette, "The effect of copper and manganese on magnetic minor hysteresis loops in neutron irradiated Fe model alloys", Journal of Nuclear Materials, Vol. 384 (2009), pag. 109-114.

- [23] Informe interno Departamento Reactores, CNEA.
- [24] G.D.H Coccoz, , C.A Vázquez, , R. Kempf, A.M. Fortis, "Development of facilities to irradiate materials in experimental reactors", *Annales Radiation Protection Association, IRPA*, (2008).
- [25] Quantum Design, "User's Manual VersaLab free", San Diego Third edition of manual completed February, (2009).
- [26] L. D'HAINAUT, "Cálculo de incertidumbres en las medidas". Editorial Trillas, S.A., México, (1978).
- [27] J. Espinoza Puente, Guía de cálculos de errores.
- [28] Integrity of Reactor Pressure Vessels in Nuclear Power Plants: Assessment of Irradiation Embrittlement Effects in Reactor Pressure Vessel Steels. Technical Reports IAEA Nuclear Energy Series No. NP-T-3.11- Vienna (2009).
- [29] R. Nanstad, "Techniques for and Examples of Microstructural Examination of RPV Steels", Joint ICTP/IAEA Workshop on Irradiation-induced Embrittlement of Pressure Vessel Steels, Nov. 2009, Trieste.
- [30] G.R. Odette, "On the Dominant Mechanisms of Irradiation Embrittlement of RPV Steels", *Scripta Met.*, 17, p1183,(1983).
- [31] G.E. Lucas y G.R. Odette, "Recent Advances in Understanding Radiation Hardening and Embrittlement Mechanisms in Pressure Vessels Steels", *Proceedings of the Second International Symposium on Environmental Degradation Materials in Nuclear Power Systems-Water Reactors*, ANS, Illinois, p345,1986.
- [32] R. Chaouadi, S. Gavrillov, R. Fernandez, K. Lambrinou, M. Scibetta, "Surveillance program assessment for critical components of next generation nuclear reactors", *Proceedings of ICAPP 2011, Nice, France, May 2-5, 2011*.

[33] Boris Minov, “Study of the hardening in thermally aged and neutron-irradiated iron-copper alloys on the basis of combined mechanical and magnetic relaxation phenomena”, Belgian Nuclear Research Centre (SCK•CEN), Proceedings of ICAPP 2011 Nice, France, May 2-5, 2011

[34] R. Naanstadt, R. Stoller, Y. Osetsky, “Modelling & Simulation of Irradiation-Induced Microstructural Changes in RPV Steels”, IAEA workshop on Structure, systems and components integrity, Belo Horizonte–Brasil, June 2009.

[35] E. Keim, H. Hein, “RPV Irradiation Surveillance Programs”, AREVA NP GmbH Technical Center, IAEA Workshop on Structural Integrity, Belo Horizonte–Brasil, June 2009.

APÉNDICE A

Secuencia aplicada en el magnetómetro de muestra vibrante VersaLab para campos crecientes desde 50-3000 Oe con temperatura de 300K con repetición de 3 ciclos para cálculos de errores.

Set Temperature 300K at 5K/min. Fast Settle

Wait For Temperature, Delay 120 secs (2.0 mins), No Action

New Datafile "C:\QdVersaLab\Data\Nicolas\15-04-11\SA508_NI2_300_dec.dat"

Scan Field from 0.00e to 10.00e at 10.00e/sec, in 11 steps, Uniform, Linear,

VSM Measure for 1 sec at 2 mm 40 Hz every 0 sec AutoCenter OFF

End Scan

Scan Field from 10.00e to 50.00e at 10.00e/sec, in 5 steps, Uniform, Linear,

VSM Measure for 1 sec at 2 mm 40 Hz every 0 sec AutoCenter OFF

End Scan

Scan Field from 50.00e to 10.00e at 10.00e/sec, in 5 steps, Uniform, Linear,

VSM Measure for 1 sec at 2 mm 40 Hz every 0 sec AutoCenter OFF

End Scan

Scan Field from 10.00e to 0.00e at 10.00e/sec, in 11 steps, Uniform, Linear,

VSM Measure for 1 sec at 2 mm 40 Hz every 0 sec AutoCenter OFF

End Scan

Scan Field from 0.00e to -10.00e at 10.00e/sec, in 11 steps, Uniform, Linear,

VSM Measure for 1 sec at 2 mm 40 Hz every 0 sec AutoCenter OFF

End Scan

Scan Field from -10.00e to -50.00e at 10.00e/sec, in 5 steps, Uniform, Linear,

VSM Measure for 1 sec at 2 mm 40 Hz every 0 sec AutoCenter OFF

End Scan

Scan Field from -50.00e to -10.00e at 10.00e/sec, in 5 steps, Uniform, Linear,

VSM Measure for 1 sec at 2 mm 40 Hz every 0 sec AutoCenter OFF

End Scan

Scan Field from -10.00e to 0.00e at 10.00e/sec, in 11 steps, Uniform, Linear,

VSM Measure for 1 sec at 2 mm 40 Hz every 0 sec AutoCenter OFF

End Scan

Scan Field from 0.00e to 10.00e at 10.00e/sec, in 11 steps, Uniform, Linear,

VSM Measure for 1 sec at 2 mm 40 Hz every 0 sec AutoCenter OFF

End Scan

Scan Field from 10.00e to 50.00e at 10.00e/sec, in 5 steps, Uniform, Linear,

VSM Measure for 1 sec at 2 mm 40 Hz every 0 sec AutoCenter OFF

End Scan

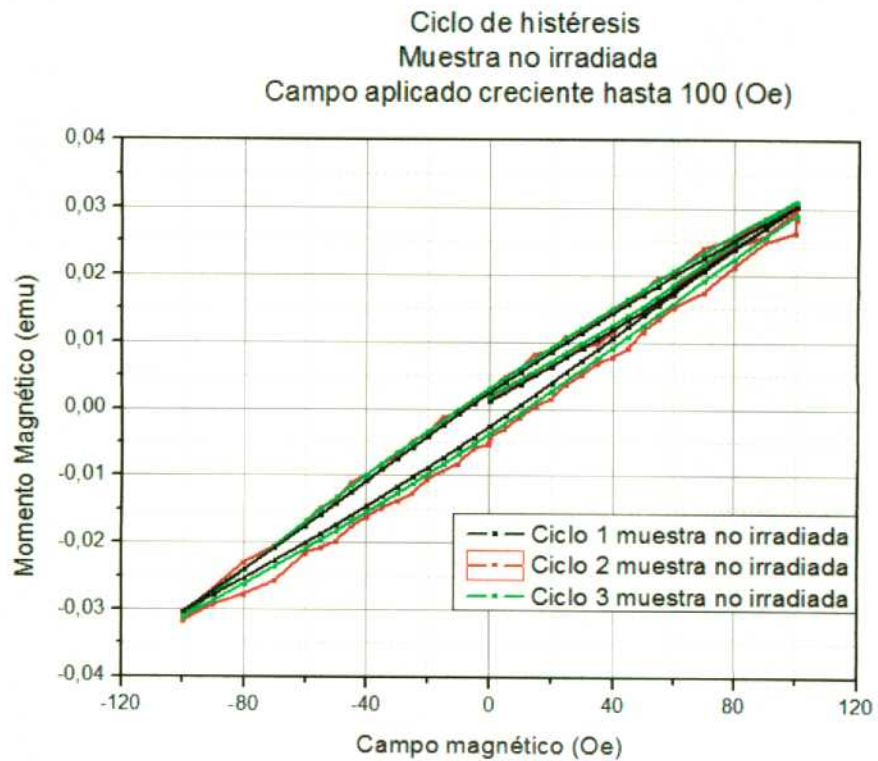
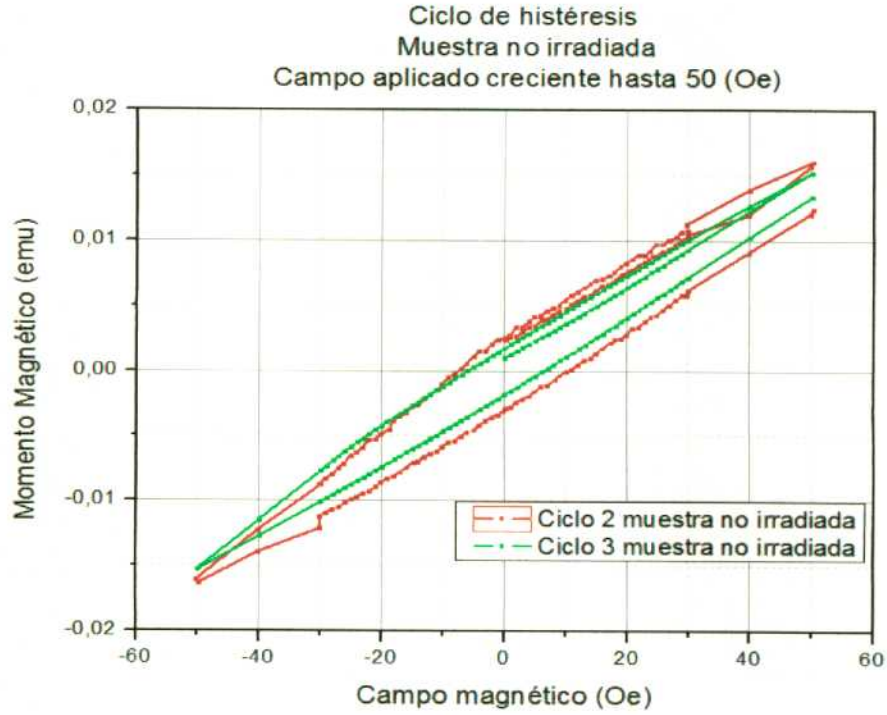
Scan Field from 50.00e to 10.00e at 10.00e/sec, in 5 steps, Uniform, Linear,

VSM Measure for 1 sec at 2 mm 40 Hz every 0 sec AutoCenter OFF
End Scan
Scan Field from 10.0Oe to 0.0Oe at 10.0Oe/sec, in 11 steps, Uniform, Linear,
VSM Measure for 1 sec at 2 mm 40 Hz every 0 sec AutoCenter OFF
End Scan

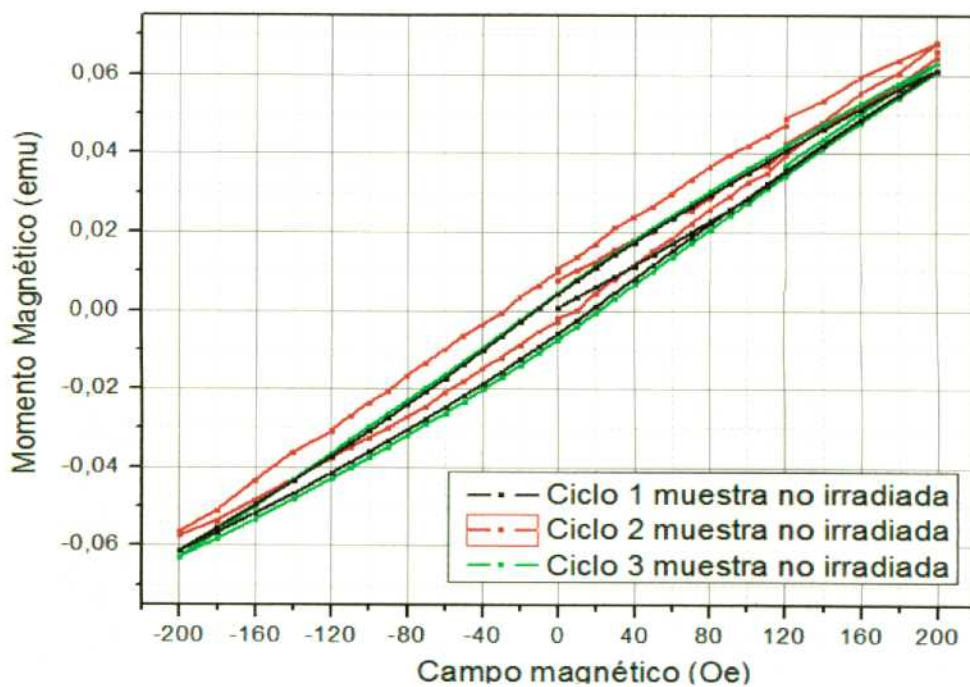
Esta misma secuencia se utiliza para los demás campos crecientes aplicado hasta llegar a los 3000 Oe, solo variando el directorio para guardar los datos obtenidos. Por motivos de espacio no se colocó toda la secuencia completa para los demás campos y los ciclos repetitivos para cálculos de errores, sino solo una muestra del primer campo aplicado a 50 Oe en forma creciente a una temperatura de 300K.

APÉNDICE B

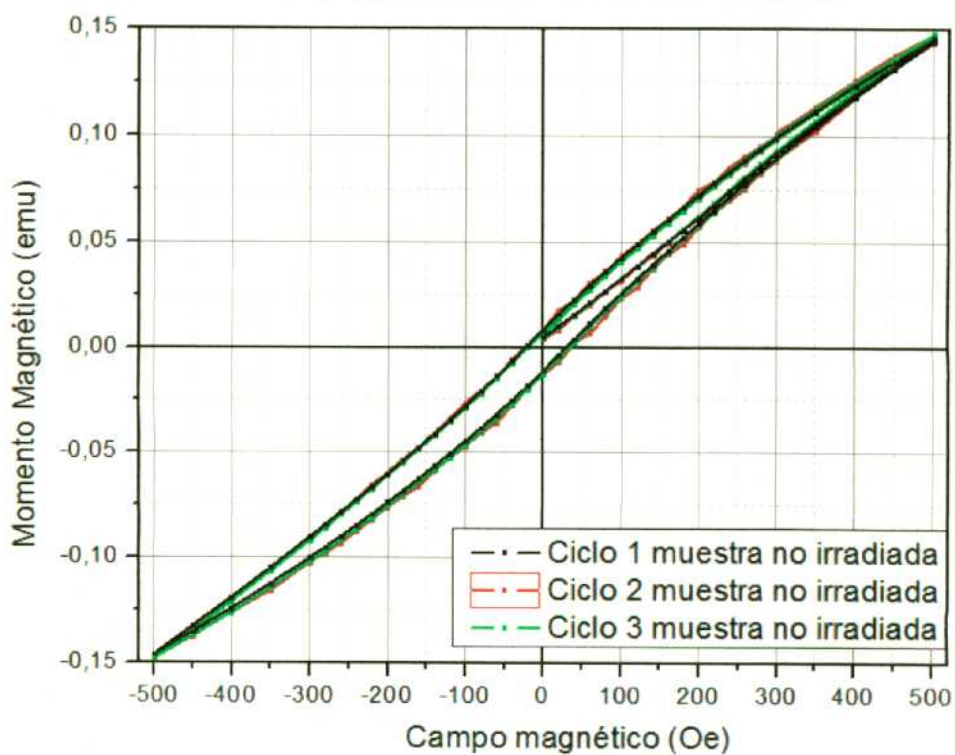
Graficas de los menores ciclos de histéresis de muestra no irradiada con campo magnético creciente desde 50-3000 (Oe) a 300K.

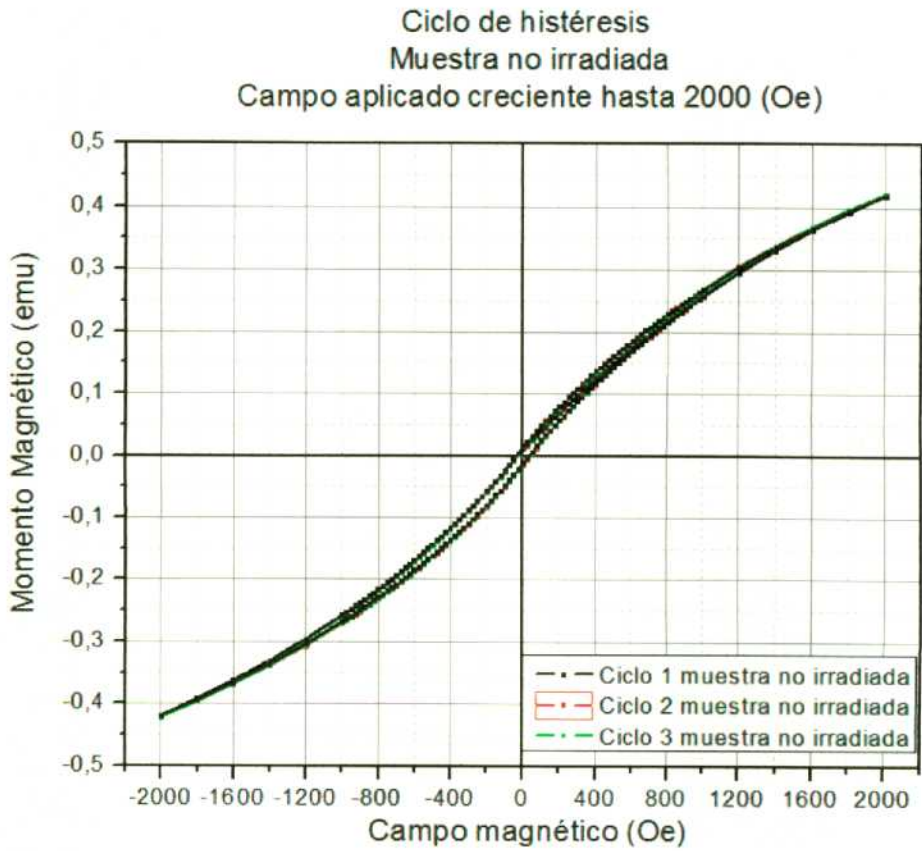
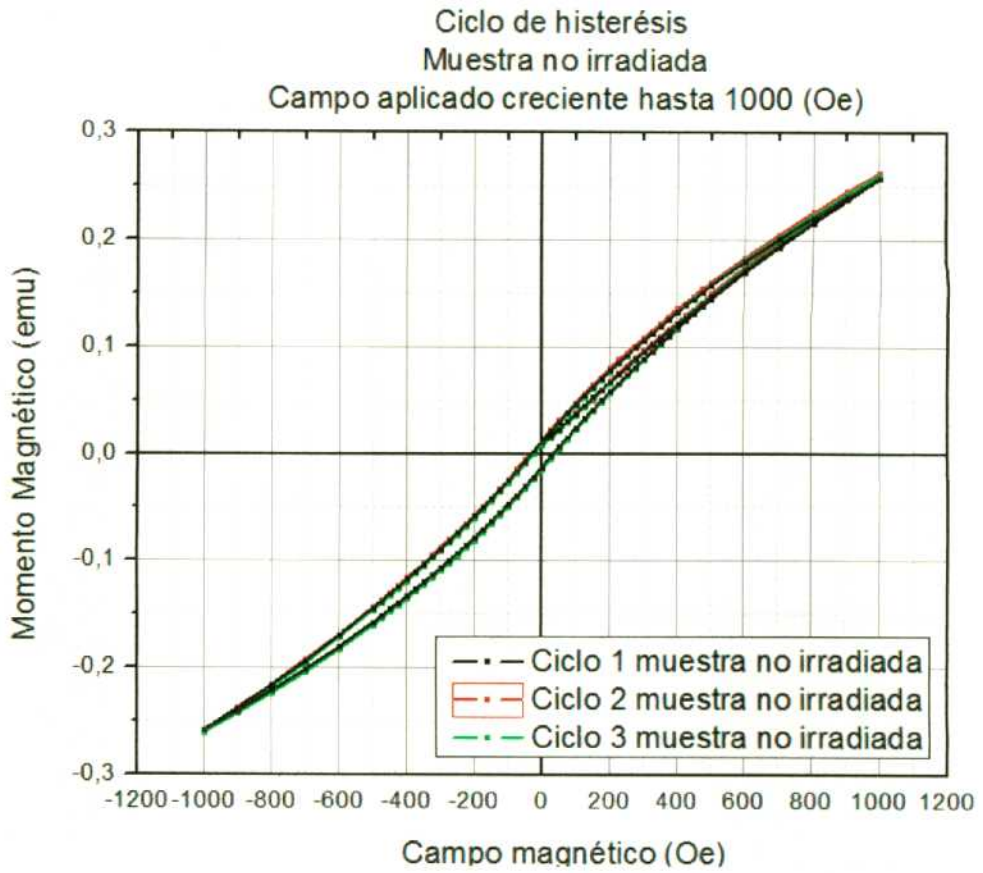


Ciclo de histéresis
Muestra no irradiada
Campo aplicado creciente hasta 200 (Oe)

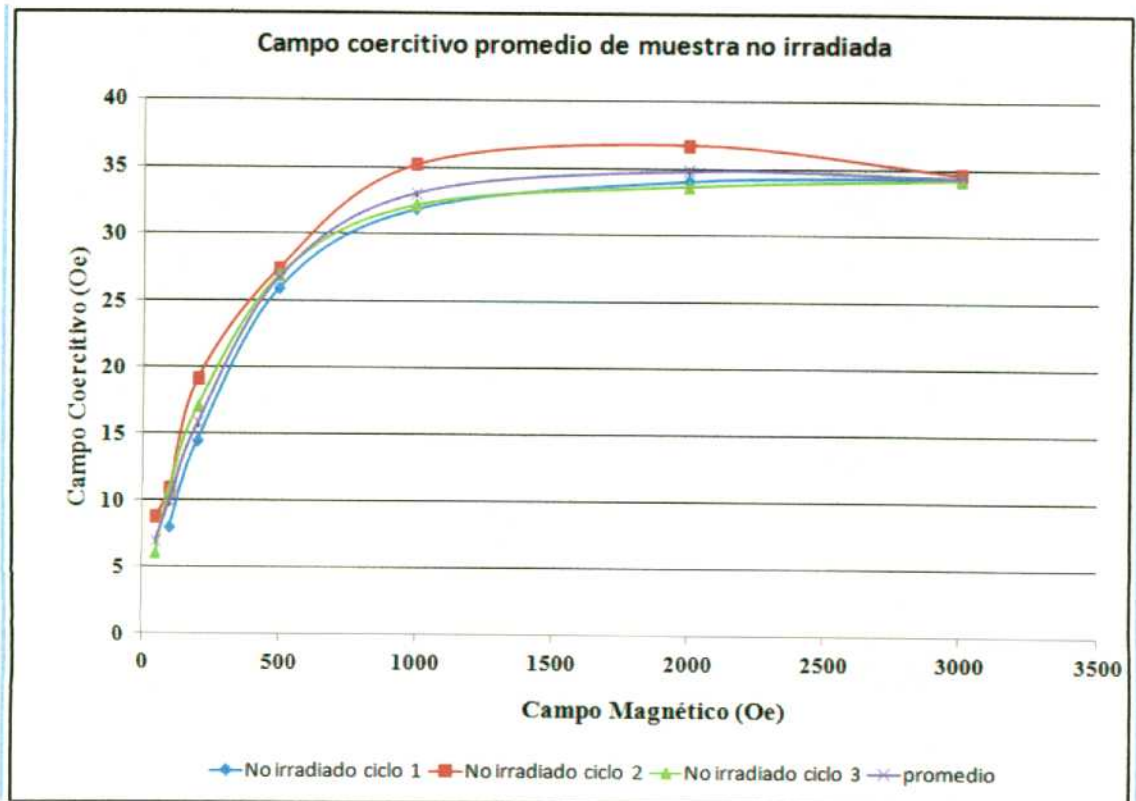
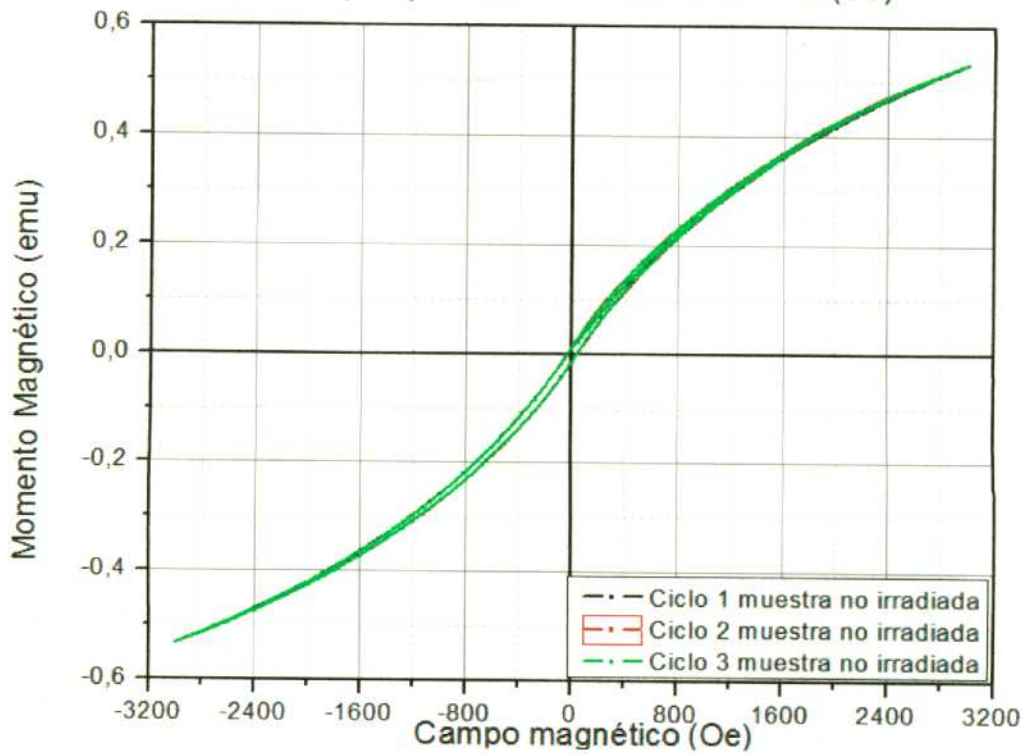


Ciclo de histéresis
Muestra no irradiada
Campo aplicado creciente hasta 500 (Oe)

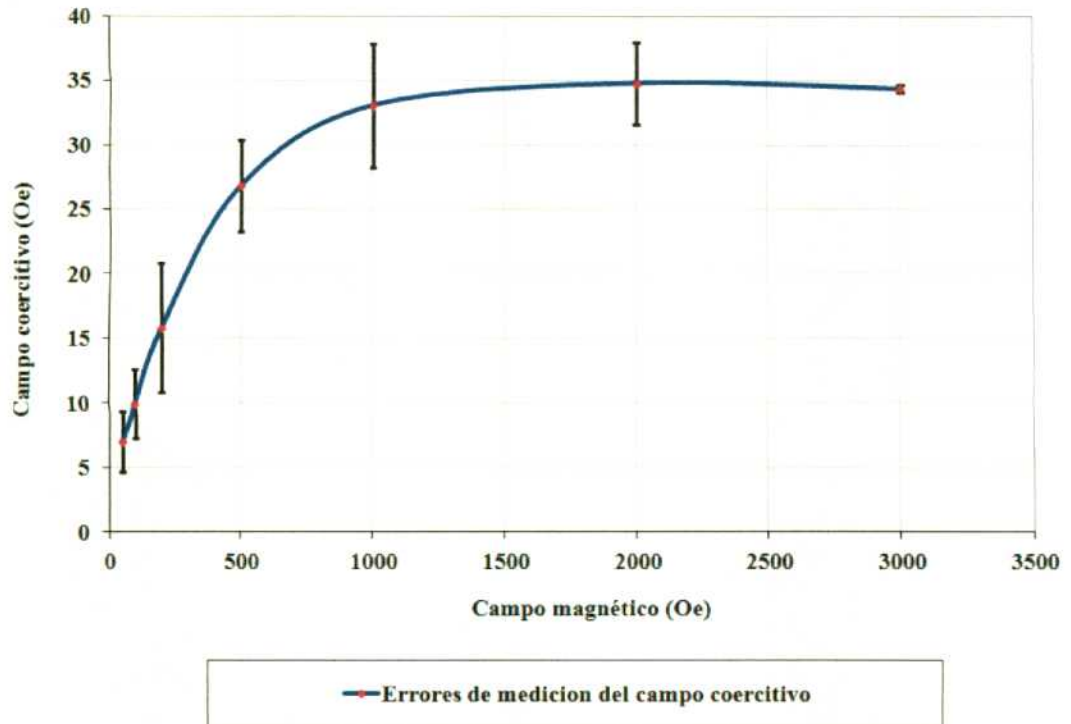




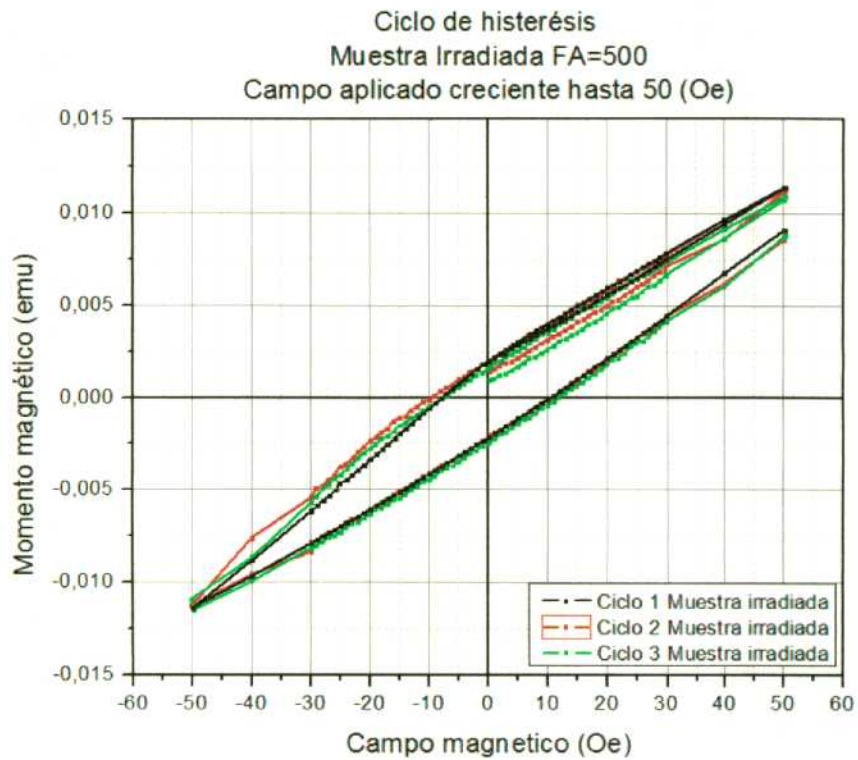
Ciclo de histerésis
 Muestra no irradiada
 Campo aplicado creciente hasta 3000 (Oe)

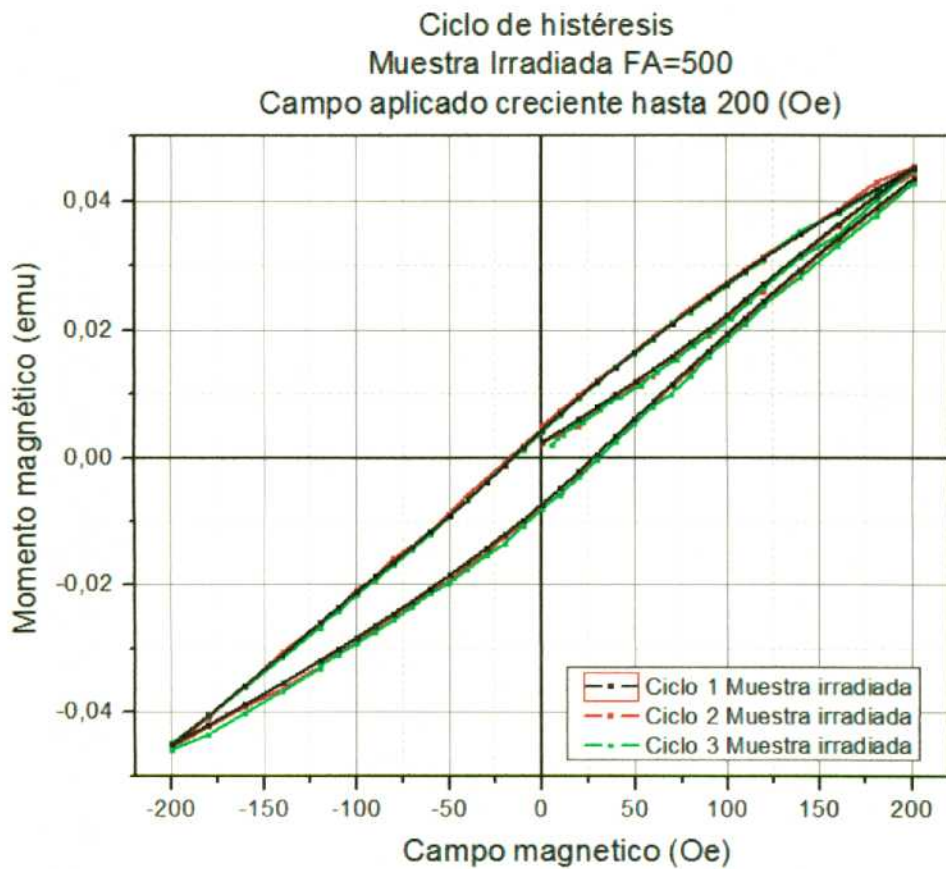
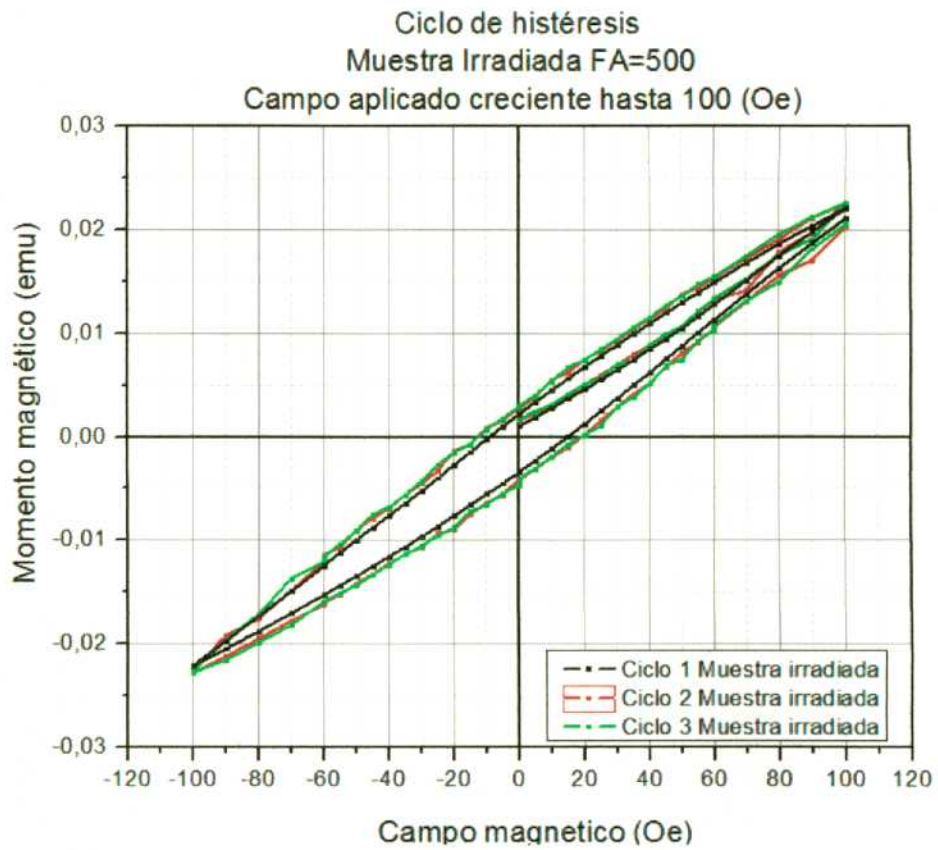


Campo coercitivo de muestra no irradiada

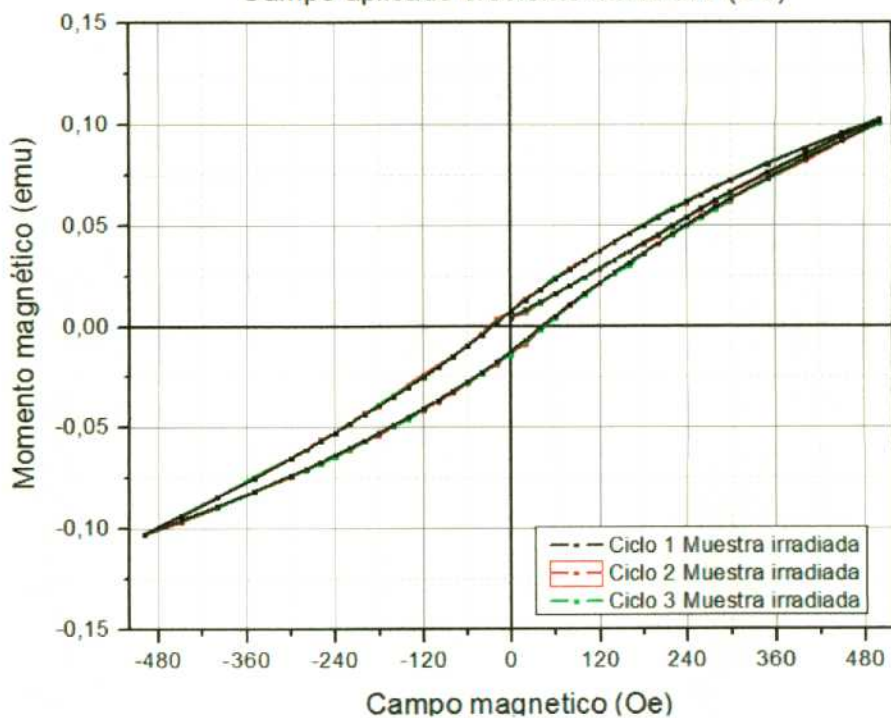


Graficas de los menores ciclos de histéresis de muestra irradiada con FA=500 y campo magnético creciente desde 50-3000 (Oe) a 300K.

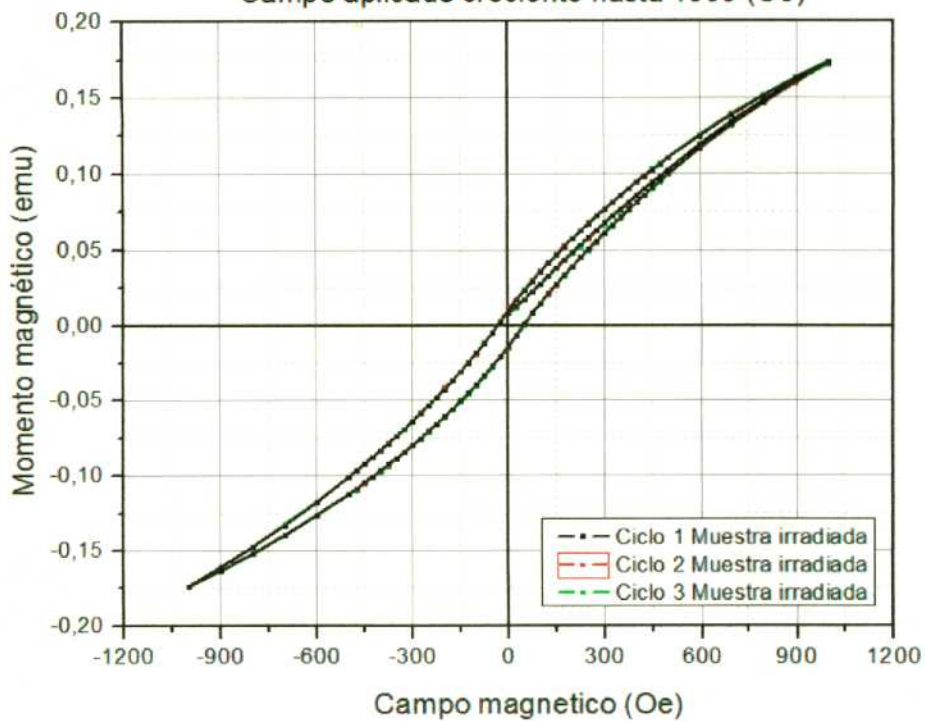




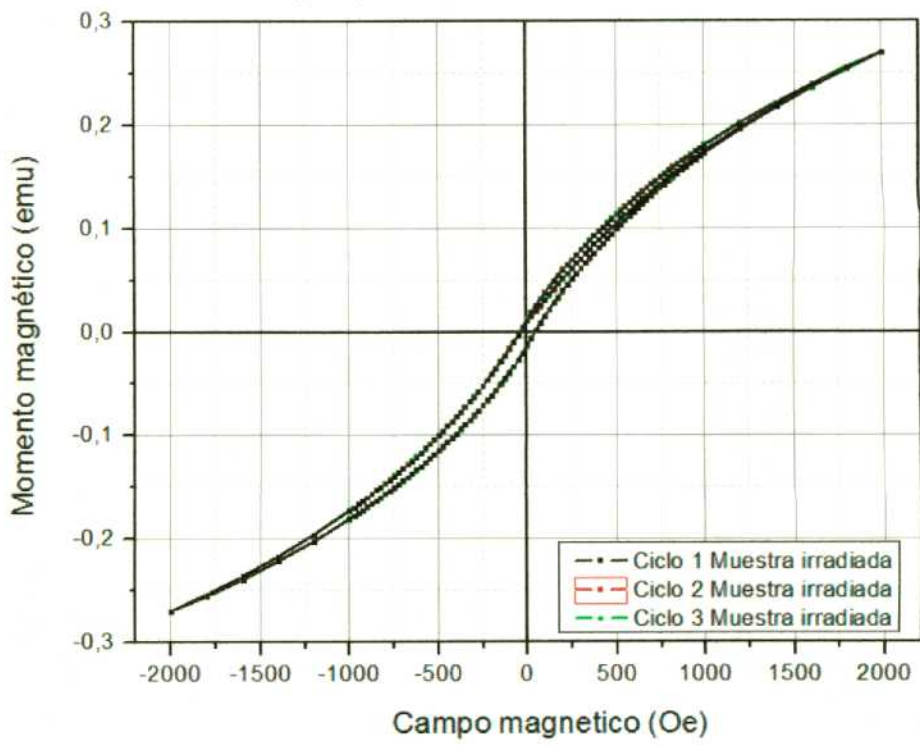
Ciclo de histéresis
Muestra Irradiada FA=500
Campo aplicado creciente hasta 500 (Oe)



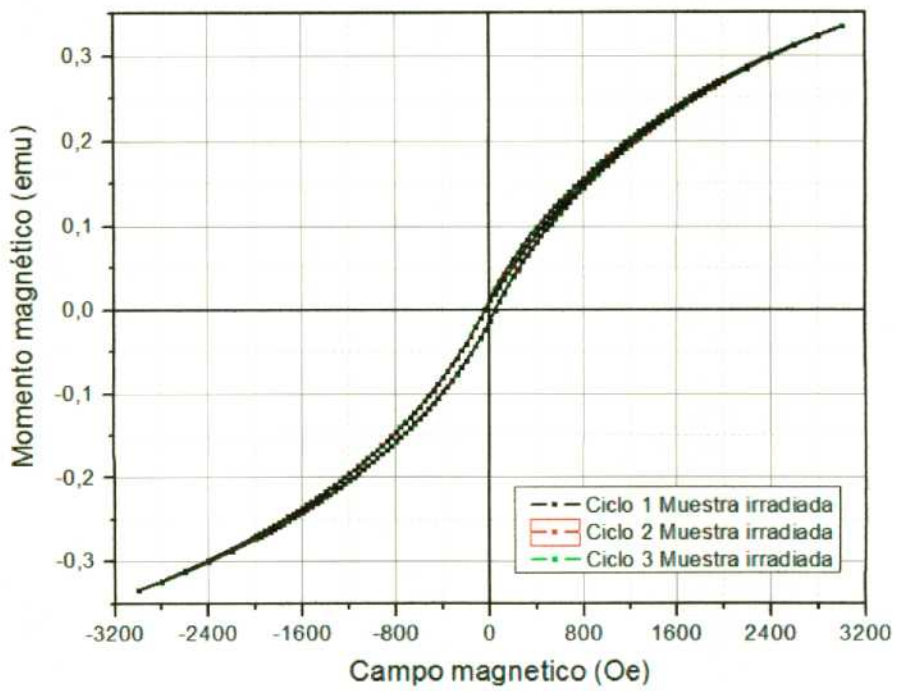
Ciclo de histéresis
Muestra Irradiada FA=500
Campo aplicado creciente hasta 1000 (Oe)

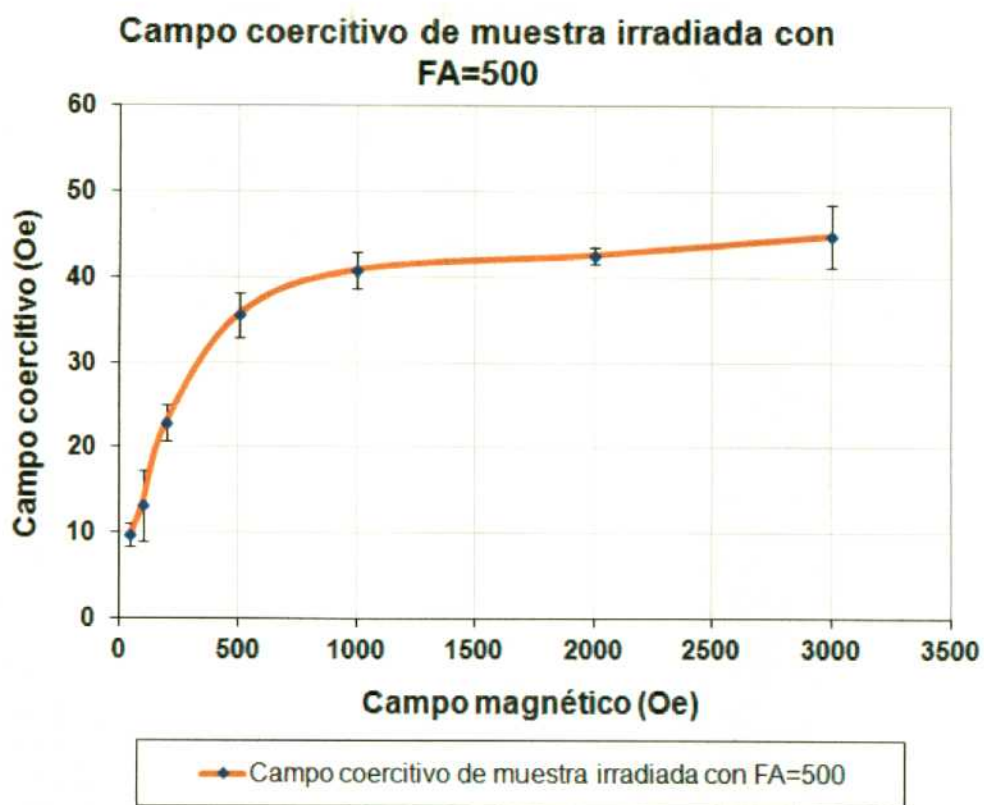


Ciclo de histéresis
Muestra Irradiada FA=500
Campo aplicado creciente hasta 2000 (Oe)

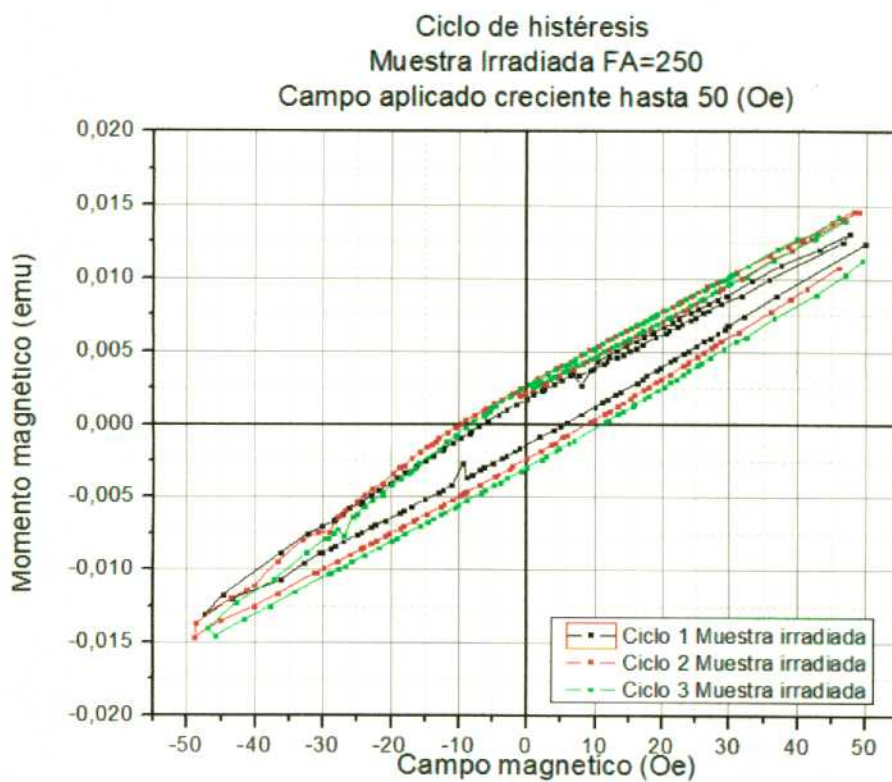


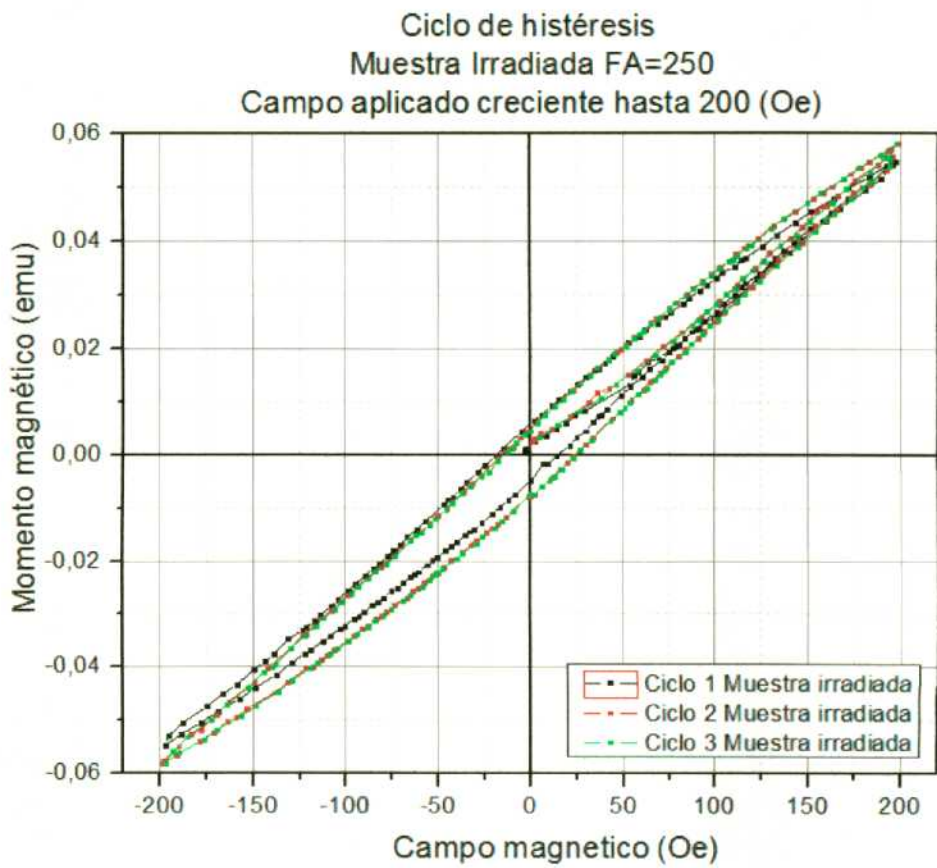
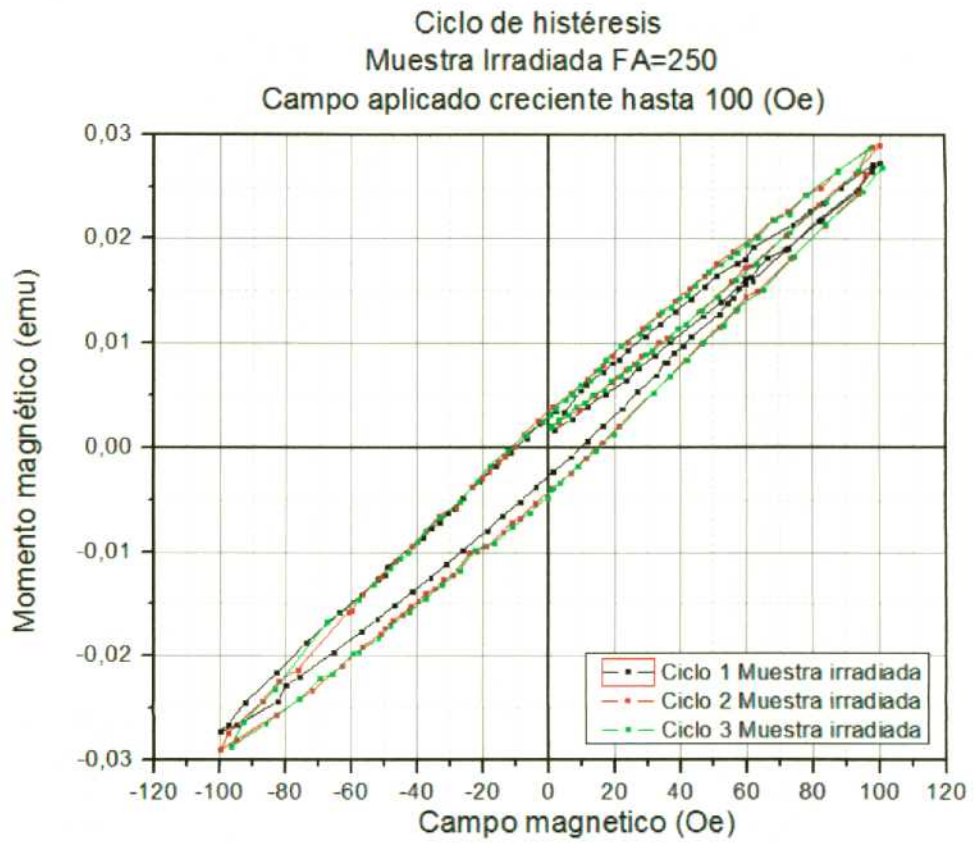
Ciclo de histéresis
Muestra Irradiada FA=500
Campo aplicado creciente hasta 3000 (Oe)



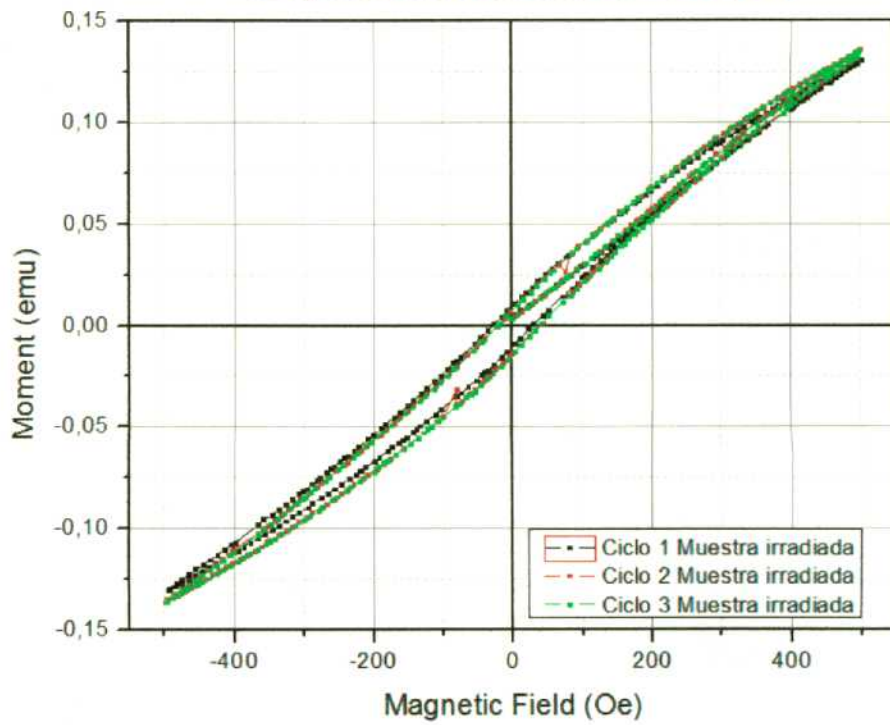


Graficas de los menores ciclos de histéresis de muestra irradiada con FA=250 y campo magnético creciente desde 50-3000 (Oe) a 300K.

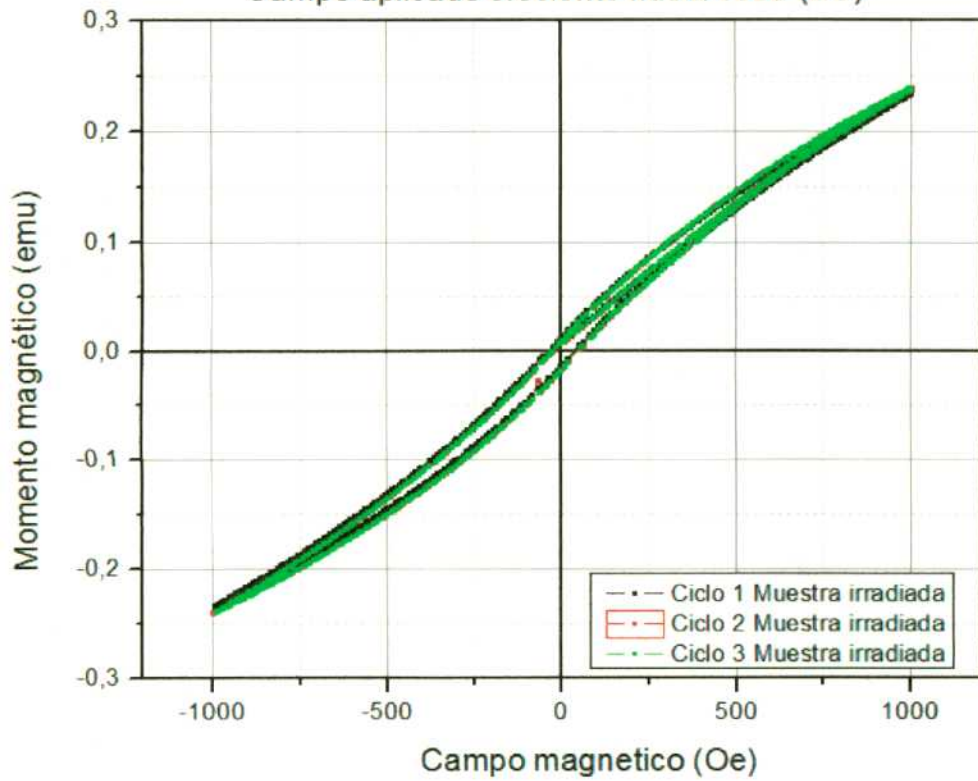


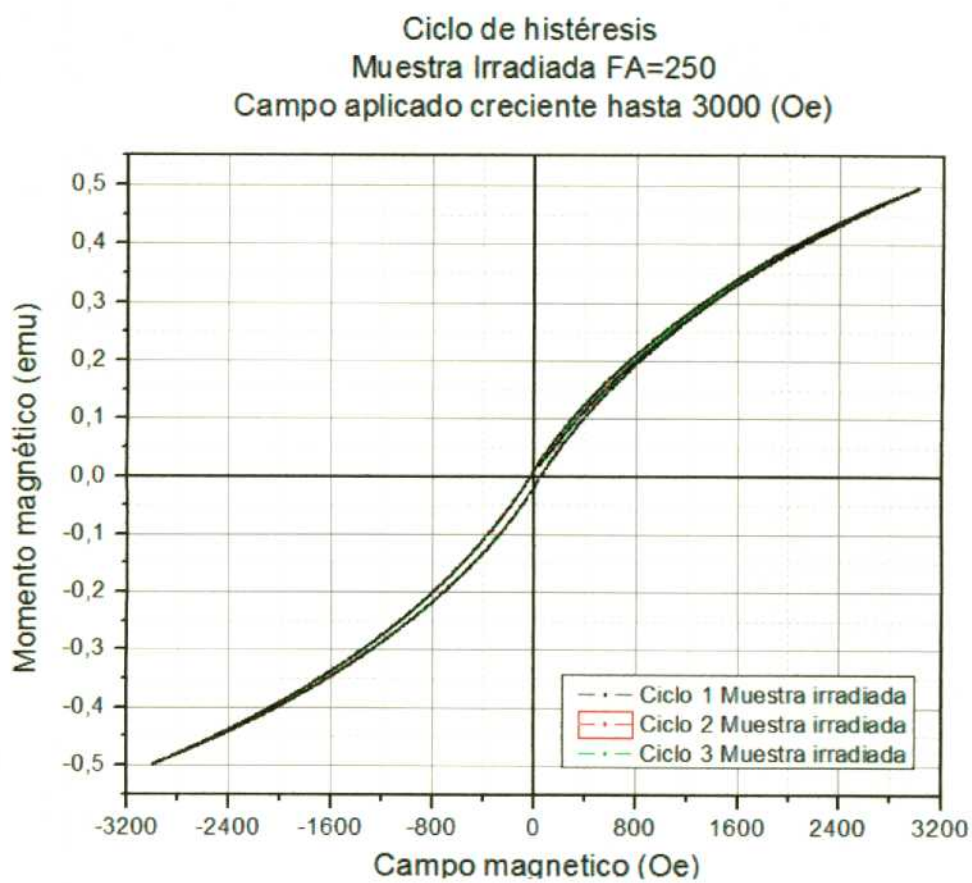
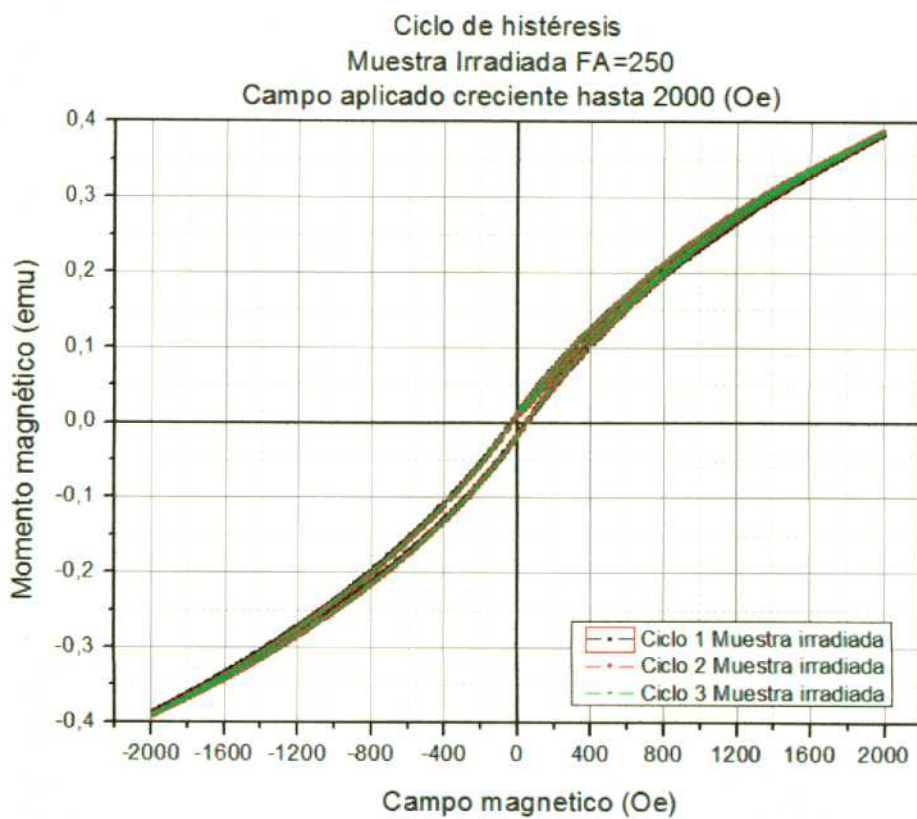


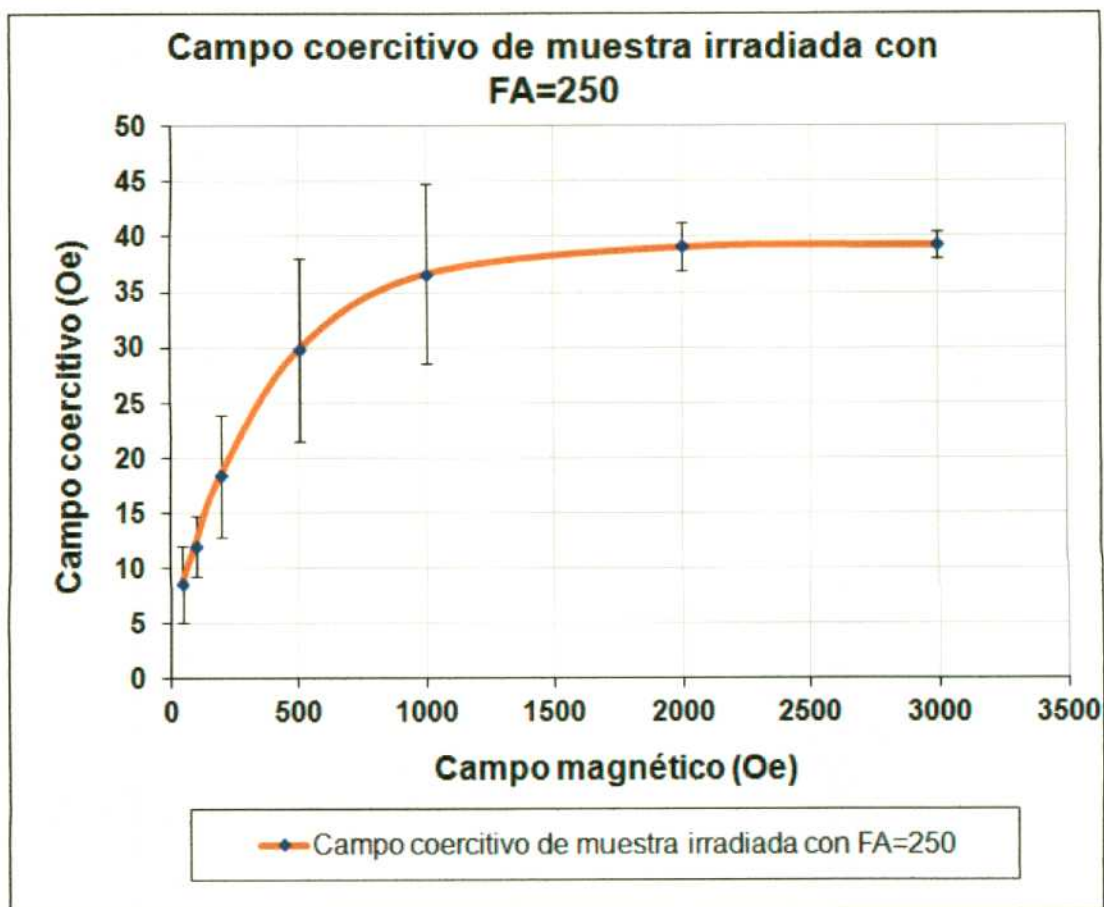
Ciclo de histéresis
Muestra Irradiada FA=250
Campo aplicado creciente hasta 500 (Oe)



Ciclo de histéresis
Muestra Irradiada FA=250
Campo aplicado creciente hasta 1000 (Oe)







Publicaciones

- *“Fragilización por irradiación neutrónica en aceros de recipientes a presión de centrales nucleares. Estudio por lazos menores de histéresis magnética y sus cambios en el campo coercitivo h_c ”* Guerra Méndez, N., Kempf, R., Fortis, A., Sacanell, J., CNEA. Actas de la Asociación Argentina de Tecnología Nuclear (AATN), Bs. As. 14-18 de noviembre 2011.

Presentaciones a Congresos

- *“Fragilización por irradiación neutrónica en aceros de recipientes a presión de centrales nucleares. Estudio por lazos menores de histéresis magnética y sus cambios en el campo coercitivo h_c ”* Guerra Méndez, N., Kempf, R., Fortis, A., Sacanell, J., CNEA. XXXVIII Reunión Anual de la Asociación Argentina de Tecnología Nuclear (AATN), Bs. As. 14-18 de noviembre 2011.