

UNIVERSIDAD NACIONAL DE LA PLATA

FACULTAD DE CIENCIAS EXACTAS

DEPARTAMENTO DE FISICA

**CRECIMIENTO POR IRRADIACION EN CIRCONIO
A ALTAS TEMPERATURAS**

Guillermina Delfina Hilda Coccoz

1995

DEPARTAMENTO DE MATERIALES - CENTRO ATOMICO CONSTITUYENTES
COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA

Director: Dr. Héctor Carlos González
Co-Director: Dra. Ana María Fortis
Asesor Científico: Dr. Angel Luis Plastino

A mis padres

Este trabajo ha sido realizado en el Departamento de Materiales del Centro Atómico Constituyentes y en los reactores experimentales CNEA-RA3 (CEA) Y CNEA-RA1 (CAC), de la Comisión Nacional de Energía Atómica.

Quiero expresar mi profundo agradecimiento

...al Dr. Héctor C. González, Director de esta Tesis, y a la Dra. Ana M. Fortis, Co-Director de esta Tesis, por el aporte de sus experiencias y la permanente guía y dedicación que ambos me brindaron

...a mis compañeros de la División Daño por Radiación C. Daniel Anello y Lic. Francisco J.W. Justus por su apoyo técnico y su desinteresada colaboración en el desarrollo de los experimentos, al Ing. Silvio Terlisky, al Dr. Roberto Passianot, al Dr. Julián Fernandez y a la Lic. Mónica Miralles por sus aportes informáticos y ricas discusiones.

...al personal de los reactores experimentales CNEA-RA3 y CNEA-RA1, en particular a los Sres. R. Aranda, F. Vicente, A. Sposaro, J. Castillo, H. Scolari, P. Ucceli y C. Grizzutti, así como al personal de Protección Radiológica.

...a la Dra. D. Bovisio de Ricabarra, a la Lic. L. Porto y a la Lic. D. Waissman por las mediciones del flujo de los reactores.

...al personal de los talleres, en particular a los Sres. E.R. Alonso, J. Caggiano, H. Vargas y A. Cincotta por su permanente disposición.

...a mis compañeros del Departamento de Materiales que de una u otra manera colaboraron con esta tarea: S. Bermudez, D. Hermida, O. Carpinetta, M. Ipohorski, J. Di Gaetano, N. Smeniantzky, M. Ortiz, G. Vigna, N. Mingolo, R. Castillo Guerra, J. Papalia, H. Dehrs, S. Balart y D. Goycochea.

...a la Dra. L. Roberti, al Dr. S. Mintzer, al Ing. J. Tiebas, al Ing. R. Morando, al Sr. H. Raffaelli y al Sr. C. Ziobrowski por la camaradería brindada durante la escritura del presente trabajo.

...al Sr. J. Fracchia por su apoyo técnico durante la instalación y puesta a punto de la facilidad de irradiación en el reactor CNEA-RA3.

...al Lic. E. Vicente, al Ing. E. Mezzabolta y a la Sra. C. Enrico, por sus invalorable contribuciones y permanente estímulo.

...al Dr. A.L. Plastino, que aceptó ser mi Asesor Científico y a los miembros de la Facultad de Ciencias Exactas de la Universidad Nacional de La Plata, por la atención que me dedicaron.

INDICE

| | |
|---|----|
| 1 DAÑO POR RADIACION | 1 |
| 1.1 Introducción | 1 |
| 1.2 Defectos en cristales y daño por radiación | 4 |
| 1.3 Producción de defectos atómicos en metales | 5 |
| 1.4 Producción de defectos atómicos por irradiación | 6 |
| 1.4.1 Sección eficaz de desplazamiento atómico y camino libre medio | 8 |
| 1.4.2 Energía de daño | 12 |
| 1.4.3 Función daño | 14 |
| 1.5 Espectro neutrónico | 16 |
| 1.6 El proceso de fisión | 18 |
| 1.7 Daño producido por fragmentos de fisión | 20 |
| 1.8 Modos de aglomeración de los defectos puntuales | 22 |
| 2 CRECIMIENTO POR IRRADIACION EN CIRCONIO Y SUS ALEACIONES | 25 |
| 2.1 Introducción | 25 |
| 2.1.1 Composiciones químicas y condiciones metalúrgicas y de operación de las aleaciones de circonio utilizadas en la industria nuclear | 27 |
| 2.2 Fenomenología del crecimiento por irradiación en circonio y sus aleaciones | 29 |
| 2.2.1 Zircaloy-2 y Zircaloy-4 policristalino recristalizado | 29 |
| 2.2.2 Zircaloy-2 y Zircaloy-4 trabajado en frío y liberado de tensiones | 32 |
| 2.2.3 Zircaloy-2 y Zircaloy-4 con bajos niveles de trabajado en frío | 33 |
| 2.2.4 Circonio monocristalino | 34 |
| 2.2.5 Circonio policristalino | 35 |
| 2.2.6 Zr-2,5%p Nb policristalino | 36 |
| 2.2.7 Otras aleaciones | 38 |
| 2.2.8 Entornos de irradiación y daño por desplazamiento | 38 |
| 2.3 Mecanismos del crecimiento por irradiación | 40 |
| 2.3.1 Primeros modelos | 40 |
| 2.3.2 Modelos "efecto tamaño" | 40 |
| 2.3.3 Modelos "efecto tamaño" modificado | 42 |
| 2.3.3.1 Movilidad aumentada de la vacancia | 42 |
| 2.3.3.2 Efectos de atrapamiento de defectos puntuales | 43 |
| 2.3.3.3 Anisotropía de defectos puntuales | 44 |
| 2.3.3.4 Deslizamiento de dislocaciones inducido por lazos | 44 |
| 2.3.4 Desarrollos recientes | 45 |
| 2.3.4.1 Efectos de interacción entre granos | 46 |
| 2.3.4.2 Efecto de la migración anisotrópica de los defectos puntuales | 46 |
| 2.3.4.3 Efectos microquímicos | 48 |
| 2.3.5 Ultimos avances | 48 |
| 2.4 Plan de trabajo | 49 |
| 2.4.1 Introducción | 49 |
| 2.4.2 Plan de trabajo | 50 |
| 3 TRABAJO EXPERIMENTAL | 51 |
| 3.1 Fabricación de las probetas | 51 |
| 3.1.1 Preparación de las aleaciones | 51 |
| 3.1.2 Proceso de laminación y corte | 53 |
| 3.1.3 Armado del par bimetálico | 55 |
| 3.1.4 Recocidos y análisis metalúrgico | 57 |
| 3.2 Facilidad de irradiación para altas temperaturas en el reactor CNEA-RA3 | 62 |
| 3.2.1 El reactor CNEA-RA3 | 62 |
| 3.2.2 Facilidad de irradiación a altas temperaturas en el CNEA-RA3 | 64 |

| | | |
|---------|---|-----|
| 3.2.2.1 | Criterios de diseño | 64 |
| 3.2.2.2 | Armado de la facilidad | 67 |
| 3.2.2.3 | Horno y control de la temperatura | 70 |
| 3.2.2.4 | Dispositivo de medición <i>in situ</i> de la cinética de crecimiento por irradiación en circonio dopado con ²³⁵ U en el CNEA-RA3 | 74 |
| 3.2.2.5 | Circuito de evacuación e inyección de gases | 78 |
| 3.2.2.6 | Panel de control | 81 |
| 3.2.2.7 | Operativo de colocación y sistema de sujeción de la facilidad en el núcleo del CNEA-RA3 | 82 |
| 3.3 | Facilidad de irradiación para altas temperaturas en el CNEA-RA1 | 83 |
| 3.3.1 | El reactor CNEA-RA1 | 83 |
| 3.3.2 | Facilidad de irradiación a altas temperaturas instalada en el CNEA-RA1 | 85 |
| 3.3.2.1 | Horno: diseño, construcción, armado y puesta a punto | 86 |
| 3.3.2.2 | Dispositivo de medición <i>in situ</i> de la cinética de crecimiento por irradiación en circonio dopado con ²³⁵ U en el CNEA-RA1 | 89 |
| 3.3.2.3 | Instalación y ensayos de funcionamiento de la facilidad de irradiación en el reactor CNEA-RA1 | 94 |
| 4 | RESULTADOS | 97 |
| 4.1 | Amplificación del par bimetálico | 97 |
| 4.2 | Amplificación del daño producido por los fragmentos de fisión | 102 |
| 4.2.1 | Número de átomos desplazados producidos por neutrones rápidos | 102 |
| 4.2.2 | Número de átomos desplazados producidos por los fragmentos de fisión | 104 |
| 4.2.3 | Cálculo de la velocidad de producción de átomos desplazados | 105 |
| 4.2.3.1 | Probeta irradiada en el RA3 | 105 |
| 4.2.3.2 | Probeta irradiada en el RA1 | 106 |
| 4.3 | Puesta en funcionamiento de la facilidad de irradiación a altas temperaturas instalada en el CNEA-RA3. Primera medición de la cinética de crecimiento por irradiación | 108 |
| 4.4 | Recuperación del crecimiento por irradiación de la probeta irradiada en el CNEA-RA3 | 112 |
| 4.5 | Medición del crecimiento por irradiación en ZrAl- ²³⁵ U a 533 K en el reactor CNEA-RA1 | 114 |
| 5 | DISCUSIÓN | 116 |
| 5.1 | Cinética de crecimiento del espécimen irradiado a 618 K en el CNEA-RA3 | 117 |
| 5.2 | Cinética de crecimiento del espécimen irradiado a 533 K en el CNEA-RA1 | 119 |
| 6 | CONCLUSIONES Y SUGERENCIAS PARA FUTUROS TRABAJOS | 122 |
| | REFERENCIAS | 123 |
| | APÉNDICE A | 135 |
| A.1 | Vista y esquema de los componentes del reactor de la CNA-I fabricados en aleaciones de circonio | 135 |
| A.2 | Vista general y esquema de los componentes del núcleo del reactor de la CNE | 136 |
| | APÉNDICE B | 137 |
| B.1 | Escape de los fragmentos de fisión | 137 |
| B.2 | Estimación de la actividad | 139 |
| | APÉNDICE C | 140 |
| C.1 | Facilidad de irradiación instalada en el CNEA-RA3 en funcionamiento | 140 |
| C.2 | Facilidad de irradiación instalada en el CNEA-RA1 en funcionamiento | 142 |

1 DAÑO POR RADIACION

1.1 Introducción

Cuando los materiales son irradiados con partículas energéticas sufren cambios en sus estructuras y en sus propiedades. Las partículas de irradiación transfieren energía al material principalmente por desplazamiento de los átomos de sus sitios originales y por ionización y excitación electrónica. En general, todos los procesos y propiedades del material pueden ser afectadas. Estos incluyen, por ejemplo, microestructuras internas y distribuciones de fase, dimensiones, propiedades mecánicas, propiedades eléctricas y magnéticas, y resistencia a la corrosión.

Los cambios dimensionales constituyen uno de los procesos de especial interés, ya que pueden ocurrir a gran escala. Como resultado de la irradiación ocurren frecuentemente grandes cambios en tamaño y forma, fenómenos que se encuadran dentro de la denominada *inestabilidad dimensional*. Los cambios dimensionales incluyen swelling (hinchazón), encogimiento, creep y crecimiento. Los dos primeros son cambios de volumen y los dos últimos son alteraciones de forma que conservan el volumen. Varios procesos pueden ocurrir simultáneamente. El swelling puede ocurrir por la formación de cavidades o de fases menos densas o, en una menor proporción, por la retención de vacancias atómicas de la red cristalina. El encogimiento involucra la formación de fases más densas o la pérdida de material. Tales pérdidas pueden estar provocadas por procesos tales como el sputtering, o por procesos volumétricos que conducen a que átomos y moléculas difundan fuera del material. (Estos últimos procesos no son importantes en aleaciones estructurales o en cerámicos pero pueden ser importantes, por ejemplo, en polímeros irradiados). El creep por irradiación es un cambio de forma inducido por tensión que ocurre bajo irradiación junto con el creep térmico ordinario. El crecimiento por irradiación es un cambio de forma provocado por la irradiación en materiales anisotrópicos, pero que no requiere la aplicación de tensión.

Las partículas de irradiación que producen los cambios mencionados incluyen a neutrones, iones pesados, iones livianos, electrones y rayos γ . Dependiendo de sus energías estas partículas pueden desplazar átomos en un material mediante colisiones elásticas, mediante otros tipos de reacciones nucleares, o, en el caso de los rayos γ , mediante la producción de electrones de reacción. Los primeros átomos golpeados o *átomos primarios* (primary knock-on atoms: pkas), los iones y los electrones también pueden provocar ionización y excitación electrónica. En general, los neutrones y los iones pesados en el rango de los MeV

pueden impartir una gran cantidad de energía al átomo primario que origina una cascada de desplazamientos que consiste en una producción de intersticiales y de vacancias muy localizada asociada con el evento iniciador individual. Los procesos y las huellas o trazas de reacción por los cuales se disipa la energía de desplazamiento y la energía electrónica determinan los cambios en la estructura y en las propiedades exhibidos por los materiales.

Entre los fenómenos que provocan la *inestabilidad dimensional* de materiales utilizados en entornos de partículas energéticas interesa el crecimiento por irradiación, que ocurre especialmente en materiales con propiedades físicas anisotrópicas, en ausencia de tensiones aplicadas. Este fenómeno se observó por primera vez en estudios concernientes al desarrollo del combustible para los primeros reactores nucleares de potencia del tipo reproductor rápido, específicamente en uranio [1] y en aleaciones circonio-plutonio [2] bajo irradiación con neutrones térmicos, en los cuales se experimentaron grandes velocidades de daño de desplazamiento inducido por los fragmentos de fisión. En particular, las aleaciones Zr-Pu exhibieron deformaciones de hasta el 400% en la dirección de laminación con un decremento de densidad del $\sim 3\%$.

Las primeras observaciones del crecimiento por irradiación en materiales no fisionables como el circonio y otros metales de estructura cristalina hexagonal compacta irradiados con fragmentos de fisión [3], si bien no tan espectaculares como las de los materiales físis a las dosis alcanzadas, sirvieron para corroborar la naturaleza anisotrópica del crecimiento.

El crecimiento por irradiación refleja la anisotropía cristalográfica o microestructural de los materiales que lo manifiestan. Por ejemplo, el crecimiento del uranio metálico de estructura cristalina ortorrómbica, puede reducirse notablemente con elementos aleantes para refinar el tamaño de grano y eliminar la orientación preferencial de los granos (textura). Los primeros modelos teóricos explicaban el crecimiento en el uranio mediante una variedad de mecanismos, entre ellos, la deformación plástica anisotrópica en las regiones calientes que rodeaban la traza de los productos de fisión [4], la difusión anisotrópica de los defectos puntuales a los bordes de grano [5], y la condensación anisotrópica de defectos puntuales en lazos como respuesta a los picos de temperatura¹ (*thermal spikes*) producidos por la fisión [3]. El mecanismo se clarificó cuando se evidenció por microscopía electrónica de transmisión la formación de lazos perfectos sobre los planos cristalográficos $\{110\}$ y $\{023\}$ que producían

¹El pico de temperatura designa la región del material en donde la transferencia de energía del proyectil a los átomos es tal que la misma adquiere una "temperatura" superior a la de fusión.

deformaciones sólo en las direcciones de expansión $\langle 010 \rangle$ y de contracción $\langle 100 \rangle$ macroscópicas [6].

En circonio y sus aleaciones se ha propuesto que el crecimiento ocurre cuando hay una distribución anisotrópica de sumideros que reciben un flujo neto de vacancias diferente de la distribución anisotrópica de sumideros que reciben un flujo neto de átomos autointersticiales (*self-interstitial atoms* o SIAs) [7]. Entonces, las dilataciones que se asocian con el agregado de planos de red que acompañan a la precipitación de SIAs no compensan a las contracciones asociadas con la supresión de planos de red que implica la condensación de las vacancias. Los modelos más recientes de crecimiento por irradiación están dirigidos a identificar los posibles sumideros y a explicar su evolución así como a identificar la fuente de la anisotropía y a explicar la distribución de los defectos puntuales entre los diferentes sumideros [8].

Como el circonio es el material base de las aleaciones utilizadas en las componentes estructurales de los reactores nucleares de potencia refrigerados y moderados con agua, debido a su baja sección eficaz de captura de neutrones térmicos y a su excelente resistencia a la corrosión en muchos fluidos, es indispensable el estudio de su comportamiento dimensional. Para realizar estos estudios en los reactores experimentales, se tiene en cuenta la baja cinética del fenómeno de crecimiento, en general se registran velocidades de deformación del orden de 10^{-6} /día. En este sentido, se ha desarrollado un método de medición que utiliza a los fragmentos de la fisión de ^{235}U creados a partir de la irradiación con neutrones térmicos [9,10]. Todavía hoy es un tema de discusión muy importante la correlación del daño producido por diferentes partículas de irradiación [11], incluso algunas veces se complica la comparación de experimentos de medición de una misma propiedad en diferentes entornos de irradiación debido a la imposibilidad de medir exactamente el flujo de partículas de irradiación. El presente trabajo es una contribución a la resolución de esta problemática.

Los objetivos de la presente tesis consisten en: **i)** verificar que el dopado con material fisionable no sólo sirve para simular irradiaciones con neutrones rápidos, sino que constituye un método experimental válido y eficaz para el estudio del crecimiento por irradiación en forma acelerada, y **ii)** demostrar la validez del uso de pares bimetálicos para medir cinéticas de crecimiento a bajas dosis en reactores experimentales.

Se hace notar que parte del contenido de esta tesis es objeto del trabajo *Irradiation growth kinetics in ^{235}U -doped zirconium*, aceptado para su próxima publicación en el Journal of Nuclear Materials.

1.2 Defectos en cristales y daño por radiación

Las propiedades de los materiales cristalinos están dominadas por la presencia de defectos. Por ejemplo la conductividad eléctrica y otras propiedades eléctricas de un cristal semiconductor depende de la cantidad y naturaleza de los defectos impureza que contenga. El control cuidadoso de estos defectos y de la semiconductividad resultante hace posible el uso de tales cristales como transistores. La resistencia mecánica de los sólidos metálicos y no metálicos y la forma en que deforman bajo la influencia de una fuerza están dominados por las dislocaciones y defectos que estén presentes. Aún el crecimiento mismo de un cristal está gobernado por la presencia de ciertas dislocaciones en la red que introducen terrazas espiraladas sobre las superficies cristalinas. Otras propiedades físicas de ciertos cristales tales como color, luminiscencia y fotoconductividad, también dependen fuertemente de las imperfecciones de la red cristalina.

Como la población de defectos determina muchas de las propiedades importantes de los sólidos, cualquier proceso que altere la concentración de defectos tendrá un efecto en dichas propiedades físicas. La irradiación con partículas energéticas es uno de tales procesos. Los arreglos espaciales de los defectos que permanecen después que ha cesado la irradiación se describe generalmente como *daño por radiación*, y cualquier cambio de propiedad física que puede resultar de la introducción del daño se denomina *efecto de radiación*. La irradiación con partículas energéticas constituye una herramienta importante para realizar estudios básicos de las propiedades de los sólidos sensibles a la presencia de defectos. Los efectos de radiación a gran escala han adquirido una enorme importancia después del desarrollo de los reactores de fisión nuclear en los años 40. En 1942, E.P. Wigner anticipó que el intenso flujo neutrónico en el reactor de potencia Hanford podría alterar las propiedades del moderador de grafito y del combustible de uranio. Desde entonces y con el desarrollo posterior de los reactores de potencia de fisión y el trabajo más especulativo en reactores de potencia de fusión, los efectos estructurales de la radiación han adquirido una gran importancia tecnológica.

La interpretación de los cambios en las propiedades de los materiales provocado por partículas energéticas se centra en la producción por la radiación de varios tipos de defectos en el sólido: vacancias, átomos autointersticiales y átomos de impureza. Los sitios vacantes, *vacancias*, pueden crearse por las colisiones de partículas energéticas con los átomos de la red del sólido. La energía transferida en tales colisiones normalmente es suficiente para que el átomo golpeado y desplazado cree otros sitios vacantes en colisiones subsiguientes. De

este modo, para cada colisión primaria, se inicia una cascada de colisiones que produce vacancias. Los átomos que son desplazados de sus posiciones de equilibrio en la red se detienen en una posición *intersticial*, o de no equilibrio, a condición de que no recombinen inmediatamente con una vacancia próxima. Los átomos de *impureza* se forman por transmutación bajo irradiación neutrónica. Un caso especial lo constituye la introducción de productos de fisión mediante el proceso de fisión. El efecto de los productos de fisión normalmente es más pronunciado que el de la transmutación inducida por neutrones, si bien ambos mecanismos frecuentemente son insignificantes respecto a otros efectos de radiación.

1.3 Producción de defectos atómicos en metales

En los metales los defectos atómicos se forman endotérmicamente. La energía requerida para formar un defecto (entalpía de formación) puede suministrarse térmicamente a temperaturas elevadas o atómicamente. Esta última es posible por medio de deformación plástica o por irradiación.

Como las vacancias tienen una energía de formación inferior a la de los intersticiales, la concentración de vacancias formadas térmicamente en los metales siempre excede a la concentración de intersticiales. Por la misma razón, durante la deformación plástica se forman más vacancias que intersticiales. Por otra parte, la irradiación en volumen de un metal produce igual número de vacancias que de intersticiales (pares de Frenkel). Entonces, mediante el calentamiento de un metal (a temperaturas no demasiado altas para impedir la formación de pares vacancia-intersticial) se pueden formar sólo vacancias.

Los defectos atómicos o defectos puntuales son defectos de la red cristalina que abarcan distancias atómicas. En comparación con los defectos lineales como las dislocaciones o defectos planos como, por ej., los bordes de grano, los defectos atómicos se clasifican como defectos de dimensionalidad cero. Esta clasificación excluye el hecho que la distorsión local creada por el defecto atómico posee una simetría que puede ser igual o inferior a la simetría del átomo huésped.

En los metales puros, bajo condiciones de equilibrio térmico, existen defectos intrínsecos como vacancias e intersticiales. Las vacancias pueden producirse en concentraciones suficientemente altas, para investigaciones de tipo cuantitativo, por ej., simplemente calentando el material a temperaturas cercanas a la temperatura de fusión (T_f), es decir, a altas temperaturas se pueden investigar las vacancias bajo condiciones de equilibrio térmico. Las concentraciones de átomos autointersticiales son demasiado bajas para su investigación

directa. Los defectos atómicos en estado de no equilibrio se crean a partir de irradiaciones con neutrones, iones, o electrones, por templado o por deformación plástica. Las irradiaciones con partículas energéticas crean, como efecto más elemental, a partir del desplazamiento de un átomo de su sitio en la red, un átomo intersticial y una vacancia, denominado par de Frenkel o defecto Frenkel (FP o DF).

Los defectos atómicos en estados de no equilibrio son configuraciones metaestables de la red que desaparecen por medio de recocidos a una cierta temperatura. Estos procesos de recuperación tienen lugar por la migración o difusión de una de las especies de defectos y la aniquilación con el "anti-defecto", por la formación de aglomerados de defectos y/o de complejos defecto-impureza o por la desaparición en "sumideros" tales como superficies tales como superficies internas o externas, dislocaciones, etc. Normalmente el intersticial, como se observa después de la irradiación, se hace móvil a bajas temperaturas ($\sim 0,1 T_f$, donde T_f es la temperatura absoluta de fusión) y la vacancia a temperaturas próximas a la temperatura ambiente.

1.4 Producción de defectos atómicos por irradiación

En 1958 Seeger bosquejó su concepto de los múltiples procesos que toman lugar en una cascada de desplazamiento energética [12], según la Fig. 1.1. Una característica

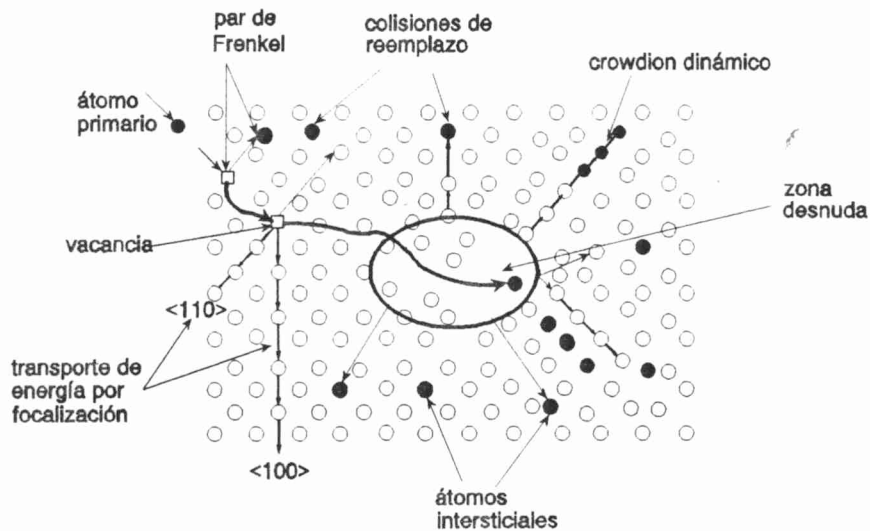


Fig. 1.1: Diagrama bi-dimensional de una cascada en Cu creada por neutrones rápidos, según Seeger [12].

importante de la cascada, propuesta por primera vez por Brinkman [13], es la formación de

zonas diluidas provocada por la eyección de átomos desde el núcleo de la cascada. La figura también muestra secuencias de colisiones de reemplazo (denominados crowdions dinámicos [14]), focusons [15], colisiones de reemplazo y aún eventos de tipo canalización. Si a esta representación se agregan las ideas concernientes a los picos de temperatura (*thermal spikes*) introducidos por Seitz y Koheler [16], y los cálculos de Kinchin y Pease para el número de pares de Frenkel creados en la cascada [17], se puede decir que desde antes de 1960 se posee una representación bastante completa de los procesos de desplazamiento en sólidos irradiados. En los últimos 30 años la investigación en los procesos de desplazamiento atómico se ha dirigido a dilucidar diversos aspectos complementarios tales como: la cantidad exacta de defectos que son creados, las configuraciones espaciales y propiedades de los defectos, la cantidad de mezcla que toma lugar en el proceso de desplazamiento, la existencia de los *spikes* térmicos, la longitud de las secuencias de colisiones de reemplazo, ver *Fig. 1.1*, y la posibilidad de transformaciones de fase dentro de la cascada. Todavía hoy no existen respuestas completas a estos temas. Las dificultades en responder estas preguntas, fundamentales desde el punto de vista experimental, residen en la resolución atómica que es necesaria para estudiar la estructura de defectos y el tiempo de resolución que es necesario para capturar la dinámica de los eventos, que evolucionan en la escala de tiempo de los picosegundos. Desde el punto de vista teórico, la dificultad consiste en resolver un problema de muchos cuerpos extremadamente inhomogéneo en escalas de espacio y tiempo donde las propiedades macroscópicas del sólido aparentemente no son relevantes.

En la siguiente tabla se resumen los procesos que se desencadenan cuando una partícula energética interactúa con el núcleo de un átomo de la red [18]:

Tabla 1.1: Escala temporal de los procesos involucrados en la producción de defectos bajo irradiación.

| Etapas | tiempo (s) | Proceso | Resultado |
|---------------|-------------------|---|--|
| 1 | 10^{-21} | <i>transferencia de energía de la partícula al núcleo</i> | <i>primario (PKA)</i> |
| 2 | 10^{-13} | <i>colisiones interatómicas</i> | <i>cascada</i> |
| 3 | 10^{-11} | <i>disipación de energía epitérmica</i> | <i>defectos estables y aglomerados</i> |
| 4 | $\geq 10^{-11}$ | <i>migración térmica</i> | <i>aglomerados y defectos extendidos</i> |

En los metales, la producción de pares de Frenkel se puede separar en dos procesos (etapas 1 y 2). El primero consiste en la interacción de la partícula de irradiación (de energía

E) con un átomo de la red (primer golpeado o primario), que conduce a la transferencia de una energía T al primario. El segundo proceso es la distribución de esta energía a los átomos vecinos lo que provoca la producción de pares de Frenkel (proceso de desplazamiento). Tanto observaciones experimentales, [19,20], como simulaciones por computadora, [21], indican que el transporte de energía y de materia, es decir la separación del intersticial y de la vacancia, se realiza más fácilmente a lo largo de las direcciones compactas de la red como lo propuso por primera vez Silsbee, [15]. El transporte de los átomos a lo largo de las direcciones compactas de la red toma lugar por secuencia de colisiones de reemplazo: el PKA deja su sitio produciendo una vacancia, y transfiere su energía a un vecino sobre una dirección compacta. Este átomo, a su vez, deja su sitio, que es ocupado por el PKA, y choca al vecino inmediato. Este proceso se repite hasta que, eventualmente, la energía del átomo golpeado es tan baja que no puede reemplazar al átomo siguiente. Entonces, el último átomo desplazado permanece en una posición intersticial.

Para producir defectos atómicos estables, la energía T transferida al PKA debe superar a la *energía umbral de desplazamiento*, E_d . La estabilidad se logra cuando la separación entre la vacancia y el intersticial supera un cierto valor, r_v , denominado *radio de inestabilidad*. El radio de inestabilidad puede considerarse como el rango de un átomo golpeado de energía cinética inicial E_d . Tanto E_d como r_v son funciones de la orientación cristalográfica, es decir son anisotrópicos. Griffiths, [22], midió las energías umbrales de desplazamiento en circonio mediante microscopía electrónica de alto voltaje a alrededor de 300 K, a partir de las energías electrónicas requeridas para producir daño visible en forma de pequeños lazos de dislocaciones. Sus resultados se resumen en la *Tabla 1.2*:

Tabla 1.2: Energías de desplazamiento umbral en función de la orientación para el Zr.

| | Orientaciones | | | |
|------------|----------------|------------------------------|------------------------------|------------------------------|
| | [0001] | $\langle 11\bar{2}3 \rangle$ | $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ | $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ |
| E_d (eV) | $25,5 \pm 0,5$ | $24,0 \pm 0,5$ | $24,5 \pm 1,0$ | $27,5 \pm 1,0$ |

1.4.1 Sección eficaz de desplazamiento atómico y camino libre medio

Cuando una partícula en movimiento choca con un átomo estacionario defleca de su curso en una cantidad que depende de su energía y de su distancia de aproximación. La

deflexión es mayor para bajas energías y para pequeñas distancias. La probabilidad de que una dada cantidad de energía sea transferida por la partícula al átomo, se expresa en términos del área que la trayectoria de la partícula debe atravesar si ocurre la transferencia de energía. Este área se denomina *sección eficaz diferencial* para la transferencia de energía [23]. Entonces, si la partícula tiene una energía E y si transfiere una energía entre T y T+dT al átomo de la red, la sección eficaz diferencial estará dada por:

$$\frac{d\sigma(E,T)}{dT} dT \quad 1.1$$

Cuando se considera el desplazamiento del átomo, se debe integrar esta expresión multiplicada por $v(T)$ sobre todas las energías transferidas posibles. $v(T)$ -referida en literatura como *función daño* [24] o *función desplazamiento* [25]- es el número promedio de átomos desplazados por el primer golpeado. Entonces la *sección eficaz de desplazamiento* es:

$$\sigma_d(E) = \int_0^{T_{\max}(E)} v(T) \frac{d\sigma(E,T)}{dT} dT \quad 1.2$$

Si el umbral de desplazamiento es de tipo escalón, es decir, si para energías de transferencia $T < E_d$ no ocurren desplazamientos,

$$\sigma_d(E) = \int_{E_d}^{T_{\max}(E)} v(T) \frac{d\sigma(E,T)}{dT} dT \quad 1.3$$

donde T_{\max} es la máxima energía que puede ser transferida y corresponde a la de una colisión frontal. Mediante la aplicación directa de las leyes de conservación de la energía y de la cantidad de movimiento, se puede mostrar, para partículas no relativísticas, que:

$$T_{\max}(E) = 4 \frac{M_1 M_2}{(M_1 + M_2)^2} E \quad 1.4$$

donde E y M_1 son la energía y la masa de la partícula incidente y M_2 es la masa del átomo golpeado.

Algunas veces las colisiones son excesivamente energéticas, de modo que no sólo se produce el desplazamiento de un átomo, sino que éste a su vez puede producir otros desplazamientos de modo de iniciar una *cascada* de desplazamientos. Frecuentemente las colisiones no son tan energéticas y sólo provocan la vibración de los átomos en su posición media, o bien suministran suficiente energía para desplazamiento o para la formación subsiguiente de pares de Frenkel. Si v_1 es la velocidad con que se mueve la partícula a través del cristal, N_0 es la densidad atómica del cristal y σ es la sección eficaz total para los eventos de colisión, en un intervalo de tiempo dt , habrán: $v_1 dt \sigma N_0$ colisiones. Para una colisión, $v_1 dt = \lambda$ será, en promedio, la distancia que cubrirá la partícula incidente antes de hacer una colisión. De este modo, se define el *camino libre medio* λ como:

$$\lambda = \frac{1}{N_0 \sigma} \quad 1.5$$

El camino libre medio para las colisiones de desplazamiento es más largo, ya que si

$$d\sigma(E, T) = \frac{\sigma}{T_{\text{máx}}(E)} dT \quad 1.6$$

la integración de la Ec. 1.2 para $v(T) = 1$, resulta:

$$\sigma_d(E) = \sigma \left(1 - \frac{E_d}{T_{\text{máx}}(E)} \right) \quad 1.7$$

de modo que,

$$\lambda_d = \frac{1}{N_0 \sigma \left(1 - \frac{E_d}{T_{\text{máx}}(E)} \right)} = \frac{\lambda T_{\text{máx}}(E)}{T_{\text{máx}}(E) - E_d} \quad 1.8$$

Por ejemplo, en el caso de irradiación con neutrones rápidos, tomando $N_0 = 10^{23} \text{ cm}^{-3}$ y $\sigma = 10^{-24} \text{ cm}^2$ como valores típicos, la distancia promedio entre colisiones sería del orden de 10 cm. Más aún, como la masa nuclear M_2 es mucho mayor que la masa del neutrón M_1 , a partir de la Ec. 1.4 se puede escribir:

$$T_{\text{máx}}(E) = 4 \frac{M_1 M_2}{M_1^2 \left(1 + \frac{M_2}{M_1}\right)^2} E \approx \frac{4M_1}{AM_1} E = \frac{4E}{A} \quad 1.9$$

donde $A = M_2/M_1 \sim M_2$ es el número de masa del átomo blanco. Para energías neutrónicas E con $T_{\text{máx}} \leq E_d$ ($E \leq AE_d/4$), no se producirán desplazamientos, es decir, se espera daño estructural en el material si los neutrones tienen energías superiores a $AE_d/4$. En el caso del circonio, para $E_d = 25$ eV, sólo neutrones con energías superiores a 570 eV producirán desplazamientos en la red.

Continuando con la presentación de la sección de eficaz de desplazamiento, *Ec. 1.3*, la función desplazamiento $\nu(T)$ se puede determinar iterativamente resolviendo dicha ecuación integral. Esto se ha hecho, por ejemplo, utilizando mediciones de tasas de daño producido por iones de diferentes masas y energías en cobre [26], y a partir de mediciones de velocidades de daño producido por electrones, iones livianos y neutrones en metales cúbicos [25].

En el caso de irradiaciones con neutrones de reactor, $\nu(T)$ se estima a partir de cálculos computacionales [27,28]. Estos cálculos conducen a la *energía de daño*, T_D , que es la energía disponible para la producción de defectos. La integración sobre todas las energías de transferencia, y sobre el espectro de energías de los neutrones da como resultado la *sección eficaz de energía de daño o energía específica de daño*:

$$\langle \sigma T \rangle = \int_0^{E_{\text{máx}}} \frac{d\Phi(E)}{dE} dE \int_{E_d}^{T_{\text{máx}}(E)} \frac{d\sigma(E,T)}{dT} T_D dT \quad 1.10$$

donde $\Phi(E)$ es el flujo neutrónico por unidad de energía para la energía E y $\frac{d\sigma(E,T)}{dT}$ es el

espectro de energías del primario producido por los neutrones de energía E . En el cálculo de la integral, *Ec. 1.10*, se debe considerar que el primario se dispersará en un ángulo Θ dentro de un ángulo sólido $d\Omega$, además de que la energía que le transfiere la partícula incidente variará entre T y $T+dT$. Para el caso de los neutrones de reactor, se utilizan normalmente códigos tales como el RECOIL [28], que, por ejemplo, para aleaciones de circonio, contiene 104 grupos de energías de neutrones que van desde un máximo de 20 MeV hasta un mínimo

de 20 eV; 26 grupos abarcan el rango de 1 a 20 MeV y 16 el rango 0,1 a 1,0 MeV.

En la siguiente sección, **1.4.2** se resume el formalismo para calcular la *energía de daño*, T_D , empleado en este trabajo, y en la **1.4.3**, se presenta la expresión de la *función daño*, $\nu(T)$.

1.4.2 Energía de daño

El estudio sistemático de las colisiones atómicas en los sólidos comenzó con el trabajo de Bohr [29] y fue ampliado por Lindhard y colab. [30,31,32], en sus trabajos que condujeron a la teoría LSS. Se desarrolló un tratamiento universal de las colisiones atómicas basado en la teoría de átomos de Thomas-Fermi [33]. En él se introdujo un conjunto de variables reducidas:

$$\text{energía:} \quad \epsilon = \frac{E}{E_L} \quad \text{con} \quad E_L = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{a_{12}} \frac{1+A}{A}, \quad 1.11$$

$$\text{distancia:} \quad \rho = \frac{x}{R_L} \quad \text{con} \quad R_L = \frac{(1+A)^2}{4A} \frac{1}{N_0 \pi a_{12}^2}, \quad 1.12$$

$$\text{tiempo:} \quad \tau = \frac{t}{T_L} \quad \text{con} \quad T_L = \left(\frac{M_1}{2E_L} \right)^{1/2} R_L, \quad 1.13$$

donde Z_i y M_i son los números atómicos y masas de los átomos, i es igual a 1 para el proyectil, y a 2 para el átomo blanco, $A = M_2/M_1$, e es la carga del electrón ($e^2 = 1,4399$ eV nm), N_0 como se mencionó en **1.4.1** es la densidad atómica del blanco, y a_{12} es la longitud de apantallamiento utilizada en la descripción de Thomas-Fermi de los átomos [33]:

$$a_{12} = \left(\frac{9\pi^2}{128} \right)^{1/3} \frac{a_H}{\left(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3} \right)^{1/2}}, \quad 1.14$$

donde $a_H = 59,92$ pm es el radio de Bohr.

Se denomina *poder de frenamiento* a la velocidad a la cual los desplazados energéticos pierden energía; se puede dividir en dos partes, una para la energía perdida en excitación electrónica y otra para la energía perdida en colisiones atómicas. Utilizando las variables

adimensionales LSS, el poder de frenamiento electrónico es:

$$\left(\frac{d\epsilon}{d\rho}\right)_e = k_L \epsilon^{1/2} \quad 1.15$$

donde,

$$k_L = \frac{32}{\pi} \left(\frac{m_e}{M_2}\right)^{1/2} \frac{(1+A)^{3/2} Z_1^{2/3} Z_2^{1/2}}{\left(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3}\right)^{3/4}} \quad 1.16$$

siendo m_e la masa del electrón ($m_e = 0.5488 \cdot 10^{-3}$ uam). El poder de frenamiento nuclear es:

$$\left(\frac{d\epsilon}{d\rho}\right)_n = \left(\frac{9}{8\epsilon}\right) \left\{ \ln \left[\zeta + (1 + \zeta^2)^{1/2} \right] - \zeta (1 + \zeta^2)^{-1/2} \right\}, \quad 1.17$$

donde $\zeta = 1,378 \epsilon^{4/9}$. Esta expresión se basa en una aproximación al resultado de LSS [34].

La Fig. 1.2 muestra el poder de frenamiento nuclear (atómico) como función de la energía. El máximo ocurre para $\epsilon = 0,3$, que para el Zr corresponde a una energía de alrededor de 140 keV. la figura también muestra el poder de frenamiento electrónico para el valor típico $k_L = 0,15$. Para $\epsilon < \sim 1$, la mayor parte del frenamiento proviene del término nuclear, pero para $\epsilon > \sim 3$, domina el término electrónico.

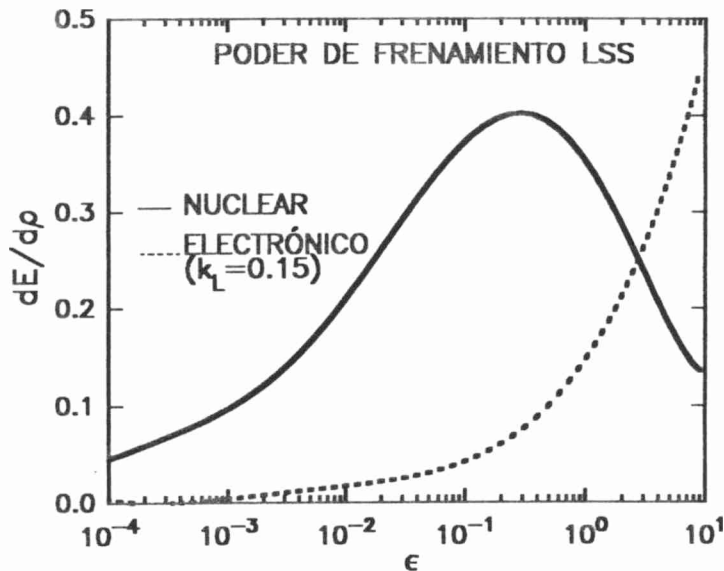


Fig. 1.2: Poderes de frenamiento LSS nuclear y electrónico.

Lindhard y colab. [32] utilizaron la teoría de frenamiento LSS para distribuir la energía inicial de un desplazado entre el movimiento de los átomos de baja energía y las excitaciones electrónicas. Si v_L es la energía cinética promedio total de todos los desplazados de baja energía al final del desarrollo de la cascada y η_L es la energía promedio total que se pierde en excitación electrónica e ionización durante el desarrollo de la cascada, $\epsilon = v_L + \eta_L$. En muchos materiales, sólo la energía cinética depositada en el movimiento atómico produce daño y las excitaciones electrónicas se disipan como calor. Esto conduce a la definición de la energía de daño como

$$T_D = v_L E_L \quad 1.18$$

A partir de los cálculos LSS, la energía de daño se puede aproximar como [32]:

$$T_D = \frac{E}{[1 + k_L g(E/E_L)]}, \quad 1.19$$

donde $g(\epsilon)$ se puede aproximar, [35], por:

$$g(\epsilon) = \epsilon + 0,40244 \epsilon^{3/4} + 3,4008 \epsilon^{1/6} \quad 1.20$$

La cantidad T_D/E se denomina *eficiencia de daño*. Para diversos casos monoatómicos, por ej., aún para energías tan bajas como 10 eV, en excitación electrónica se pierde tanto como el 10% de la energía del primario.

1.4.3 Función daño

Los primeros intentos para calcular el número de desplazamientos atómicos que ocurren durante la irradiación fueron hechos por Kinchin y Pease [17] y Snyder y Neufeld [36]. La versión modificada del modelo de Kinchin-Pease conocida como modelo NRT [27], es aceptada generalmente como la normalización de la cantidad de desplazamientos atómicos en materiales irradiados. De este modo, se pueden comparar de una manera normalizada experimentos realizados en diferentes fuentes de irradiación.

De acuerdo al modelo NRT, el número de átomos generados por el primer golpeado de energía T , o *función daño* $v(T)$, es:

$$v(T) = \frac{\kappa(T-T_e)}{2E_d} = \frac{\kappa T_D}{2E_d}, \quad T_D > \frac{2E_d}{\kappa} \quad 1.21$$

donde κ es la *eficiencia de desplazamiento*, T_e es la energía perdida en excitación electrónica, T_D es la energía de daño y E_d es la energía de desplazamiento. Cálculos de colisiones binarias indican que la *eficiencia de desplazamiento* es constante, $\kappa = 0,8$, para energías de primarios superiores a $2E_d$ hasta 100 keV si se usa un criterio de energía umbral para definir defectos estables [37]. La integración de la función daño NRT, *Ec. 1.21*, sobre todo el espectro de energías de desplazamiento y el tiempo conduce a la concentración atómica de desplazamientos, denominada *desplazamientos NRT por átomo (dpa)*.

La aplicación del modelo NRT a los estudios de los efectos de la radiación requiere la suposición implícita de que la concentración residual de defectos es igual, o al menos proporcional, al número de desplazamientos calculados. El criterio para la formación de un desplazamiento estable en este modelo es si el átomo golpeado adquiere una energía cinética mayor que E_d . Este modelo no tiene en cuenta la distribución espacial de los átomos desplazados y la posibilidad de aniquilación intersticial-vacancia dentro de la cascada. Cálculos por dinámica molecular (DM) indican que la región de la cascada asociada con los primarios energéticos consiste de una colección de átomos muy agitados en la red, con ésta severamente distorsionada, en lugar de pares de Frenkel resolubles individualmente [38]. Estas simulaciones por computadora sugieren que el concepto de pares de Frenkel es inapropiado para la descripción de la producción de defectos en cascadas energéticas. Además, muchos estudios experimentales y por simulación por computadora han encontrado que, para energías de primarios mayores que 0,5 keV, una fracción sustancial de daño por desplazamiento se aniquila vía recombinación intersticial-vacancia a medida que la cascada energética se enfría hacia el equilibrio térmico aún para irradiaciones realizadas a 4 K [38,39,40]. Esto conduce a una fracción de defectos residuales respecto de los NRT calculados.

Entonces, si bien el modelo NRT para desplazamientos atómicos no es un indicador real de la *producción de defectos* bajo condiciones de cascada, constituye un parámetro de correlación razonablemente bueno para la producción de defectos bajo ciertas circunstancias, por ejemplo, para calcular efectos de radiación en dos espectros similares de energías de primarios [41]. De hecho, actualmente se está avanzando en modelos tales como el de

intersticiales libremente migrantes [42,43] para reemplazar al modelo NRT, pero todavía no han sido aceptados universalmente.

1.5 Espectro neutrónico

Las energías neutrónicas de interés varían típicamente desde 0,0253 eV (neutrones térmicos) hasta alrededor de 20 MeV. Los neutrones tienen la misma masa que el protón y no tienen carga eléctrica. De aquí que, los neutrones, a diferencia de los protones, pueden interactuar intensamente con los átomos a energías muy bajas. Los tipos de reacciones más comunes, entre neutrones y átomos, incluyen a la dispersión elástica (del tipo de esferas rígidas), la dispersión inelástica (donde el núcleo blanco queda en un estado excitado) y la captura neutrónica (donde el peso atómico del blanco aumenta en una unidad de masa). Después de la captura, el núcleo puede sufrir emisión de un fotón γ , fisión, reacciones de partícula cargada (donde se emite un protón o una partícula α) o reacciones de emisión múltiple. Estas últimas pueden producir *transmutación*, que se define como un cambio de un elemento en otro. Estos efectos se predicen con la ayuda de la Tabla de Isótopos como guía para determinar los productos de reacción para cada reacción, así como los productos de decaimiento radioactivo (activación neutrónica).

Los neutrones se producen ya sea a partir de la fisión nuclear de elementos pesados, tales como uranio, o por reacciones de partículas cargadas inducidas por aceleradores. En el proceso de fisión (que se comentará en 1.6), se producen dos o más neutrones por fisión. El espectro de energías de los neutrones de fisión se puede describir como Maxwelliano con una temperatura nuclear de 1,5 MeV.

El espectro de energías de los neutrones varía según el tipo de reactor de fisión. En la práctica existen dos tipos básicos de reactores de fisión: los *reactores rápidos* y los *reactores de espectro mixto*, que difieren de acuerdo a las características del refrigerante y del moderador que utilizan para controlar el reactor [44].

Los reactores rápidos están refrigerados con sodio líquido y no tienen una moderación significativa. El término *reactor rápido* o *flujo rápido* se refiere a la velocidad relativa (energía) de los neutrones. El espectro neutrónico en el núcleo de estos reactores, es sólo ligeramente más blando que el espectro de fisión básico, por lo que al espectro rápido o de fisión, se lo caracteriza como un *espectro duro* (para diferenciar de un *espectro blando* que contiene principalmente neutrones de baja energía debido a los efectos de moderación). Los reactores rápidos sólo producen flujos altos de neutrones rápidos.

Los tipos más comunes de reactores de fisión que incluyen a la mayor parte de los reactores de potencia comerciales, así como a la mayor parte de los reactores de investigación y/o ensayo de materiales y de producción de radioisótopos, tales como los reactores CNEA-RA1 y CNEA-RA3, en los que se realizaron los experimentos del presente trabajo, o los reactores HFR (High Flux Reactor), son refrigerados con agua. Estos reactores se refieren como *reactores de espectro mixto*, ya que el hidrógeno del agua refrigerante suministra una moderación sustancial conduciendo a flujos de neutrones rápidos y térmicos prácticamente iguales. El término *moderación* se refiere al frenado de los neutrones debido a la dispersión elástica con la gran cantidad de átomos de hidrógeno del agua refrigerante. Como el núcleo del hidrógeno es un protón, de igual masa que el neutrón, la dispersión neutrón-protón promedio provoca que el neutrón pierda alrededor de la mitad de su energía inicial en cada interacción. Esta energía se la lleva el protón interactuante y se pierde por calentamiento del agua refrigerante. Otra característica del hidrógeno que lo hace el más efectivo moderador de neutrones que se conoce es su generosa sección eficaz de dispersión elástica ($\sim 20 \text{ barn}^2$).

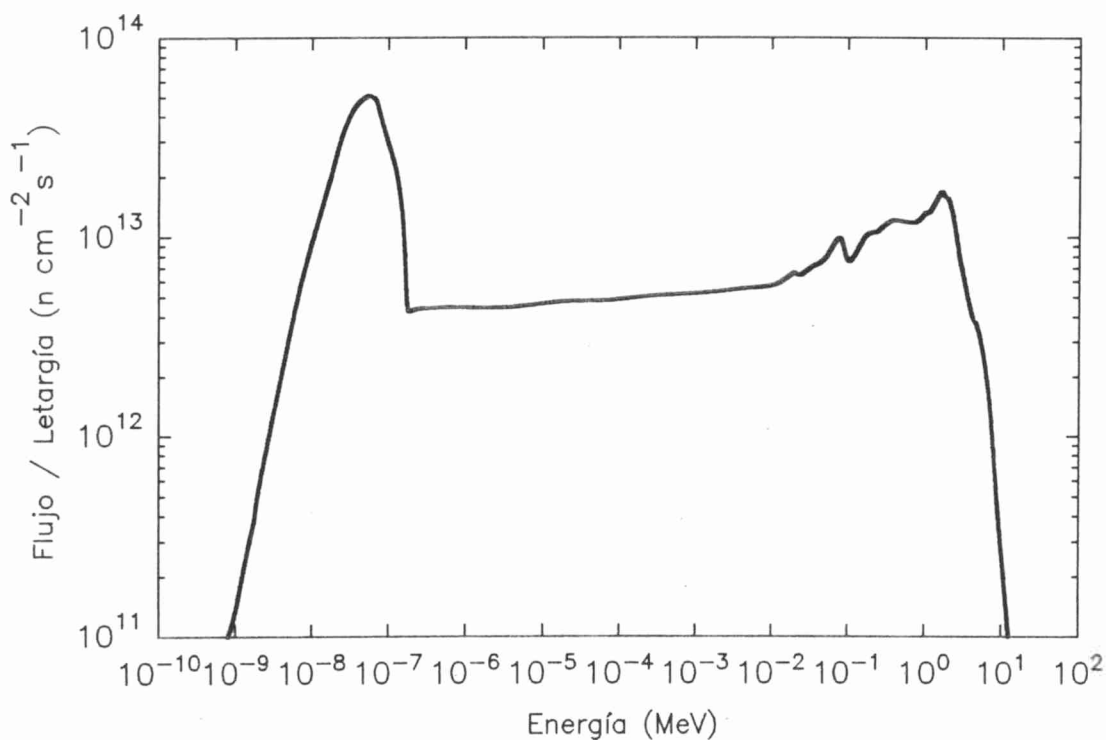


Fig. 1.3: Espectro neutrónico del reactor de espectro mixto HFR de Petten (Holanda) en la posición 6A/B.

En la Fig. 1.3 se muestra el espectro neutrónico del reactor de espectro mixto HFR de

² Como las secciones eficaces nucleares varían entre 10^{-22} y 10^{-24} cm^2 , se acostumbra expresarlas en términos de la unidad *barn* que corresponde a una sección eficaz de 10^{-24} cm^2 por núcleo.

Petten (Holanda) [45], medido en una posición entre un elemento combustible y una de las barras de control. El espectro está graficado como flujo por unidad de *letargia*, que simplemente es: energía neutrónica x flujo neutrónico ($E \times \Phi(E)$). La razón para graficar los espectros neutrónicos de esta manera, es una mejor visualización de las energías relativas. Entonces, en el gráfico se pueden distinguir claramente tres regiones: la parte más energética del espectro ($E > 1 \text{ MeV}$) que tiene la forma de un espectro de fisión, la región de energías intermedias ($0,5 \text{ eV} < E < 1 \text{ MeV}$) que es plana y la región de energías inferiores ($E < 0,5 \text{ eV}$) que se representa como una distribución Maxwelliana térmica. Esta forma espectral constituye un ejemplo típico de los reactores de espectro mixto. En un espectro de este tipo, las energías neutrónicas muy altas producidas por la fisión en el combustible de uranio no son afectadas relativamente por el moderador. A energías neutrónicas inferiores, la moderación debida a la dispersión neutrón-protón en el agua refrigerante conduce a un espectro del tipo E^{-1} . Este proceso continúa hasta que el movimiento térmico de los átomos en el moderador se iguala a la energía neutrónica, es decir, hasta que, en una colisión, un neutrón pueda ganar así como perder energía. Esto conduce a una distribución térmica Maxwelliana centrada en la temperatura del refrigerante. A temperatura ambiente, la energía promedio del neutrón es $0,0253 \text{ eV}$ ($\frac{3}{2} kT$); esta energía también se utiliza para definir secciones eficaces de neutrones térmicos y corresponde a la conocida *velocidad de neutrones térmicos* de 2200 m s^{-1}

1.6 El proceso de fisión

El proceso de fisión consiste en la división de un núcleo en dos fragmentos aproximadamente iguales. La reacción de fisión más utilizada se inicia cuando un núcleo de ^{235}U captura un neutrón para formar un estado excitado del núcleo compuesto ^{236}U . Este último puede desintegrarse emitiendo un cuanto γ , o bien, puede sufrir *fisión*.

Cualquier núcleo que se encuentre en un estado excitado suficientemente alto puede sufrir fisión. La cantidad de energía de excitación, o *energía crítica* (E_c), requerida para que la fisión sea posible se puede estimar a partir de la diferencia entre la altura de la barrera electrostática y la energía de disociación para el modo particular de fisión, la primera se puede expresar en MeV como $0,16Z^2/A^{1/3}$, donde Z y A son el número de carga y el número de masa, respectivamente, del núcleo que sufre fisión y la segunda, E_p , se obtiene a partir del decremento de masa entre los núcleos productos de la fisión y el núcleo que ha sufrido la fisión. En la *Tabla 1.3* se representan las energías críticas, E_c , aproximadas necesarias para

que ocurra fisión en función de la masa nuclear o número de masa A [46]. Se observa que para los núcleos más pesados la energía crítica para que ocurra fisión es mínima y es del orden de magnitud de la energía de unión de un neutrón, y por lo tanto de la energía de excitación que acompañará la captura de un neutrón.

Tabla 1.3: Energías críticas para que ocurra fisión en función de A.

| | Número de masa A | | | | | |
|--------------------|------------------|----|-----|-----|------|----------|
| | 16 | 60 | 100 | 140 | 200 | 236 |
| $0,16 Z^2/A^{1/3}$ | 4 | 32 | 62 | 110 | 175 | 210 MeV |
| $-E_f$ | 14.5 | 16 | -15 | -48 | -135 | -205 MeV |
| E_c | 18.5 | 48 | 47 | 62 | 40 | ~ 5 MeV |

La energía crítica puede suministrarse sometiendo al núcleo a radiación γ o bien irradiándolo con partículas de alta energía. En el último caso la partícula de alta energía puede perder parte de su energía mediante colisiones inelásticas, que luego aparece como energía de excitación del núcleo blanco. Pero el modo más efectivo para formar un núcleo en un estado excitado, que luego podrá sufrir fisión, es que dos núcleos choquen formando un estado compuesto que siempre estará en un estado excitado bastante alto. Normalmente, una de las partículas que chocan es un neutrón.

La energía crítica para la fisión inducida por γ (es decir, la energía del cuanto γ más débil que puede inducir fisión) da una medida directa de la energía de excitación mínima necesaria para la fisión. En la *Tabla 1.4* se dan los valores de las energías críticas para la fisión inducida por γ y las energías de unión de un neutrón, E_n , para algunos nucleidos [47]. En la misma, se puede observar que la energía de unión del neutrón para los núcleos fisiles, ^{235}U , ^{233}U y ^{239}Pu , es mayor que la energía crítica para la fisión inducida por γ . Por lo tanto, la captura de un neutrón de energía cero suministraría suficiente energía de excitación al núcleo compuesto para que fisione. Entonces, los nucleidos fisiles pueden fisionar por captura de neutrones de cualquier energía. Para ^{232}Th y ^{238}U , en cambio, las E_n son alrededor de 1 MeV menor que las respectivas E_c . En estos casos, para que el núcleo compuesto se fisione, el neutrón capturado debe tener al menos 1 MeV de energía.

Tabla 1.4: Energía crítica para la fisión.

| Núcleo | Z ² /A | E _c (MeV) | E _n (MeV) |
|--------------|-------------------|----------------------|----------------------|
| torio-232 | 34,9 | 5,9 | 5,1 |
| uranio-238 | 35,6 | 5,9 | 4,8 |
| uranio-235 | 36,0 | 5,8 | 6,4 |
| uranio-233 | 36,4 | 5,5 | 6,7 |
| plutonio-239 | 37,0 | 5,5 | 6,4 |

En la *Tabla 1.5* se muestran las secciones eficaces para neutrones térmicos (E = 0,025 eV) de los nucleídos de interés en los reactores nucleares:

Tabla 1.5: Secciones eficaces para neutrones lentos de núcleos fisiles y fisionables.

| Nucleído | fisión (σ _f) barn | captura (σ _c) barn | absorción total (σ _a) barn | Ref. |
|----------------|----------------------------------|-----------------------------------|---|------|
| uranio-233 | 531,1 | 47,7 | 578,8 | [48] |
| uranio-235 | 582,9 | 98,9 | 681,8 | [49] |
| plutonio-239 | 747,3 | 270,5 | 1017,8 | [49] |
| uranio-238 | - | 2,7 | 2,7 | [48] |
| uranio natural | 4,2 | 3,5 | 7,7 | [47] |

1.7 Daño producido por fragmentos de fisión

La fisión del ²³⁵U provocada por la captura de un neutrón térmico produce dos fragmentos, *liviano* y *pesado*, con masas atómicas y energías promedio de 96 uam y 95 MeV, y de 137 uam y 55 MeV, respectivamente. La irradiación con fragmentos de fisión introduce muchos defectos en el material en la forma de cascadas de defectos muy localizadas [50]. Estas cascadas se distribuyen a lo largo de la traza de los fragmentos de fisión, produciéndose la mayor parte de los defectos en el último micrón del rango de los fragmentos de fisión en el material irradiado (por ejemplo, 10 μm en Cu, 5 μm en Ni, 15 μm en Zr [51]). La estrecha proximidad de las cascadas conduce a una concentración de daño local mayor que el daño

promedio en volumen. De este modo, se produce una superposición significativa de volúmenes dañados en todas las etapas de la irradiación. La densidad de energía en las cascadas superpuestas provoca la migración atómica de los defectos existentes. Esta migración de defectos conduce a un aumento de la aniquilación de defectos y a un aglomeramiento adicional del daño existente [52,53].

Entre los autores que han utilizado los fragmentos de fisión para simular irradiaciones con neutrones rápidos se destaca Blewitt [54] quien, en la década del 60, vislumbró que las diferencias entre las curvas de recocidos isócronos obtenidas a partir de mediciones de resistividad eléctrica de cobre irradiado a bajas temperaturas con electrones y con neutrones se debían a las diferencias de las energías de desplazamiento del primario. Para confirmar esta hipótesis -ante la dificultad de cambiar el espectro neutrónico-, pensó en la utilización de reacciones de fisión iniciadas por interacciones neutrónicas inelásticas para introducir partículas de un rango amplio de energías dentro del metal. De este modo obtuvo evidencia experimental respecto de la incidencia de la energía del desplazamiento primario a partir de las interacciones neutrónicas elásticas.

En diversos estudios de cambio resistividad a baja temperatura en aluminio, cobre y oro dopado con ^{235}U , [55,56], Blewitt y colab. encontraron que la velocidad inicial de la resistividad aumentaba 2 órdenes de magnitud respecto a la de los metales puros. Se concluyó que cada fisión del ^{235}U producía 2 órdenes de magnitud más de defectos que un desplazamiento primario proveniente de un neutrón de reactor.

Mediante la comparación de las velocidades de producción de defectos [57] y de las recuperaciones isócronas de propiedades tales como cambio de resistividad y cambio de volumen, se demuestra la similitud del daño por neutrones rápidos y del daño por fragmentos de fisión a baja temperatura. Por ejemplo, en la *Fig. 1.4* se muestran las curvas de recuperación isócrona junto con las de recuperación diferencial en función de la temperatura de recocido para cobre dopado al 0,1 %at. ^{235}U irradiado a 6 K, bajo un flujo de neutrones térmicos de $1,4 \times 10^{12} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ [58]. A efectos de comparación en la misma *Fig. 1.4* también se muestran las curvas similares correspondientes a cobre puro irradiado a 18 K bajo un flujo de neutrones rápidos de $1,3 \times 10^{12} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ [59]. Los dos picos de recuperación de daño por fragmentos de fisión, es decir, las Etapas I y III, 40 y 250 K respectivamente, coinciden remarcadamente bien con los obtenidos para irradiación con neutrones rápidos.

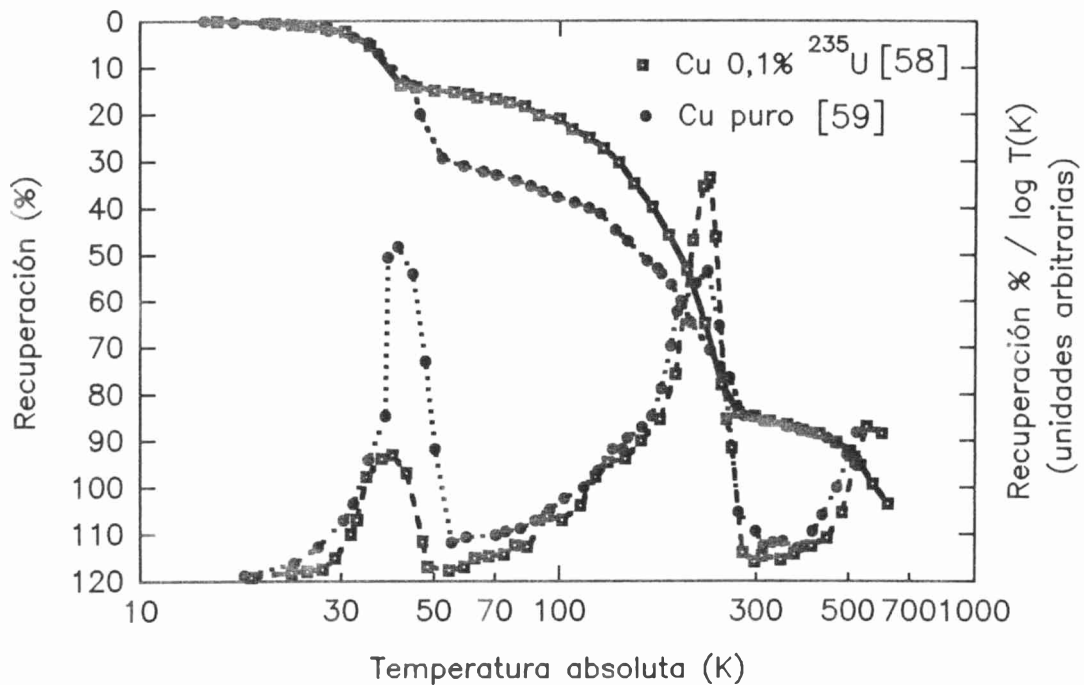


Fig. 1.4: Recuperación isócrona y su derivada del daño por fragmentos de fisión y por neutrones rápidos en cobre (ver texto).

Experimentos complementarios de medición de cambio de volumen y de cambios de resistividad a baja temperatura en función de la dosis en especímenes de aluminio [55], cobre [60] y níquel [53], dopados con ²³⁵U, permitieron dilucidar el tipo de configuración del daño producido por los fragmentos de fisión en estos materiales, concluyendo que en níquel se forman aglomerados de vacancias tridimensionales, mientras que en los otros materiales las cascadas formadas colapsan en lazos de dislocaciones.

1.8 Modos de aglomeración de los defectos puntuales

En cualquier condición de irradiación, los átomos autointersticiales siempre se aglomeran en forma de un disco de átomos insertado entre dos planos densos de la red: el borde del disco es un "lazo de dislocación de tipo intersticial". En el caso específico de la estructura cúbica centrada en las caras (fcc), cuyos planos densos son los {111}, dicho lazo de dislocación intersticial es un lazo de Frank cuya característica es que su vector de Burgers es perpendicular al plano del lazo y tiene una longitud igual al espaciado entre planos adyacentes, es decir $\vec{b} = \frac{a}{3} \langle 111 \rangle$. Cuando los lazos crecen más allá de un diámetro crítico,

ocurre una reorganización, y la falla de apilamiento dentro del lazo desaparece, la dislocación

se convierte en perfecta, es decir su vector de Burgers es el vector suma de uno o más vectores de red, y comienzan a operar reacciones con la red de dislocaciones circundante. Lazos muy pequeños son capaces de propagar a lo largo de sus planos mediante un proceso colectivo.

Los aglomerados de vacancias, por el contrario, son o bien objetos bidimensionales, los "lazos de vacancias," u o bien objetos tri-dimensionales: las cavidades (que pueden ser burbujas de gas o voids) y las fallas de apilamiento tetraedrales (en la estructura fcc). Tal diversidad de las geometrías de aglomeramiento, surge de las pequeñas diferencias de energía entre las diferentes formas. De estas dos posibilidades de aglomeramiento, se encuentra que normalmente la forma tridimensional no es la configuración más estable, excepto para el molibdeno [61]. La nucleación de las cavidades puede ser catalizada por elementos insolubles (o de baja solubilidad) tales como átomos de gas, en particular helio que se genera por las reacciones (n, α) . No se espera la formación de aglomerados tri-dimensionales de intersticiales debido a la gran energía de deformación que introducirían.

En la siguiente *Fig. 1.5*, se muestran esquemáticamente los modos de aglomeración de los intersticiales y de las vacancias [62].

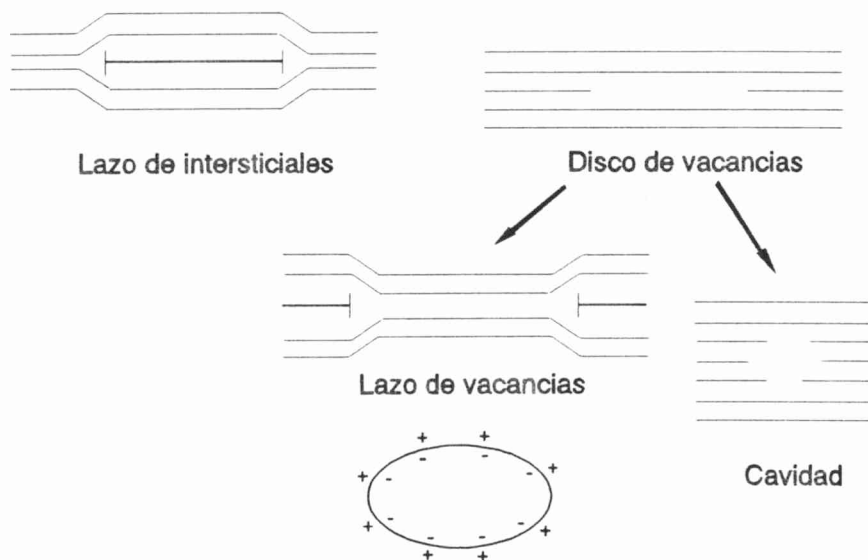


Fig. 1.5: Esquema de las formas de aglomeración de las vacancias y de los intersticiales.

Durante la irradiación el circonio (hcp) a diferencia de los metales fcc y bcc (cúbicos centrados en el cuerpo) y de otros metales hcp, presenta lazos de vacancias y de intersticiales

de tipo **a**, con vectores de Burgers $\bar{b} = \frac{a}{3} \langle 11\bar{2}0 \rangle$ que son estables y pueden coexistir. Además, la deformación de los autointersticiales es mucho menor en el circonio que en la mayor parte de los otros materiales. El pequeño desajuste dilatacional de las especies intersticiales podría explicar el hecho que la red de circonio puede acomodar fácilmente al soluto intersticial (que frecuentemente es átomo gaseoso). Esto es significativo porque la carencia de gas insoluble y la presencia de soluto intersticial parece ser el principal responsable de la inestabilidad del void y de la estabilidad de los lazos de vacancias de componente **c** respectivamente [63].

2 CRECIMIENTO POR IRRADIACION EN CIRCONIO Y SUS ALEACIONES

2.1 Introducción

En ausencia de tensiones aplicadas, muchos materiales sometidos a irradiación se distorsionan, especialmente aquéllos con propiedades físicas anisotrópicas. Como se mencionó en 1.1, el término *crecimiento por irradiación* apareció en literatura abierta en la II Conferencia Internacional sobre Usos Pacíficos de la Energía Atómica de 1955 [1], para describir el aumento de longitud de probetas cilíndricas de uranio durante la irradiación, donde fue presentado como el "efecto mas espectacular de la irradiación sobre los metales". Los primeros trabajos publicados importantes en crecimiento por irradiación en circonio aparecieron en 1961 [2,3] que describieron los cambios anisotrópicos debido al daño producido por fragmentos de fisión. Buckley [2] se refirió principalmente al crecimiento por irradiación del uranio y presentó algunos resultados de crecimiento en circonio. Para explicar el fenómeno, Buckley partió de la hipótesis que el material que sufre crecimiento por irradiación debe tener anisotropía cristalográfica y anisotropía en la expansión térmica. El neutrón entrante que inicia la cascada de colisión de PKAs energéticos crea una cascada de átomos desplazados (*spike* de desplazamiento) y una generación de calor muy localizada (*spike* de temperatura). En circonio el coeficiente de expansión térmica es máximo a lo largo de la dirección del eje *c* de modo que la cascada producida durante la irradiación experimenta las máximas tensiones de compresión a lo largo de esta dirección. Esto favorece al colapso de aglomerados de vacancias en lazos de dislocaciones con vector de Burgers paralelo al eje *c*. Los intersticiales producidos durante la irradiación condensan como lazos con vectores de Burgers de tipo *a*, es decir: $\frac{1}{3}\mathbf{a}\langle 11\bar{2}0 \rangle$. Este mecanismo es equivalente a transferir átomos desde el plano basal al plano prismático [64]. El estudio por microscopía electrónica de transmisión (TEM) de Hudson [6] en uranio corroboró la teoría de Buckley. El modelo de Buckley fue citado por muchos investigadores para explicar los cambios dimensionales observados durante la irradiación neutrónica de aleaciones policristalinas de circonio. Una consecuencia de este modelo es que los policristales texturados cristalográficamente crecerían de acuerdo a:

$$\dot{\epsilon}_d \propto 1 - 3F_d \quad 2.1$$

donde $\dot{\epsilon}_d$ es la velocidad de crecimiento en la dirección *d*, y F_d es la fracción resuelta de

polos basales en la dirección d .

Horak y Rhude [2], por su parte, también en 1961, presentaron resultados de crecimiento por irradiación en probetas de Zr-5%p Pu y de Zr-7%p Pu, que habían sido deformadas en frío de modo de conseguir un alto grado de orientación preferencial en la dirección longitudinal. Estos especímenes, irradiados hasta una densidad de fisión máxima de $2,5 \times 10^{21}$ fis. cm^{-3} , elongaron hasta 400% junto con un encogimiento diametral y un cambio de volumen despreciable ($< 3\%$).

Estos hallazgos de Buckley y de Horak y Rhude recién fueron reconsiderados a partir de la necesidad de explicar los cambios de longitud y el aumento del creep inducidos por radiación de las vainas de elementos combustibles en Zircaloy [65]. Posteriormente aparecieron una serie de publicaciones [por ej. 66,67,68,69] que describían el comportamiento del crecimiento por irradiación del Zircaloy-2 a alrededor de 570 K, a partir de datos obtenidos de experimentos específicos de crecimiento y/o de datos de cambios dimensionales registrados en programas de vigilancia de vainas de combustible nuclear de reactores de potencia en operación. Los estudios de crecimiento por irradiación se intensificaron aún más cuando se encontró que los tubos de presión de Zircaloy-2 trabajado en frío podían elongar a velocidades considerables [70,71].

Durante muchos años la teoría de Buckley fue aceptada para explicar el crecimiento por irradiación en circonio y sus aleaciones hasta que fueron presentándose trabajos en los cuales no se encontraba correlación alguna entre el crecimiento medido y el esperado por dicho modelo. Con el objetivo de caracterizar el daño por radiación en las aleaciones de circonio, en 1978 se realizó un concurso de investigación (*round-robin*) internacional con la participación de 5 laboratorios [72]. Como resultado de este estudio se confirmó que en Zircaloy-2 irradiado hasta 10^{25} n m^{-2} ($E > 1$ MeV), no se forman dislocaciones de componente c y que sólo se forman lazos de dislocaciones con vectores de Burgers $\frac{1}{3}\mathbf{a}\langle 11\bar{2}0 \rangle$. Estos lazos comprenden una mezcla de lazos de vacancias y de intersticiales.

Trabajos posteriores que mostraron resultados de crecimiento por irradiación [73], junto con análisis por TEM de los especímenes correspondientes [74], revelaron que otros factores importantes afectaban al crecimiento por irradiación lo que sugirió otros mecanismos posibles para el proceso de crecimiento. Algunos de los numerosos factores que afectan el crecimiento por irradiación son, además de las condiciones de operación del reactor (dosis

neutrónica y temperatura), las características del material: microestructura (que incluye la densidad de dislocaciones, el tamaño y la forma de grano), la textura cristalográfica (que da cuenta de la anisotropía del material), el contenido de aleantes (composición química) y el proceso de fabricación (tensiones residuales).

Entre los autores que han realizado trabajos sistemáticos en crecimiento por irradiación en circonio policristalino y en Zircaloy-2 se destacan Murgatroyd y Rogerson [75,76,77,78,79], que se resumen en la revisión de Rogerson de 1988 [80].

Si bien hay una acumulación muy extensa de resultados y teorías en crecimiento por irradiación, que pueden encontrarse por ejemplo en las revisiones de Fidleris [81,82,83], Northwood y Herring [84] y Zelensky y Reznichenko [85], todavía hoy este fenómeno es materia de estudio por sus implicancias tecnológicas.

En la siguiente sección **2.1.1** se presentarán brevemente las composiciones químicas y condiciones metalúrgicas y de operación de las aleaciones base circonio utilizadas en componentes de los reactores de potencia del tipo PHWR (Pressurized Heavy Water Reactor), como los que funcionan actualmente en las dos centrales nucleares en operación en nuestro país: CNA-I (Central Nuclear Atucha I) y CNE (Central Nuclear Embalse). En las secciones siguientes, **2.2** y **2.3**, se presentará una revisión de la fenomenología y modelización del fenómeno de *crecimiento por irradiación* en circonio y estas aleaciones.

2.1.1 Composiciones químicas y condiciones metalúrgicas y de operación de las aleaciones de circonio utilizadas en la industria nuclear

Los reactores PHWR utilizan uranio natural como elemento combustible y agua pesada como refrigerante y moderador [86]. El uso de uranio natural como combustible requiere que los componentes del núcleo de los reactores tengan una sección eficaz de absorción de neutrones baja. El circonio es el único material adecuado que satisface el requisito de la baja sección eficaz ($\sigma_a \sim 0,185$ barn) y además tiene una resistencia a la corrosión en medio acuoso satisfactoria. Por estas razones se han venido utilizando aleaciones de circonio en la tecnología de los reactores de potencia.

En la *Tabla 2.1* se muestran los rangos de composición química, según las normas internacionales, de las aleaciones de circonio utilizadas hasta el presente en la industria nuclear argentina: Zircaloy-2, Zircaloy-4 y Zr-2,5%p Nb.

Tabla 2.1: Composición química de las aleaciones de circonio utilizadas en la industria nuclear argentina.

| Material | Composición (%p) | | | | | |
|-------------|------------------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|
| | Sn | Fe | Cr | Ni | O | Nb |
| Zircaloy-2 | 1,20-1,70 | 0,07-0,20 | 0,05-0,15 | 0,03-0,08 | 0,10-0,16 | |
| Zircaloy-4 | 1,20-1,70 | 0,18-0,24 | 0,07-0,13 | | 0,10-0,16 | |
| Zr-2,5%p Nb | | | | | 0,09-0,13 | 2,40-2,80 |

Los reactores de potencia del tipo PHWR en funcionamiento en las centrales nucleares de nuestro país se diferencian principalmente en que el núcleo del reactor de CNA-I está dentro de un recipiente de presión y consiste de 253 elementos combustibles³, cada uno en un canal refrigerante vertical (de 6 m de longitud). En el reactor de la CNE como en la mayor parte de los PHWR, en cambio, el refrigerante, circula por los canales, o *tubos de presión*, posicionados horizontalmente. Cada tubo de presión (de 6 m de largo y 10 cm de diámetro interior), que contiene 10 manojos de elementos combustibles, está sometido a alta presión, mientras que el tanque que contiene a dichos canales y al moderador opera a presión atmosférica. En el Apéndice A.1 se presenta un corte esquemático del reactor de CNA-I [87], en donde se puede observar la ubicación de los canales de refrigeración que contienen a los elementos combustibles. Así mismo, en el Apéndice A.2, se muestra una vista general de un reactor CANDU⁴, como el de la CNE, y un diagrama simplificado de los componentes del núcleo [88].

En la siguiente *Tabla 2.2* se resumen el tipo de aleación, el tratamiento termomecánico y la temperatura de operación de los componentes del núcleo de los reactores de CNA-I y de CNE fabricados en aleaciones de base circonio. En los reactores tipo CANDU (como el de la CNE), los tubos de calandria separan a los tubos de presión del moderador.

³Cada elemento combustible se compone de 37 barras combustibles dispuestos en tres círculos concéntricos, que, junto con el cuerpo de relleno y el tapón de cierre del canal de refrigeración conforma la *columna combustible*.

⁴CANadian Deuterium Uranium.

Tabla 2.2: Componentes de los reactores de potencia de CNA-I y CNE fabricados en aleaciones de base circonio [89].

| Componente | Reactor de | |
|-----------------------------------|-------------------------------------|--------------------------------------|
| | CNA-I | CNE |
| <u>Vaina elemento combustible</u> | | |
| Aleación | Zircaloy-4 | Zircaloy-4 |
| Tratamiento termomecánico | 50% trabajado en frío + 2 h a 773 K | 50% trabajado en frío + 2 h a 793 K |
| Temperatura de operación | 596 K | 575 K |
| <u>Canal de refrigeración</u> | | |
| Aleación | Zircaloy-2 y -4 | |
| Tratamiento termomecánico | recristalizado | |
| Temperatura de operación | 553 K | |
| <u>Tubo de presión</u> | | |
| Aleación | | Zr-2,5%p Nb |
| Tratamiento termomecánico | | 30% trabajado en frío + 24 h a 673 K |
| Temperatura de operación | | 553 K |
| <u>Calandria</u> | | |
| Aleación | | Zircaloy-2 |
| Tratamiento termomecánico | | recristalizado |
| Temperatura de operación | | 353 K |

2.2 Fenomenología del crecimiento por irradiación en circonio y sus aleaciones

2.2.1 Zircaloy-2 y Zircaloy-4 policristalino recristalizado

A partir de los datos publicados en Zircaloy-2 y Zircaloy-4 se puede considerar que el comportamiento del crecimiento por irradiación en estas aleaciones es similar. El comportamiento general de material recristalizado, esquematizado en la *Fig. 2.1*, puede caracterizarse mediante tres etapas [8]. En la primer etapa, siempre aparece un crecimiento inicial rápido positivo en la dirección de trabajado pero puede ser negativo en la dirección normal a ésta [90,91,92]. Este transiente inicial es mucho más rápido a 350 y 380 K que a mayores temperaturas de irradiación [93], y su duración es máxima a 570 K, disminuyendo a cero

a temperaturas próximas a 700 K [94,95]. Existen indicaciones de una componente muy pequeña de cambio de volumen en esta etapa [96].

La segunda etapa consiste en un estado estacionario de baja velocidad de crecimiento. La duración de esta etapa decrece con la temperatura de irradiación. Aparentemente, a 350 K esta etapa se extiende hasta dosis de $\sim 2 \times 10^{26} \text{ n m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$) [97].

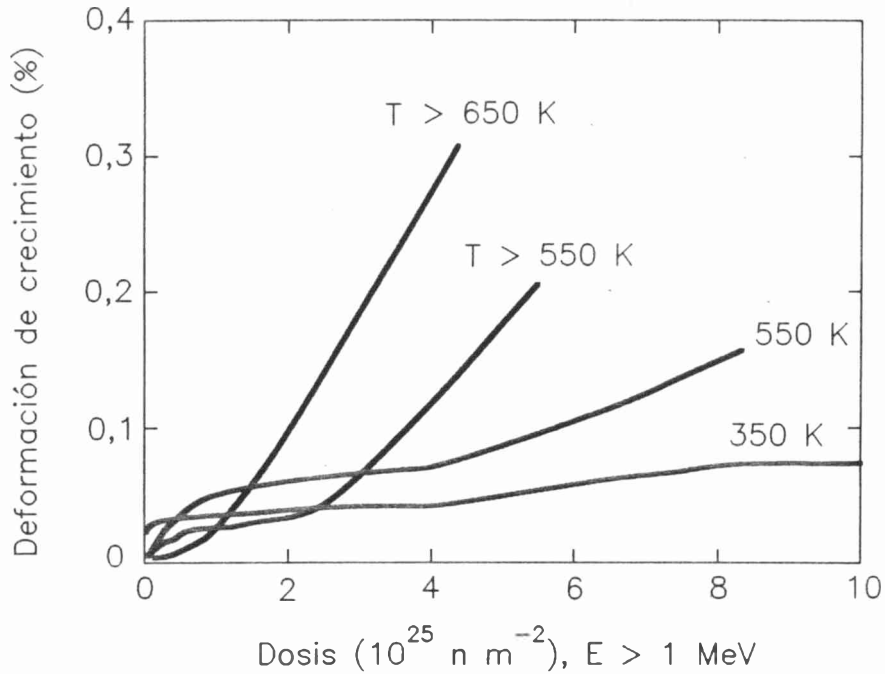


Fig. 2.1: Esquema del crecimiento en Zircaloy recristalizado en la dirección longitudinal ($F_l \sim 0,1$) como función de la temperatura.

A temperaturas de irradiación $\geq 553 \text{ K}$ la segunda etapa finaliza con una aceleración de la *velocidad de crecimiento*, $\dot{\epsilon}_g$, que varía desde $> 1 \times 10^{-29} \text{ m}^2 \text{ n}^{-1}$ ($E > 1 \text{ MeV}$), a 553 K, hasta $6 \times 10^{-29} \text{ m}^2 \text{ n}^{-1}$ ($E > 1 \text{ MeV}$), a 670 K [78,73]. La velocidad de crecimiento de la tercera etapa está asociada con la temperatura de irradiación. Esta última etapa del crecimiento se refiere en la literatura como *crecimiento acelerado* o "*breakaway*". Se encuentra que en direcciones con valores altos de F_d , por ejemplo para $F_n = 0,574$, donde n es la dirección *normal*, la deformación de crecimiento es negativa [ver Tabla 3 de Ref. 73]. Si bien existen indicios de *swelling* a temperaturas $\sim 720 \text{ K}$ [98], la deformación isotrópica de volumen representa menos del 20% de la deformación de crecimiento y está dentro de los límites del error de la técnica experimental utilizada.

En material recristalizado existe poca información del efecto del tamaño de grano en el crecimiento por irradiación, y en los trabajos que lo consideran, no siempre es posible

separar los efectos del tamaño de grano de otros efectos transientes [83]. Se ha encontrado poca diferencia en la cinética de crecimiento de Zircaloy-2 recristalizado de tamaños de grano de 12 μm y 31 μm , irradiado a 320 K, si bien la magnitud de la deformación de crecimiento para el espécimen de mayor tamaño es alrededor de un 20% a partir de $\sim 4 \times 10^{25} \text{ n m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$). Especímenes del mismo material irradiados a 650-690 K, exhiben un comportamiento inverso del crecimiento. El material de tamaño de grano menor ensayado a 650 K muestra un crecimiento de un 15% mayor, y a 690 K hasta un 100% mayor [99].

Diversos estudios por TEM han mostrado que durante las dos primeras etapas del crecimiento aparecen lazos de dislocaciones prismáticos con vectores de Burgers del tipo \mathbf{a} , en o próximos a los planos prismáticos [100,101,72,102,64]. Estos lazos son demasiado pequeños para caracterizarlos, cuando las temperaturas de irradiación son menores que $\sim 570 \text{ K}$ [103]. Los tamaños de los lazos tienden a aumentar con la temperatura y las densidades a decrecer [72]. A temperaturas de irradiación superiores a 570 K, se encuentra una mezcla de lazos de carácter de vacancias y de intersticiales [72]. Normalmente dominan los lazos de vacancias [63]. El tamaño y la concentración de los lazos inducidos por radiación a 570 K hasta dosis de $1 \times 10^{26} \text{ n m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$) son demasiado pequeños para explicar la magnitud de la deformación de crecimiento de las dos primeras etapas [104].

A altas dosis, mayores que $3\text{-}4 \times 10^{25} \text{ n m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$), el Zircaloy-2 y -4 recristalizado, irradiado a 570 K, el crecimiento acelerado está acompañado por la aparición, en la subestructura, de dislocaciones rectas de componente \mathbf{c} [105], y a temperaturas mayores, 690-740 K, por la evolución de los lazos de componente \mathbf{a} en una estructura de red de dislocaciones como la producida por el trabajado en frío [73,100]. Un estudio por TEM posterior determinó que los defectos de componente \mathbf{c} correlacionados al crecimiento acelerado, en circonio y Zircaloy-2 y -4 recristalizado, son lazos de dislocaciones de vacancias en el plano basal con vectores de Burgers $\frac{1}{6}\mathbf{a}\langle 2\bar{0}23 \rangle$ [106]. La formación de

estos defectos se relaciona al contenido de soluto del circonio (ya sea como impureza o como elemento aleante) y, aparentemente depende de la disolución durante la irradiación de partículas intermetálicas [107].

2.2.2 Zircaloy-2 y Zircaloy-4 trabajado en frío y liberado de tensiones

En la Fig. 2.2 se muestra el comportamiento general del crecimiento por irradiación en Zircaloy-2 trabajado en frío y liberado de tensiones bajo un flujo de neutrones rápidos. A 570 K los datos de literatura indican que el crecimiento es positivo en la dirección longitudinal.

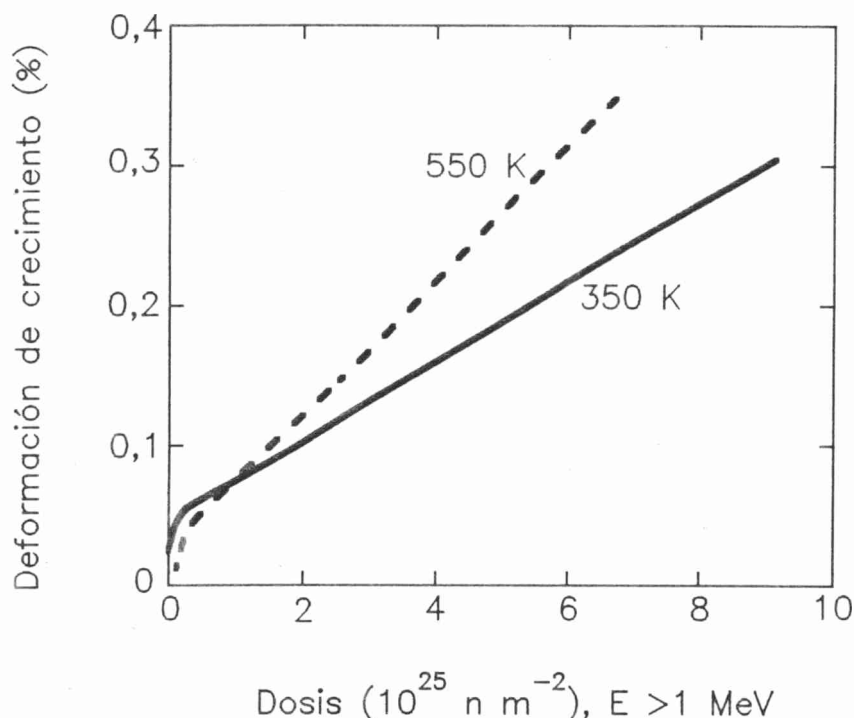


Fig. 2.2: Crecimiento en la dirección longitudinal ($F_l \sim 0,1$) de Zircaloy-2 trabajado en frío y liberado de tensiones a 350 K y 550 K.

A esta temperatura de irradiación el comportamiento se puede describir mediante una componente saturante típica de material recristalizado hasta una dosis de $1 \times 10^{25} \text{ n m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$), a partir de la cual comienza una cinética estacionaria con una $\dot{\epsilon}_g$ positiva que continúa a altas dosis [90].

A 350 K se observa un comportamiento similar, Fig. 2.2, pero la deformación transiente ocurre más rápidamente [75,80]. La cinética de largo alcance, es decir a partir de dosis próximas a $1 \times 10^{26} \text{ n m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$), aumenta alrededor de un 60% a 570 K respecto a 350 K. La cinética de crecimiento estacionaria a ambas temperaturas de irradiación, ajusta razonablemente bien con la Ec. 2.1.

A medida que aumenta la temperatura de irradiación por encima de 570 K, la deformación inicial decrece y la cinética de largo alcance evidencia decrecer ligeramente hasta 670 K, y a partir de esta temperatura se observan mayores $\dot{\epsilon}_g$ [108,109]. El comportamiento de largo alcance del crecimiento de material tanto recristalizado como trabajado en frío y liberado de tensiones, a temperaturas de irradiación ≥ 670 K, algunas veces es indistinguible [108], porque la cinética *pos-breakaway* en el material recristalizado es comparable a la cinética estacionaria del material trabajado en frío y liberado de tensiones. A alrededor de 550 K la cinética de crecimiento ($\dot{\epsilon}_g$) de estado estacionario, aumenta con la cantidad de trabajado en frío [90]. Se ha encontrado, a partir de un análisis de la deformación total (creep y crecimiento) de tubos de presión fabricados por diferentes rutas, que el aumento es aproximadamente lineal con la densidad de dislocaciones (elevada a 0,8) [110]. A 330 K la velocidad de crecimiento de largo alcance de material con niveles de trabajado en frío superiores al 10% y liberado de tensiones, aumenta en forma aproximadamente lineal con la densidad de dislocaciones a medida que aumenta la cantidad de trabajado en frío previo al liberado de tensiones [111].

Las observaciones por TEM de la microestructura de Zircaloy trabajado en frío y liberado de tensiones, después de irradiación neutrónica muestran estructuras de lazos de dislocaciones de tipo **a** similares a las observadas en material recristalizado [112]. Estas últimas tienden a ocultar cualquier estructura de dislocaciones de tipo **a** de la red de dislocaciones residual del trabajado en frío. Sin embargo, a 530 K las dislocaciones de componente **c**, propias del trabajado en frío, pueden ser visualizadas aún a altas dosis. En condiciones de irradiación de altas dosis y altas temperaturas de irradiación, las microestructuras observadas son muy similares a las de material recristalizado [63].

2.2.3 Zircaloy-2 y Zircaloy-4 con bajos niveles de trabajado en frío

A 330 K se ha encontrado que bajos niveles de trabajado en frío, de 0,25 a 3,5%, sin un tratamiento posterior de liberado de tensiones, introduce un transiente prolongado en la primera etapa del crecimiento, *Fig. 2.3* [113]. En la segunda etapa, a partir de $\sim 5 \times 10^{25}$ $n\ m^{-2}$ ($E > 1$ MeV), el crecimiento se invierte tanto para la dirección de trabajado (de positivo pasa a negativo), como para la dirección normal a la del trabajado (de negativo pasa a positivo). Eventualmente este efecto se revierte a dosis altas, cuando la cinética de crecimiento puede ajustarse con la *Ec. 2.1*. La magnitud de este efecto aumenta con el nivel de trabajado en frío hasta el 1,5%, y para niveles superiores a éste decrece. Cuando el material es liberado

de tensiones, se restablece el comportamiento original.

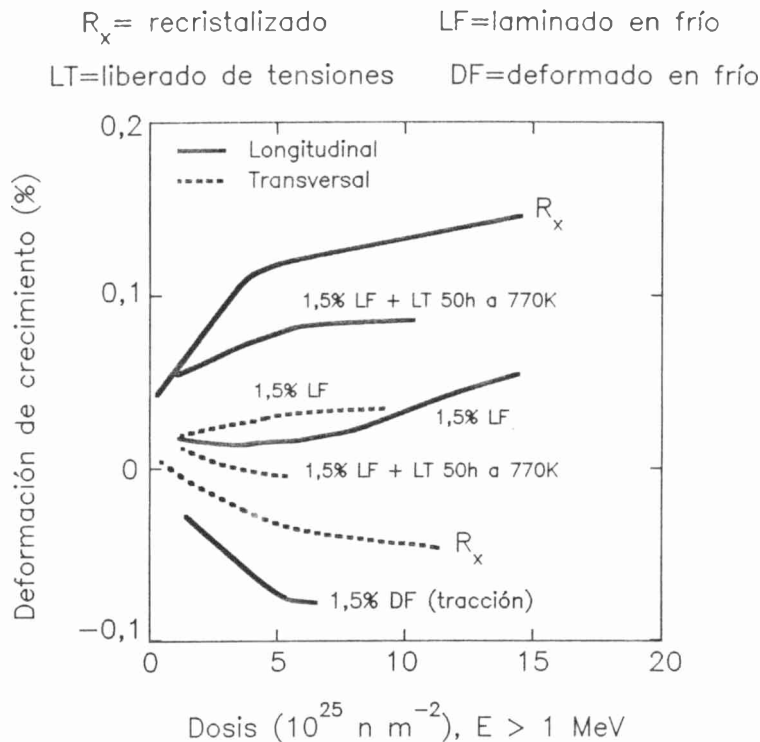


Fig. 2.3: Efecto de bajos niveles de trabajado en frío y del liberado de tensiones en el crecimiento por irradiación en Zircaloy-2 a 330 K [82].

Estos resultados muestran la extensión a la cual la relajación de tensiones intergranulares mediante irradiación puede dominar el comportamiento macroscópico del crecimiento por irradiación. Sin embargo, la velocidad de crecimiento de estado estacionario (altas dosis) es independiente de la tensión interna térmica inicial, pero depende del desarrollo de tensiones internas originadas a partir de la incompatibilidad grano a grano inducida por la radiación [114].

Se han presentado resultados similares a los descritos para Zircaloy-2 con 0,75 y 2% de trabajado en frío irradiado a 553 K hasta dosis de $7 \times 10^{25} \text{ n m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$) [115].

2.2.4 Circonio monocristalino

Estudios en monocristales de circonio (fabricados ya sea por el proceso ioduro o de van Arkel [116], o por refinación zonal) irradiados a 353 y 553 K muestran deformaciones de crecimiento iniciales positivas del orden de 10^{-4} en la dirección del eje **a** y deformaciones negativas de alrededor de la mitad de dicho valor en la dirección del eje **c** [117]. A 553 K

se encuentra una cinética de crecimiento lenta hasta la dosis de $4 \times 10^{25} \text{ n m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$), más allá de la cual el cristal de pureza yoduro exhibe un crecimiento acelerado con una $\dot{\epsilon}_g$ de alrededor del 40% de la correspondiente al breakaway en Zircaloy-2 policristalino a la misma temperatura [118,78].

Monocristales de circonio trabajados en frío (estampados) que contenían una densidad alta de dislocaciones de componente **a** y **c**, del orden de 10^{14} m^{-2} , y una alta densidad de maclas (del tipo $(10\bar{1}2)$), a 353 K exhibieron velocidades de crecimiento por irradiación muy altas, del orden de $1,5 \times 10^{-27} \text{ m}^2 \text{ n}^{-1}$ [119]. Cuando, previo a irradiar, el material es liberado de tensiones a 673 K -temperatura a la que se recupera la estructura de dislocaciones-, se observa una reducción de la velocidad de crecimiento mayor que cuando se le aplica un tratamiento térmico a 823 K, temperatura a la que se introducen algunos bordes de grano. Los monocristales con baja densidad de dislocaciones de tipo **a** muestran un crecimiento muy bajo.

2.2.5 Circonio policristalino

El crecimiento del circonio policristalino recristalizado exhibe un comportamiento genérico similar al exhibido por el Zircaloy recristalizado. A 353 K se observa un deformación inicial transiente hasta $1 \times 10^{25} \text{ n m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$), seguida por una velocidad baja de estado estacionario que permanece constante hasta la máxima dosis alcanzada de $1,1 \times 10^{26} \text{ n m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$) [120]. Las $\dot{\epsilon}_g$ correspondientes a los estados transiente y estacionario son positivas en la dirección longitudinal (lo que normalmente implica un $F_d < 0,3$), y negativas en la dirección transversal, es decir perpendicular a la dirección de trabajado ($F_d = 0,4$), como se muestra en la Fig. 2.4. En esta última, también se indica la influencia del tamaño de grano en el transiente inicial del crecimiento, observándose que para granos más grandes, el transiente se hace más lento. No obstante, para el término de crecimiento de largo alcance, no se encuentra un efecto sistemático del tamaño de grano en el rango de 5 a 75 μm [79,120].

A 553 K se observa un comportamiento similar excepto que las deformaciones de crecimiento transientes para materiales con tamaños de grano grandes son muy inferiores a las correspondientes a materiales con tamaños de grano pequeño. No se observa crecimiento acelerado hasta $5 \times 10^{25} \text{ n m}^{-2}$, $E > 1 \text{ MeV}$.

En circonio policristalino deformado irradiado a 353 K se encuentran velocidades de crecimiento de estado estacionario [121]. Bajos niveles de trabajado en frío producen

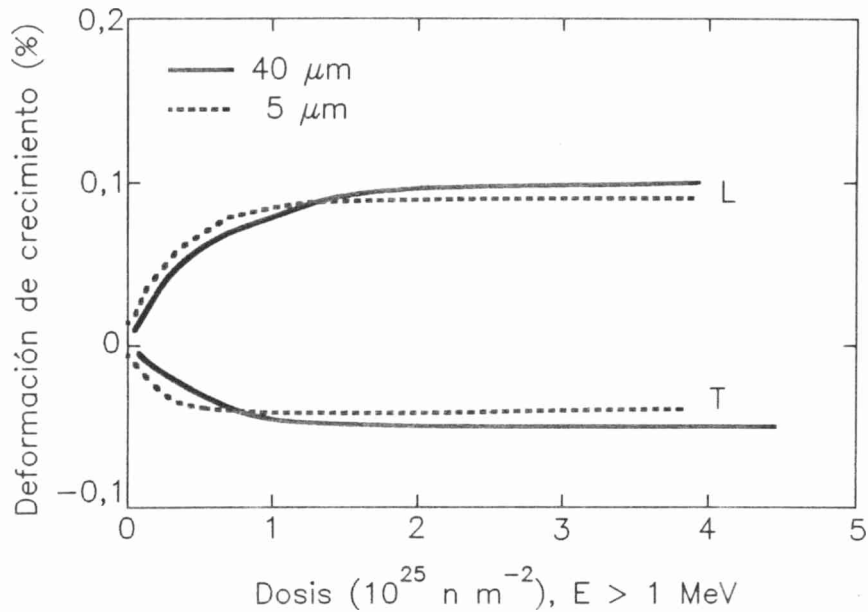


Fig. 2.4: Crecimiento por irradiación en circonio policristalino recristalizado a 350 K [120].

deformaciones de crecimiento transientes que son negativas en la dirección de trabajado. tanto a 353 K como a 553 K [122]. Este comportamiento es similar al del Zircaloy.

Las observaciones microestructurales en circonio irradiado con neutrones han revelado distribuciones de lazos de dislocaciones de vacancias en los planos basales, algo mayores pero similares a las encontradas en Zircaloy a dosis inferiores [63,64]. A temperaturas y dosis altas, en circonio esponja, que tiene un contenido de oxígeno mayor que el circonio de pureza yoduro, se reveló una gran cantidad de lazos de dislocaciones de vacancias de componente *c*, mayor que el encontrado en el circonio más puro [74]. Esto en coincidencia con la mayor deformación de crecimiento medido en el primero [123].

2.2.6 Zr-2,5%p Nb policristalino

El crecimiento de Zr-2,5%p Nb recristalizado con un tamaño de grano de $\sim 1 \mu\text{m}$, irradiado a 353 K, exhibe un transiente inicial seguido por un término de largo alcance hasta una dosis de $5 \times 10^{25} \text{ n m}^{-2}$, $E > 1 \text{ MeV}$. La deformación de crecimiento es positiva en la dirección de trabajado ($F_d=0,03$), y negativa en la dirección normal a ésta ($F_d=0,59$) [124]. Un recocido pre-irradiación para reducir la densidad residual de dislocaciones sólo tiene un pequeño efecto en el comportamiento [124,125].

A 553 K se observan dos tipos de comportamientos dependiendo de la microestructura, como se resume en la Fig. 2.5 [126]. El material 40% trabajado en frío, sometido a un tratamiento de liberado de tensiones a 773 K durante 6 h (más un tratamiento final de liberado de tensiones a 673 K durante 24 h), con un tamaño de grano de $0,27 \mu\text{m}$ (en la dirección radial), exhibe una deformación inicial positiva pequeña en la dirección de trabajado ($F_d=0,03$) que, a partir de $\sim 1 \times 10^{25} \text{ n m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$), es seguida por una cinética de estado estacionario negativa. El crecimiento en la dirección normal a la de trabajado ($F_d=0,56$) es negativo, con un pequeño transiente seguido por una cinética de estado estacionario un poco más lenta que la correspondiente a la dirección longitudinal.

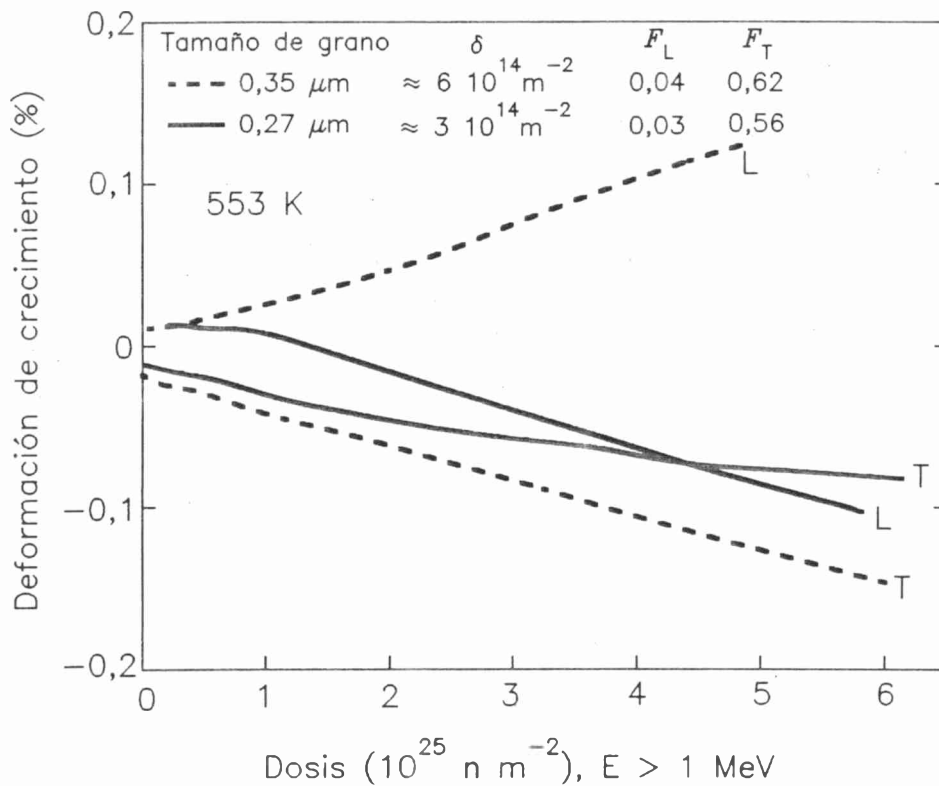


Fig. 2.5: Crecimiento por irradiación de Zr-2,5%p Nb trabajado en frío y liberado de tensiones a 553 K [126].

En Zr-2,5%p Nb -25% trabajado en frío y liberado de tensiones a 673 K durante 24 h- de textura similar, con tamaño de grano un poco más grande y una mayor densidad de dislocaciones (un factor 2 mayor), el comportamiento del crecimiento en la dirección normal a la del trabajado es similar al anterior, pero en la dirección de trabajado, el crecimiento muestra una deformación inicial positiva seguida de un período de crecimiento despreciable, hasta $\sim 2 \times 10^{25} \text{ n m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$), y luego una cinética positiva acelerada. A mayores temperaturas de irradiación, entre 653 y 705 K, el mismo material mostró un comportamiento bastante similar,

pero con una etapa transiente más larga, hasta $5 \times 10^{25} \text{ n m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$), durante el cual las deformaciones fueron negativas [127].

Las observaciones microestructurales de este material irradiado hasta $1,2 \times 10^{25} \text{ n m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$) a 547 K muestran una estructura densa de lazos de tipo **a** con dislocaciones de componente **c** [128]. A dosis del orden de $7-8 \times 10^{25} \text{ n m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$), a las temperaturas de irradiación de 570 y 660 K, se han encontrado pequeños precipitados de Nb, producidos por irradiación. A 660 K, también se han observado lazos de dislocaciones de carácter de vacancias de componente **c** [129].

2.2.7 Otras aleaciones

Se han hecho estudios del efecto del contenido de estaño en el crecimiento por irradiación de circonio policristalino [130]. Se ha encontrado una similitud en el comportamiento de las aleaciones Zr-0,1%p Sn y Zr-1,5%p Sn con el del Zircaloy a las temperaturas de irradiación de 353 y 553 K [131]. No obstante, el Zr-1,5%p Sn a diferencia del Zircaloy, exhibe crecimiento acelerado a partir de $3-4 \times 10^{25} \text{ n m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$), tanto a 353 K como a 553 K.

La aleación Excel (Zr-3,5%p Sn-0,8%p Mo-0,8%p Nb) irradiada entre 660 y 700 K, exhibe altas velocidades de crecimiento (hasta $2 \times 10^{-28} \text{ m}^2 \text{ n}^{-1}$, $E > 1 \text{ MeV}$) [94]. Las deformaciones de crecimiento en las direcciones de trabajado y normal a ésta, ajustan bien con la *Ec. 2.1*, indicando conservación de volumen. Las observaciones microestructurales en esta aleación [128,63] revelan una alta densidad de lazos de dislocaciones con vectores de Burgers de tipo **a**, dislocaciones de red de componentes **c** y lazos de vacancias de componente **c** en los planos basales.

2.2.8 Entornos de irradiación y daño por desplazamiento

Dado que los experimentos de crecimiento, en general, se realizan en diferentes entornos de irradiación, es menester mencionar que usualmente se comparan las velocidades de crecimiento en términos del *daño por desplazamiento*, en lugar de neutrones rápidos. Como las deformaciones están relacionadas directamente al daño inducido por radiación -originalmente en forma de desplazamientos atómicos-, todas las correlaciones cuantitativas de crecimiento deberían hacerse en términos de los desplazamientos por átomo (dpa), tal como se definió en **1.4.3**. Sin embargo, el crecimiento se ha expresado históricamente como función del quemado del combustible o de la dosis de neutrones (flujo integrado) de una energía dada,

normalmente para neutrones de $E > 1$ MeV, debido a la fácil correlación de la dosis con monitores de actividad de níquel o hierro [82]. Siempre que las irradiaciones se realicen en un mismo tipo de facilidad de irradiación, es posible comparar los diferentes conjuntos de datos mediante la suposición que todos los eventos de daño son equivalentes, estrictamente aditivos, y directamente proporcionales a la dosis medida o calculada. Los problemas surgen cuando es necesario comparar resultados obtenidos en diferentes reactores con espectros de flujo neutrónico muy diferentes. En este sentido, para evaluar los efectos de espectros de flujo diferentes, la mayor parte de la bibliografía consultada [por ej. 82,83,8], utilizó el código DISKPAN [132] para calcular las velocidades de daño en circonio para un conjunto de reactores⁵ de los cuales se disponía el flujo neutrónico. En la *Tabla 2.3* se reproducen los resultados [82]. En los cálculos se utilizó una energía umbral de desplazamiento de 25 eV (ver 1.4). A excepción del reactor EBR-II, los cálculos muestran que es posible comparar directamente los resultados de irradiación, sin introducir un error muy grande, utilizando valores de dosis neutrónicas de $E > 1$ MeV como medida de daño.

Tabla 2.3: Velocidades de Daño por Desplazamientos en circonio para diferentes tipos de reactores suponiendo una energía umbral de 25 eV [82].

| Reactor | Flujo Neutrónico Medido ($E > 1$ MeV) ($n\ m^{-2}\ s^{-1}$) | Velocidad de Daño Calculada (dpa s^{-1}) | Dosis de Neutrones de $E > 1$ MeV para alcanzar un daño de 1 dpa ($10^{24}\ n\ m^{-2}$) |
|----------------------|--|--|--|
| núcleo del PHWR | 2,1 a $3,7 \times 10^{17}$ | $5,0$ a $8,8 \times 10^{-8}$ | 4,2 |
| núcleo del BWR | $5,9$ a $6,9 \times 10^{17}$ | $1,3$ a $1,6 \times 10^{-7}$ | 4,5 |
| loop del NRU | $2,0 \times 10^{17}$ | $4,6 \times 10^{-8}$ | 4,4 |
| (hueco A_0) ATR | $1,6$ a $4,6 \times 10^{18}$ | $3,6$ a $10,4 \times 10^{-7}$ | 4,4 |
| núcleo del EBR-II | $1,6$ a $5,0 \times 10^{18}$ | $0,6$ a $1,6 \times 10^{-6}$ | 2,7 a 3,0 |
| periferia del EBR-II | $0,02$ a $1,6 \times 10^{18}$ | $0,4$ a $6,0 \times 10^{-7}$ | 0,4 a 2,7 |

En general, se requiere una dosis de $4,4 \pm 0,2 \times 10^{24}\ n\ m^{-2}$ ($E > 1$ MeV) para crear un daño por radiación de 1 dpa. En el caso del núcleo del reactor reproductor rápido, el daño por unidad de dosis neutrónica es de 40 a 55% mayor que el producido dentro de un reactor

⁵De los núcleos de un PHWR y un BWR (Boiling Water Reactor) típicos, de la facilidad NRU (National Reactor Universal) de Chalk River, del hueco A_0 del ATR (Advanced Test Reactor), además del núcleo y de la periferia del EBR-II (Experimental Breeder Reactor-II).

moderado y la diferencia aumenta hasta un factor 10 con respecto a la periferia del EBR-II. Algunos autores [133,134] utilizan valores de dosis que varían desde $5 \times 10^{24} \text{ n m}^{-2}$ a $1 \times 10^{25} \text{ n m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$) para provocar un daño de 1 dpa en reactores moderados con agua. Estos valores mayores se asocian a que en los cálculos han utilizado 40 eV como energía umbral de desplazamiento.

2.3 Mecanismos del crecimiento por irradiación

2.3.1 Primeros modelos

Como se mencionó en 2.1 Buckley [3] propuso por primera vez un mecanismo para el crecimiento por irradiación en circonio, atribuyendo la expansión del eje *a* y la contracción del eje *c* a la formación de lazos de intersticiales en los planos prismáticos y de lazos de vacancias en los planos basales como respuesta a tensiones transientes inducidas en los *spikes* o picos de desplazamientos debidas a la expansión térmica anisotrópica. Este mecanismo produciría una respuesta transiente seguida de una saturación que ocurriría una vez que los eventos de desplazamiento comenzaran a superponerse. De este modo, sin embargo, no se puede explicar el crecimiento de estado estacionario observado en los materiales trabajados en frío.

Kelly [135] introdujo un mecanismo modificado capaz de explicar parte de la deformación transiente que involucraba la migración anisotrópica de los intersticiales y de las vacancias a segmentos de bordes de grano orientados en forma diferente respecto a los ejes cristalográficos de cada grano, como respuesta a las restricciones intergranulares introducidas por la expansión térmica anisotrópica. Nuevamente, este mecanismo no puede explicar el crecimiento de largo alcance, de estado estacionario, de material trabajado en frío.

Las primeras observaciones microestructurales refutaron el mecanismo propuesto por Buckley, pues no se observaron lazos en los planos basales, y, además, los tamaños y densidades de los defectos inducidos por radiación detectados eran demasiado pequeños como para explicar las deformaciones transientes medidas en material recristalizado [104].

2.3.2 Modelos "efecto tamaño"

Carpenter y Northwood [104] propusieron que los defectos puntuales producidos por el daño por desplazamiento eran segregados por la "interacción tamaño", de modo que un flujo neto de SIAs (autointersticiales) era atraído preferencialmente por las dislocaciones de red

con vectores de Burgers del tipo \mathbf{a} , es decir, dislocaciones \mathbf{a} , dejando un flujo neto de vacancias en sumideros "neutros": los bordes de grano. Con granos equiaxiados esto conduce a la anisotropía según la Ec. 2.1.

Dollins [136] realizó el primer intento de modelizar cuantitativamente el proceso de crecimiento utilizando el enfoque de la teoría cinética, para lo que se basó en una aproximación cuantitativa desarrollada por Wiedersich [7] para describir la hinchazón (*void swelling*) pero adaptada al proceso de crecimiento. Supuso que los sumideros preferidos (*biased*) eran grandes lazos de dislocaciones de intersticiales en los planos prismáticos así como dislocaciones de red \mathbf{a} , y los sumideros neutros eran pequeños lazos de intersticiales en los planos prismáticos (sin explicar porqué éstos no eran preferidos) junto con "zonas diluidas" submicroscópicas. Supuso que una cierta fracción de las zonas diluidas colapsaban a lo largo de la dirección \mathbf{c} , de modo que su modelo no entraba en conflicto con la evidencia que el crecimiento ocurría sin un cambio significativo de densidad. Posteriormente Dollins [137] utilizó su modelo para analizar algunos aspectos de la recuperación de la deformación durante recocidos posirradiación.

Fainstein-Pedraza y colab. (FSP) [138] aplicaron una teoría cinética similar al modelo de Carpenter y Northwood, e introdujeron el concepto que, con los bordes de grano como sumideros, la forma anisotrópica de los granos podría provocar apartamientos de la anisotropía de la dada por la Ec. 2.1. Este modelo predijo, a alrededor de 550 K, una fuerte dependencia de la velocidad de crecimiento, $\dot{\epsilon}_d$, con el tamaño de grano, en oposición a observaciones posteriores [82,110,79]. Para explicar las deformaciones transientes en material recristalizado, introdujeron los lazos como sumideros preferidos por los intersticiales. Posteriormente, Holt e Ibrahim [139] desarrollaron la relación entre la anisotropía de la microestructura y la del crecimiento, introduciendo una versión modificada de la Ec. 2.1, es decir:

$$\dot{\epsilon}_d \propto 1 - 3F_d - 2A_d \quad 2.2$$

que contiene el factor de anisotropía de borde de grano, A_d . Este modelo predijo exitosamente el comportamiento del crecimiento de los tubos de presión en los reactores de potencia en donde también el creep estaba presente [110].

Pedraza y Fainstein-Pedraza [140] extendieron su modelo anterior [138] incorporando la operación de lazos de vacancias -como sumideros de defectos puntuales- formados

durante el colapso de las cascadas de desplazamiento, que coexisten con lazos de intersticiales. Supusieron que ambos tipos de lazos eran preferidos por los intersticiales (es decir, los intersticiales eran preferencialmente atraídos por ellos), y de aquí que los lazos de vacancias tenderían a encogerse y los lazos de intersticiales a crecer como consecuencia de la absorción de intersticiales (SIA) y de la emisión de vacancias. Esto limitaría el tamaño máximo de los lazos de vacancias al número de vacancias en una cascada de desplazamiento, y por lo tanto, no explicaría la presencia de lazos de vacancias mayores que el tamaño de la cascada [8].

Para explicar la coexistencia de lazos de vacancias y de intersticiales en algunas microestructuras, Woo y colab. [141,142] examinaron las relaciones entre el tamaño de los lazos y la atracción relativa para los intersticiales y para las vacancias. Utilizando la "aproximación del medio efectivo", pudieron mostrar que el factor de preferencia del SIA por los lazos aumentaba con el diámetro del lazo para rangos intermedios de diámetros de lazo, suposición que ya había sido utilizada sin explicación [136,138]. Dependiendo del resto de la microestructura, esto permite que ambos tipos de lazos sean estables y que los lazos de intersticiales coexistan con lazos de vacancias más pequeños.

2.3.3 Modelos "efecto tamaño" modificado

2.3.3.1 Movilidad aumentada de la vacancia

Bullough y Wood (BW) [143] basándose en las velocidades de trepado de las dislocaciones observadas por TEM (Microscopía Electrónica de Transmisión), para explicar la velocidad de crecimiento del Zircaloy-2 a 353 K, adoptaron un modelo de "vacancia rápida", en el cual una energía de migración de 0,65 eV permitía una suficiente segregación del defecto puntual a bordes de grano y a dislocaciones a . Este valor de la energía de migración es muy inferior al del límite inferior ($\sim 1,3$ eV) indicado por Hood [144]. Para ajustar los resultados experimentales encontraron que era necesario eliminar completamente el arribo de los SIAs a los bordes de grano. Una consecuencia de este modelo fue una fuerte sensibilidad del crecimiento, tanto del material recristalizado y como del trabajado en frío, al tamaño de grano.

MacEwen y Carpenter (MC) [145] examinaron otro enfoque aumentando la movilidad efectiva de la vacancia, incluyendo formación de divacancias (supuestas móviles) y difusión por un canal, "pipe diffusion", a lo largo de dislocaciones de hélice en la red de dislocaciones a . Este último concepto produjo una dependencia débil de la velocidad de

crecimiento ($\dot{\epsilon}_d$) de los materiales trabajados en frío, irradiados a ~ 570 K, con el tamaño de grano y permitió una aceleración del crecimiento del material recristalizado una vez que se formase una densidad de dislocaciones suficiente por crecimiento y coalescencia de lazos [146]. Sin el modelo de difusión por un canal, las $\dot{\epsilon}_d$ calculadas por MacEwen y Carpenter a 553 K serían más de un orden de magnitud inferior a las $\dot{\epsilon}_d$ medidas y, además, sensibles al tamaño de grano.

La inconsistencia en las velocidades de crecimiento calculadas por MC y por FSP de alrededor un orden de magnitud, puede deberse a una discrepancia de alrededor de un factor seis en el cociente entre la velocidad de recombinación y la velocidad de pérdida a los sumideros, que se encuentra cuando se comparan las expresiones equivalentes [8]. Kidson [147] atribuyó esto a una interpretación errónea por parte de MC de la frecuencia de salto del intersticial, y sugirió que el número de recombinación utilizado es alrededor de 200 en lugar de 30 posiciones de red como establecen MC.

Aparentemente Kelly [148] señaló posteriormente que podría haber un error con el concepto de difusión por un canal, indicando una correlación de la orientación del borde de grano con el flujo neto de vacancias que llegan a los bordes vía difusión por un canal a lo largo de las dislocaciones de hélice a , reduciendo efectivamente la distribución neta de vacancias y SIAs a sumideros que tienen anisotropías de deformación diferentes.

2.3.3.2 Efectos de atrapamiento de defectos puntuales

Se ha mostrado que el atrapamiento de defectos puntuales en átomos de impureza es capaz de producir una deformación transiente, sin conservación de volumen, asociada con los defectos puntuales atrapados, que podría explicar parte del transiente inicial del crecimiento e inhibir el crecimiento mediante el aumento de la recombinación vacancia-SIA [143,146,149]. Estos efectos pueden explicar las deformaciones transientes iniciales rápidas observadas en Zircaloy-2 y en las aleaciones Zr-Sn a 353 K seguidas por $\dot{\epsilon}_d$ muy bajas.

Bullough y Wood [150] mostraron que algunos efectos transientes observados en Zircaloy después de cambiar la temperatura de irradiación [76] podrían explicarse mediante el atrapamiento y des-atrapamiento de vacancias en átomos de Sn en solución. Sin embargo, posteriormente se observaron efectos similares en circonio policristalino (de pureza

ioduro), sugiriendo que el Sn no era el responsable [79].

2.3.3.3 Anisotropía de defectos puntuales

En un intento de explicar las razones de la coexistencia de lazos de vacancias y de intersticiales en el circonio, Woo [151] mostró la posibilidad que las preferencias relativas de lazos de vacancias y de intersticiales con el mismo vector de Burgers dependan de la anisotropía de los campos de deformación de los respectivos defectos puntuales en sus configuraciones de punto de ensilladura durante un salto térmicamente activado. Esto permite la posibilidad, al menos en teoría, que tanto los lazos de vacancias como los de intersticiales crezcan simultáneamente, estos últimos teniendo un factor de preferencia positivo para los SIAs en comparación con los lazos de vacancias.

2.3.3.4 Deslizamiento de dislocaciones inducido por lazos

Willard [152] desarrolló un concepto en el cual los lazos son tratados como poseedores de una preferencia mayor, en relación a las dislocaciones de red, para los SIAs. En este modelo, la segregación de defectos puntuales ocurre entre los lazos de intersticiales (flujo neto de SIAs) y las dislocaciones de red (flujo neto de vacancias). Willard también incluyó dislocaciones "fuente" con una preferencia intermedia (que no explica) que se generan en fuentes de dislocaciones de Frank-Read como respuesta a "tensiones" producidas por el continuo crecimiento de los lazos. Este modelo difiere de la mayor parte de los encontrados en la literatura, en que la deformación no se atribuye directamente a los flujos netos de defectos puntuales sino al deslizamiento de las dislocaciones fuente en una cantidad equivalente al flujo neto de SIAs a los lazos ("deformación lazo" o "loop strain") una vez que se alcanza una cierta tensión (asociada con la "deformación lazo"). No se da ningún argumento físico para explicar cómo se puede desarrollar la tensión cuando, en el modelo, la "deformación lazo" está casi completamente balanceada por el trepado de dislocaciones de red y/o fuentes [8].

La consecuencia de este modelo es una deformación de crecimiento que inicialmente satura tanto en el material recristalizado como en el trabajado en frío, pero acelera rápidamente después de una dosis crítica (a la que se alcanza la tensión crítica), a partir de donde la deformación debida al deslizamiento de las dislocaciones fuente se iguala a la "deformación lazo" ulterior total. La dependencia del crecimiento con la temperatura por encima de 540 K parece estar razonablemente bien aproximada por este modelo y hay poco efecto del tamaño de grano.

2.3.4 Desarrollos recientes

Muchos de los mecanismos descritos son meritorios y pueden contribuir en partes del crecimiento total de las aleaciones de circonio. Por ejemplo, la deformación rápida inicial observada en Zircaloy a 353 K y las deformaciones transientes asociadas con cambios en la temperatura de irradiación parecen estar probablemente asociadas con el atrapamiento de vacancias en los átomos de soluto.

Los modelos que predicen una baja dependencia del término de largo alcance del crecimiento con el tamaño de grano, a 353 y 553 K [145,152] presentan algunas dificultades conceptuales como se mencionó en 2.3.2 y en 2.3.3. Por otra parte, ninguno de los modelos incorporan conceptos que permitan explicar las nuevas observaciones experimentales, por ejemplo:

-Transientes de largo alcance introducidos por pequeños niveles de trabajado en frío mencionados en 2.2.3, según [80,82].

-Presencia de dislocaciones $c + a$. En base al efecto tamaño, los vectores de Burgers más largos de las dislocaciones $c + a$ en material trabajado en frío otorgarían una preferencia a los SIAs más intensa respecto de las dislocaciones a , invertirtiéndose la anisotropía del crecimiento observada normalmente [8].

-Inversión del comportamiento del crecimiento de largo alcance en la dirección longitudinal del Zr-2,5%p Nb trabajado en frío y liberado de tensiones con cambios relativamente pequeños en el tamaño de grano y en la densidad de dislocaciones [126] y con la temperatura de irradiación [153].

-Presencia de zonas disminuidas de lazos de intersticiales próximas a los bordes de grano [154], lo que sugiere que, en algunas circunstancias, los bordes de grano exhiben una preferencia para los SIAs no esperada simplemente por el "efecto tamaño" [8].

Entonces, el crecimiento por irradiación es un proceso más complicado de lo que se creía, y se requieren nuevos conceptos para explicar todas las observaciones.

2.3.4.1 Efectos de interacción entre granos

Adams y colab. [155] y Savino y Laciana [156] presentaron los primeros tratamientos en los cuales se consideraban cómo afectaban las restricciones intergranulares debidas a las deformaciones diferenciales de crecimiento entre cristales de orientaciones diferentes, a la deformación de crecimiento calculada: introduciendo una componente saturante y alterando la anisotropía aparente del crecimiento. Woo [157] mostró que los parámetros de creep de estado estacionario para cristales individuales podían extraerse de datos policristalinos para la condición de estado estacionario. Holt y Causey [158] demostraron que las tensiones intergranulares existentes antes de la irradiación, debidas a tratamientos previos de deformación plástica o térmicos [159], introducen una respuesta de "crecimiento" de largo alcance transiente cuando, dichas tensiones, relajan anisotrópicamente bajo la influencia de un flujo de neutrones rápidos. A bajas temperaturas, estos transientes pueden invertir la dirección "normal" del crecimiento dada por las Ecs. 2.1 o 2.2, pudiéndose explicar de este modo el comportamiento indicado en 2.2.3.

Una consecuencia de estos efectos es que la parte transiente de la curva de crecimiento debe interpretarse con cuidado, y con un conocimiento preciso de la historia preirradiación del material. Por ejemplo, se espera que los materiales recristalizados exhiban una respuesta a lo largo de la dirección de trabajado, debida a las tensiones intergranulares durante el proceso de recristalización, relacionada a la distribución de textura normal a la dirección de trabajado [158].

2.3.4.2 Efecto de la migración anisotrópica de los defectos puntuales

Ball [160], en 1981, reintrodujo el concepto, propuesto por Seigle y Opinsky [5] para el uranio, del crecimiento inducido por la difusión anisotrópica de los defectos puntuales. Reconoció la anisotropía potencial de la migración del SIA, pero sólo consideró la contribución de las vacancias que llegaban preferencialmente a bordes de grano orientados en forma diferente, efecto éste que contribuye a una deformación pequeña. Posteriormente, se reconoció que las $\dot{\epsilon}_v$ altas en las aleaciones de circonio estaban asociadas con la presencia de dislocaciones de red de componente c [102,106], las que luego fueron caracterizadas como lazos de vacancias [154] yaciendo cerca del plano basal. Woo y Gösele [161] introdujeron un tratamiento que muestra que las diferencias entre la anisotropía de migración de las vacancias y de los intersticiales tienen un efecto potencial grande sobre las preferencias de dislocaciones de red y de lazos. Esto permite a los defectos puntuales

distribuirse entre dislocaciones orientadas en diferentes direcciones.

Siempre que la anisotropía de la migración del SIA difiera de la correspondiente a la migración de la vacancia, los segmentos de dislocaciones y de lazos con sus direcciones de línea próximas a los ejes c exhibirán una preferencia para uno u otro tipo de defecto puntual respecto a los segmentos en el plano basal. Si existe una correlación entre la dirección de la línea y el vector de Burgers habrá crecimiento. Este concepto y su representación matemática fue desarrollado por Woo [162] quien refiere al efecto como DAD ("difference in anisotropic diffusion", es decir, diferencia en la difusión anisotrópica).

Holt [8] presentó un modelo para el crecimiento de largo alcance que incorpora pequeñas diferencias en las anisotropías de la migración de los SIAs y de las vacancias, así como el efecto tamaño, que permite explicar algunas de las observaciones mencionadas en **2.3.4**. Dentro del marco del modelo de Holt:

-La dependencia lineal de la velocidad de crecimiento con el flujo rápido de Zircaloy-2 trabajado en frío y liberado de tensiones e irradiado a ~ 353 K [163] implica una migración "rápida" de vacancias.

-En microestructuras de trabajado en frío que contengan dislocaciones $c + a$ y a puede ocurrir crecimiento "normal" (es decir, que cumpla con la Ec. 2.1) mediante la distribución de las vacancias hacia las primeras y de los SIAs hacia las otras.

-La aceleración del crecimiento a dosis altas en Zircaloy recristalizado se debe a la aparición de lazos en los planos basales que actúan como sumideros de vacancias, como se mencionó en **2.2.1**.

-El crecimiento "negativo" observado en Zr-2,5%p Nb trabajado en frío y sometido a un tratamiento intenso de relevado de tensiones, ver **2.2.6**, irradiado a ~ 550 K, se debe a una estructura de grano fino elongado aplanada en la dirección $c \times a$ que provee un sumidero muy importante para los SIAs. El modelo predice correctamente un régimen en el cual la velocidad de crecimiento, $\dot{\epsilon}_d$, es negativa tanto en la dirección longitudinal ($F_L = 0,03$) como en la dirección transversal ($F_T = 0,56$).

Dado que, en circonio, el conocimiento experimental directo de las propiedades de migración de los defectos puntuales (sin considerar las anisotropías) a las temperaturas de interés virtualmente no existen, muchos modelos todavía son especulativos.

2.3.4.3 Efectos microquímicos

Observaciones microestructurales de material irradiado a altas dosis [107,108,63], sugieren que la redistribución química durante la irradiación es un factor importante en el comienzo del crecimiento de los lazos de vacancias de componente **c** en los planos basales. Se piensa que la interacción de ciertas dislocaciones o bordes de grano con elementos aleantes o de impureza influyen fuertemente sus roles de sumideros de defectos puntuales. Sin embargo, todavía no hay suficiente información sobre las interacciones soluto-dislocaciones y soluto-borde de grano, o sobre los efectos de los solutos en las energías de falla de apilamiento en Zr- α [8].

2.3.5 Ultimos avances

Entre los nuevos enfoques del crecimiento por irradiación, se menciona el modelo presentado por Holt y colab. [164], en el que se toman en cuenta las condiciones de la cascada de daño utilizando el concepto de "preferencia de la producción" (*production bias*). En la teoría "preferencia de la producción", las vacancias e intersticiales libres producidos en las cascadas se suponen móviles y que difunden a sumideros o recombinan, tal como en las descripciones tradicionales que utilizan la teoría cinética del fenómeno de daño por radiación. Sin embargo, en este modelo, a los aglomerados formados en las cascadas se los supone inmóviles. La densidad numérica de éstos últimos aumenta gradualmente hasta un valor de estado estacionario, en el cual sus velocidades de formación en las cascadas es igual a sus velocidades de eliminación. Una característica clave de este modelo es la alta sección eficaz o probabilidad de reacción de las dislocaciones de componentes **a** y **c** con los aglomerados, debido a la mayor movilidad, por deslizamiento, de aquéllas. Teniendo en cuenta la autodifusión aumentada por la presencia del hierro, las predicciones del modelo concuerdan con la sensibilidad del crecimiento a las altas temperaturas observadas experimentalmente en Zircaloy-2 en el rango de temperatura de 623 a 700 K [94].

2.4 Plan de trabajo

2.4.1 Introducción

Desde el comienzo del funcionamiento de los reactores de potencia se realizan programas de vigilancia, para monitorear el proceso de funcionamiento total, o *performance*, y los cambios inducidos por radiación en las propiedades de los materiales, con el fin de detectar las condiciones que puedan influenciar a la seguridad nuclear y a la vida útil de la plantas.

Tanto los datos de crecimiento por irradiación obtenidos a partir de los programas de vigilancia de los componentes fabricados en aleaciones de circonio, así como los obtenidos a partir de estudios sistemáticos que aporta la literatura, provienen de mediciones posirradiación, es decir, el fenómeno que ha ocurrido a una dada temperatura de operación o de ensayo, se mide después que el material ha sufrido una excursión de temperatura, usualmente a la temperatura ambiente. Entonces, hay una falta de información en dos aspectos: el origen mismo del fenómeno y su evolución con la dosis a la temperatura de ensayo.

En este sentido, los Dres. H. C. González (CNEA) y T.H. Blewitt (Argonne National Laboratory) propusieron un método de medición de la cinética de crecimiento por irradiación *in situ*, desde el inicio mismo de la irradiación y a la temperatura de estudio, basado en sus experiencias de medición de propiedades mecánicas [165,166], eléctricas y cambios dimensionales [54,167] en pila. El método consiste en medir la flexión que sufre un par bimetalico al interaccionar con la radiación neutrónica. Esta flexión ocurre porque una componente del par se dopa con material fisionable y, al ser irradiado, los fragmentos de fisión que se generan en su seno producen un daño que simula una mayor dosis neutrónica. Entonces, el componente dopado experimenta un crecimiento mayor que el otro componente y, al estar los extremos de ambos unidos, el par se curva. El espécimen se construye en forma de par bimetalico a partir de dos aleaciones fabricadas mediante un único proceso, una de las cuales contiene material fisionable como elemento dopante, con el fin de simular un mayor daño neutrónico y aumentar la precisión de la medida.

Los resultados alentadores de las primeras mediciones de la cinética de crecimiento por irradiación *in situ* a 365 K, realizadas en la facilidad de irradiación instalada en el reactor experimental CNEA-RA1 con este método en 1981 [10,9], incentivaron la continuidad de la investigación.

Como consecuencia de la parada del reactor CNEA-RA1 para su nueva puesta a punto, iniciada en 1984, se decidió continuar con estos estudios en el reactor experimental y productor de radioisótopos CNEA-RA3, y así se obtuvo la primera cinética de crecimiento por irradiación a 618 K, en 1987.

El reacondicionamiento del CNEA-RA3, para llevarlo a mayor potencia, que comenzó inmediatamente después de finalizar el experimento mencionado, impulsó la continuidad de los estudios en la facilidad de irradiación instalada en el CNEA-RA1, donde se realizó la cinética de crecimiento a 533 K, en 1993.

2.4.2 Plan de trabajo

Esta investigación tiene el doble propósito de demostrar la validez del uso de pares bimetalicos para medir cinéticas de crecimiento a bajas dosis en reactores experimentales y verificar que el dopado con material fisionable no sólo sirve para simular irradiaciones con neutrones rápidos, sino que también constituye un método experimental acelerado eficaz para el estudio del crecimiento por irradiación en forma acelerada. Para cumplir con estos objetivos, se llevó a cabo el siguiente plan de trabajo:

-Construcción de especímenes para el estudio de la cinética de crecimiento por irradiación *in situ*, en los reactores CNEA-RA1 y CNEA-RA3.

-Instalación de la infraestructura necesaria para la puesta a punto de la facilidad de irradiación a altas temperaturas en el reactor CNEA-RA3 y reacondicionamiento de la facilidad de irradiación a altas temperaturas en el reactor CNEA-RA1.

-Obtención de cinéticas de crecimiento a bajas dosis de especímenes de Zr-0,06%at ²³⁵U, con diferentes tratamientos termomecánicos, a temperaturas próximas a las temperaturas de operación de las vainas de elementos combustibles (590 K) y de los canales de refrigeración de los tubos de presión de los reactores de potencia (553 K) de las CNA-I y CNE.

-Estudios de recuperación del crecimiento por irradiación, mediante recocidos posirradiación, para contribuir al esclarecimiento del fenómeno.

3 TRABAJO EXPERIMENTAL

3.1 Fabricación de las probetas

Cada probeta utilizada para medir crecimiento por irradiación consiste en un par bimetálico compuesto por dos varillas, una de ellas de 120 mm de longitud por 3 mm de ancho por 0,5 mm de espesor y la otra de 110 x 3 x 0,5 mm, construidas con aleaciones de circonio dopado con $\sim 0,06$ % atómico de ^{235}U y de ^{238}U , respectivamente.

3.1.1 Preparación de las aleaciones

Las aleaciones se fabricaron a partir de la dilución, con circonio de alta pureza (99,999%), de dos aleaciones *madres* de Zr-Al- ^{235}U y de Zr-Al- ^{238}U con las siguientes concentraciones atómicas:

Tabla 3.1: Composiciones atómicas de las aleaciones "madres"

| Zr-Al- ^{235}U | Zr-Al- ^{238}U |
|-------------------------------------|-------------------------------------|
| 0,430 %at U_{total} | 0,725 %at U_{total} |
| 0,400 %at ^{235}U | 0,720 %at ^{238}U |
| 3,330 %at Al | 28,880 %at Al |
| 96,240 %at Zr | 70,39 %at Zr |

Estos materiales fueron seccionados, decapados cuidadosamente y pesados en balanza analítica, con el objeto de realizar con la mayor precisión posible los cálculos para lograr la dilución programada [168]. Para evitar contaminaciones, las diluciones se realizaron mediante fusión por haz de electrones. Para ello se utilizó un equipo de fusión zonal MRC-Modelo EBZ-93B "Electron Beam Zone Refiner", acondicionado para fundir en crisol de cobre refrigerado. Un filamento incandescente de tungsteno emite electrones proporcionalmente a su temperatura absoluta, estos electrones son acelerados hacia el material a fundir por el potencial que se establece entre el filamento y el material, Fig. 3.1. De este modo, los electrones pierden su energía cinética en forma de energía térmica. La energía, E , que llega a la muestra es:

$$E = \frac{1}{2}mv^2 N \quad 3.1$$

donde m es la masa del electrón, v es la velocidad de los electrones que depende del voltaje acelerador V , y N es el número de electrones emitidos (corriente).

Durante la fusión se mantiene el sistema en vacío dinámico de difusora. Previo a la fusión se registra un alto vacío de aproximadamente 8×10^{-7} mm de Hg ($1,06 \times 10^{-4}$ Pa), con trampa de nitrógeno líquido.

Las condiciones de operación del equipo para lograr la completa fusión del material fueron: corriente de filamento no mayor de 1 A, voltaje de 5,2 kV y corriente electrónica de hasta 280 mA. Durante la fusión el vacío no decayó a valores mayores que 2,6 mPa.

La fusión completa del material se llevó a cabo mediante una serie de 6 fusiones intermedias para cada aleación, para asegurar una distribución homogénea de los elementos aleantes, que se verificó posteriormente con sucesivos análisis químicos y por microsonda.

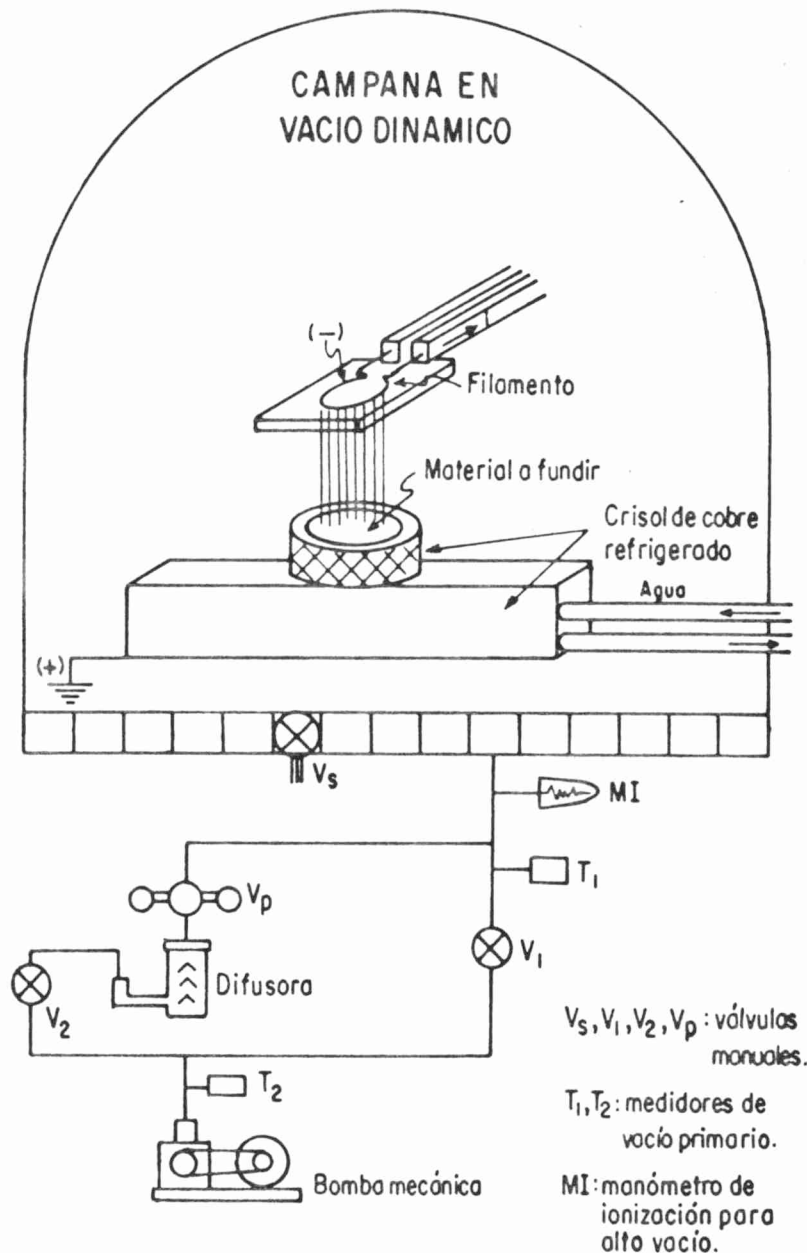


Fig. 3.1: Esquema del equipo utilizado para fabricar las aleaciones constitutivas de las probetas.

Se obtuvieron dos botones (o tochos) de aspecto favorable cuyas dimensiones y pesos se muestran en la *Tabla 3.2*:

Tabla 3.2: Dimensiones de los "tochos" de $ZrAl-^{235}U$ y $ZrAl-^{238}U$ obtenidos por fusión por haz de electrones.

| Aleación | peso (g) | diámetro (mm) | altura máxima (mm) |
|----------------|----------|---------------|--------------------|
| $ZrAl-^{235}U$ | 20,28 | 23,00 - 24,70 | 9,60 |
| $ZrAl-^{238}U$ | 19,39 | 23,00 - 23,50 | 9,10 |

En la *Tabla 3.3* se muestran las composiciones químicas finales de las dos aleaciones [169]. Las determinaciones del contenido de gases se hicieron durante las etapas intermedias de fabricación [170].

Tabla 3.3: Composiciones químicas de las aleaciones de $ZrAl-^{235}U$ y $ZrAl-^{238}U$.

| Aleación | Composición (%p) | | | | Impurezas (ppm) | | |
|----------------|------------------|-------|-----------|-----------|-----------------|-----|----|
| | Zr | Al | ^{235}U | ^{238}U | Fe | O | N |
| $ZrAl-^{235}U$ | 99,753 | 0,075 | 0,150 | 0,020 | < 300 | 700 | 58 |
| $ZrAl-^{238}U$ | 99,778 | 0,075 | 0,002 | 0,144 | < 300 | 700 | 58 |

Estos valores conducen a las siguientes composiciones atómicas:

Tabla 3.4: Composiciones atómicas de las aleaciones

| $ZrAl-^{235}U$ | $ZrAl-^{238}U$ |
|-----------------------|-----------------------|
| 0,065 %at U_{total} | 0,056 %at U_{total} |
| 0,059 %at ^{235}U | 0,055 %at ^{238}U |
| 0,253 %at Al | 0,253 %at Al |
| 99,680 %at Zr | 99,690 %at Zr |

3.1.2 Proceso de laminación y corte

La anisotropía de las propiedades mecánicas del circonio y sus aleaciones es una consecuencia de la estructura cristalina hexagonal compacta (hcp) de la fase α del circonio, estable hasta 1136 K [171]. Cuando estos materiales son laminados en chapas, se desarrolla una orientación preferencial o *textura* en los granos α hexagonales.

Durante el proceso de laminado la chapa de circonio, y de sus aleaciones, es comprimida en la dirección normal, de manera que la chapa se alarga en la dirección de laminación, mientras que prácticamente no fluye en la dirección transversal (esto normalmente es cierto para una relación ancho a espesor de la placa mayor que seis) [172]. En el plano normal a la dirección de laminado, la *elipse de deformación* está caracterizada por una deformación compresiva en la dirección normal y una deformación compresiva pequeña en la dirección transversal. En circonio (chapa) deformado en frío los polos basales siempre tienden a alinearse paralelamente a la fuerza compresiva deformante, colocándose preferencialmente en el plano determinado por DN (dirección normal) y DT (dirección transversal) a aproximadamente 40° de la dirección normal. Así, la dirección $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ tiende a alinearse a DL (dirección de laminado).

La Fig. 3.2 muestra esquemáticamente cómo se desarrolla la textura de una chapa de circonio durante su laminación [173].

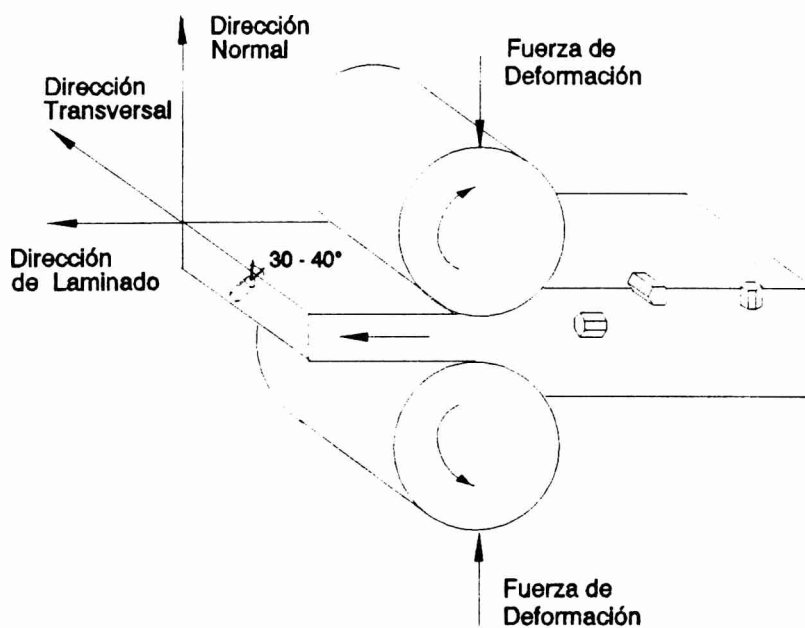


Fig. 3.2: Desarrollo de la textura cuando se lamina chapa de circonio [173].

Para iniciar un cambio en la textura se requiere una deformación mínima del 10% y una deformación del 30% produce la textura estable de laminado [174]. Laminados adicionales refuerzan la textura.

El proceso de conformado de las probetas de $ZrAl-^{235}U$ y $ZrAl-^{238}U$, comenzó con una

laminación *en caliente*, efectuando recocidos intermedios a 923 K, hasta conseguir una reducción en altura de ~ 80%. Para extraer completamente la capa de óxido, gruesa y dura, que se produjo en el material como consecuencia de la laminación en caliente, fue necesario desbastar mediante la técnica de arenado. Luego, se efectuó una laminación en frío con pasadas de 0,1 mm, hasta una reducción del ~ 40%, equivalente a un espesor de 1 mm, para ambas aleaciones.

Posteriormente, después de decapar con la solución:

45% NHO_3

5% HF

50% H_2O

-adecuada para el circonio y sus aleaciones-, y efectuar un recocido en vacío a 1020 K (2 h) para borrar la deformación previa, se procedió a una laminación en frío final, nuevamente con pasadas de 0,1 mm, hasta lograr una reducción en espesor del 50%. En la *Tabla 3.4* se registran las dimensiones finales de las dos planchuelas:

Tabla 3.4: Dimensiones de las planchuelas de $\text{ZrAl-}^{235}\text{U}$ y $\text{ZrAl-}^{238}\text{U}$ resultantes del proceso de laminación.

| Aleación | espesor (mm) | longitud máxima (mm) | ancho máximo (mm) |
|------------------------------|--------------|----------------------|-------------------|
| $\text{ZrAl-}^{235}\text{U}$ | 0,50 | 298 | 27,50 |
| $\text{ZrAl-}^{238}\text{U}$ | 0,50 | 291 | 27,50 |

De cada una de estas planchuelas se cortaron ocho listones, o varillas, de 3 mm de ancho y de longitudes de 120 mm, en el caso de la aleación dopada con ^{235}U y de 110 mm, en la dopada con ^{238}U . Los cortes se efectuaron con disco de diamante de 0,6 mm de espesor, con el fin de lograr una pérdida mínima de material. Las planchuelas se pegaron con un adhesivo del tipo ciano-acrilato en una base fabricada en hierro con sujetadores, la que se adhirió al plato magnético de la cortadora. Se refrigeró con kerosene y, por cada corte, se realizaron 3 pasadas de no más de 0,2 mm de profundidad. Los recortes se clasificaron cuidadosamente para pruebas y análisis.

3.1.3 Armado del par bimetalico

De cada una de las planchuelas, se obtuvieron ocho varillas con las que se construyeron ocho pares bimetalicos. Cada par bimetalico se conformó enfrentando una varilla de $\text{ZrAl-}^{235}\text{U}$ con otra de $\text{ZrAl-}^{238}\text{U}$, a las que se las unió rígidamente por sus extremos, manteniendo

la dirección de laminación hacia la parte superior de las varilla durante todo el proceso.

Durante la deformación, los componentes del par bimetalico deben mantener igual radio de curvatura. Dado que los momentos flectores son iguales, para que las curvaturas sean iguales los componentes del par deben tener igual módulo elástico e igual tensión de fluencia. Si uno de los elementos del par bimetalico entrase en fluencia, se deformaría plásticamente y se separaría, mientras que el otro elemento mantendría su curvatura. En el caso presente, los materiales son idénticos y las deformaciones pequeñas, entonces ambos elementos del par bimetalico mantendrán el mismo radio de curvatura durante su deformación.

Las soldaduras de las varillas se realizaron con una máquina Taffer⁶ -soldadora de punto por resistencia- después de ensayar con probetas testigo: hasta encontrar las condiciones óptimas de presión de los electrodos para lograr una unión pequeña, resistente y no deformante.

En el armado de las ocho probetas se tuvo cuidado en mantener las distancias entre las soldaduras inferior y superior. La zona libre no afectada fue de $102,5 \pm 0,5$ mm. Esta indeterminación produce un error máximo de menos del 2% en la flecha del par curvado. En la Fig. 3.3, se muestra un esquema indicando las dimensiones promedio de las probetas.

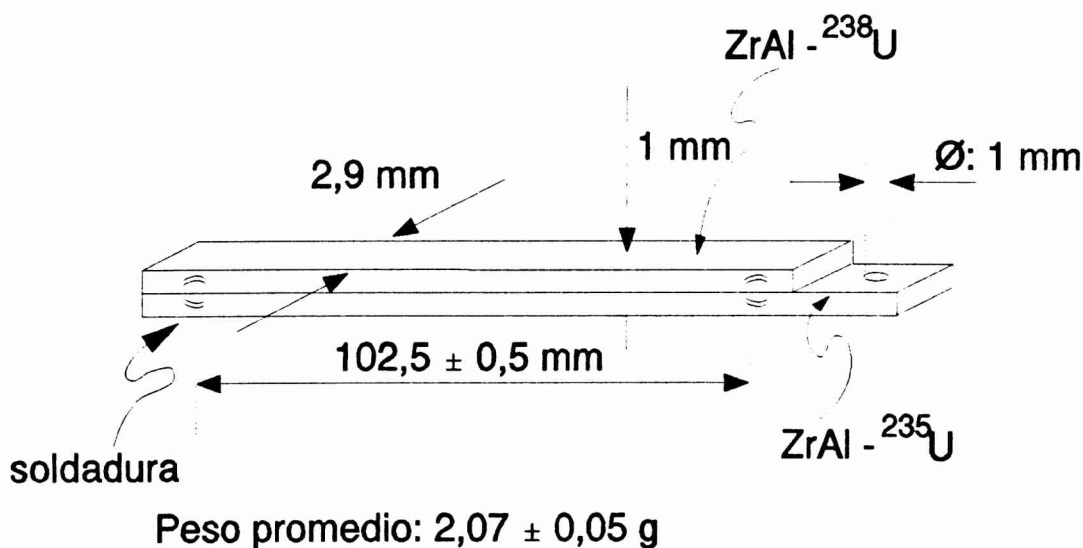


Fig. 3.3: Esquema de la probeta (no a escala).

El orificio en el extremo superior tiene por objeto acoplar la probeta con el núcleo del

⁶Cuando se realizaron las soldaduras, la máquina Taffer funcionaba en el INEND (Instituto Nacional de Ensayos No Destructivos) del CAC. Actualmente, se encuentra en CONUAR (COmbustible NUclear ARGentina), en el CAE.

transductor de desplazamiento que detectará la curvatura del par.

En el **Apéndice B** se presenta una estimación de la contaminación producida por el escape de los fragmentos de fisión en las probetas irradiadas para realizar este trabajo. Los resultados, arrojan niveles de radioactividad tolerables de los productos de fisión desde la superficie de las probetas a la facilidad en donde se ubican para irradiar.

3.1.4 Recocidos y análisis metalúrgico

La probeta irradiada en el CNEA-RA3 fue sometida a un tratamiento de relevado o liberación de tensiones a 673 K durante 2 h, mientras que la irradiada en el CNEA-RA1 recibió un tratamiento de recristalización, para eliminar la estructura de dislocaciones creada por el trabajado en frío, mediante un recocido a 983 K.

Durante el recocido la textura de laminado no cambia significativamente: se observa una tendencia de los polos basales a concentrarse más hacia la dirección normal y, simultáneamente, un aumento de la densidad de polos [175]. Cuando el material recristaliza -el circonio y sus aleaciones recristalizan fácilmente en el rango de temperaturas de 875 a 1075 K- los planos basales rotan continuamente $\pm 30^\circ$ alrededor del eje c y, en la posición estable final, la dirección $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ queda paralela a la dirección de laminado (en lugar de la dirección $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ como en el caso de la textura de deformado en frío, 3.1.2). En la Fig. 3.4 se ubican las direcciones mencionadas y el plano de deslizamiento en Zr- α [173]:

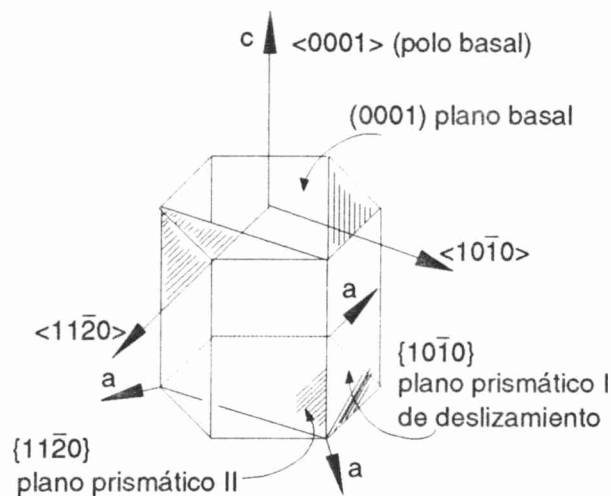


Fig. 3.4: Plano y dirección de deslizamiento en circonio α [173].

Para lograr una homogénea distribución del calor en las probetas y mantenerlas rígidas y derechas durante sus recocidos, se utilizó un soporte de tantalio consistente en dos placas rectificadas de este material con seis tornillos sujetadores de acero inoxidable.

Los recocidos de los especímenes, junto con muestras de las aleaciones para análisis de textura y metalográficos, se realizaron empleando la técnica de encapsulado en tubo de cuarzo. Para evitar depósitos indeseables en las probetas, en ambos casos, el procedimiento consistió en:

- decapado del soporte de tantalio con la solución: 20% HF - 60% SO_4H_2 - 20% HCl (a 0 °C durante 60 s),

- limpieza de los tornillos con la secuencia alcohol, acetona, tolueno y éter,

- decapado de la ampolla de cuarzo con la solución 20% HF - 75% agua destilada - 5% agua oxigenada (110 volúmenes) y enjuague con agua destilada,

- desgasado del soporte y de la ampolla de cuarzo en vacío dinámico a 773 y 1000 K, en el caso del recocido de la probeta liberada de tensiones y de la recristalizada, respectivamente, durante 2 h,

- decapado y limpieza de las probetas y de las muestras para análisis con la solución mencionada en **3.1.2**, con un riguroso enjuague y secado,

- sujeción de las probetas y muestras en el soporte de tantalio y colocación dentro de la ampolla de cuarzo. A este conjunto se le hizo alto vacío dinámico durante 48 h, hasta que registró $\sim 10^{-5}$ Pa (8×10^{-8} mm de Hg), con trampa de nitrógeno líquido, y no se modificó con sucesivos flameos externos. Se selló la ampolla.

- Se practicaron los recocidos respectivos.

En ambos procedimientos se obtuvo un resultado excelente, las probetas y las muestras para análisis quedaron limpias y perfectamente planas con un relevado de las tensiones producidas por el trabajado mecánico.

Se preparó una muestra de 2,5 cm² de superficie con recortes de igual orientación en la dirección de laminado para realizar el análisis de textura del material sin recocer. La *Fig. 3.5* muestra la figura de polos (0002) resultante. Se observa la clásica concentración de intensidades en el plano longitudinal-transversal a aproximadamente $\pm 30^\circ$ de la dirección

radial. A partir de esta figura de polos se puede inferir que la fracción de polos basales efectiva, o factor de textura, en las dirección de laminado es $f_l \sim 0,1$ [176].

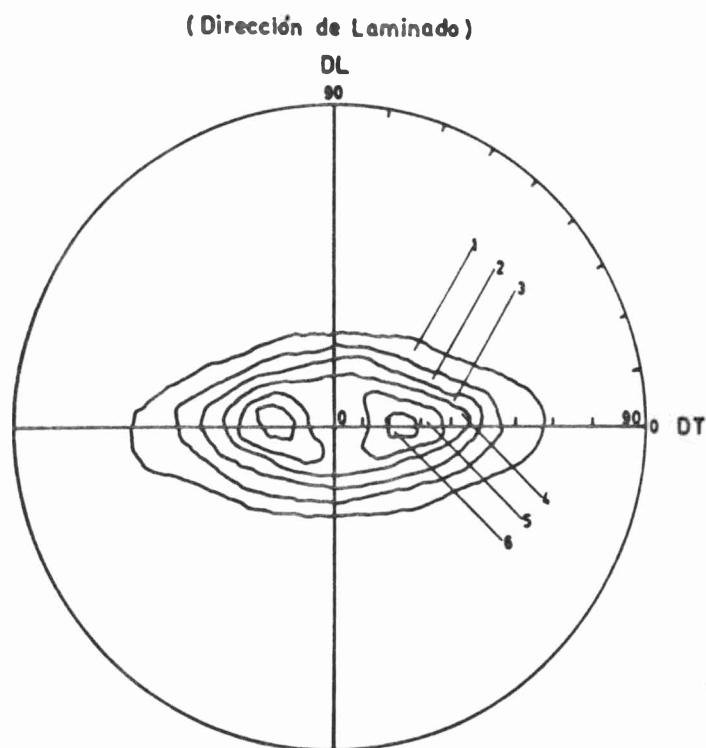


FIGURA DE POLOS (0002)

Fig. 3.5: Diagrama de textura de la probeta después de 50% de trabajado en frío.

En la Fig. 3.6 se muestra una de las metalografías realizadas después de la laminación de la aleación ZrAl-²³⁵U [177]. Se observa la estructura de granos deformados propia de un 50% de laminación. El tamaño de grano promedio de esta muestra *sin recocer* es 23,5 μm .

La Fig. 3.7 es la micrografía del mismo material con tratamiento térmico de liberado de tensiones a 673 K, durante 2 h. En este caso, se midió un tamaño de grano promedio de 20,3 μm .

Finalmente, las micrografías presentadas en las figuras Fig. 3.8 y Fig. 3.9 (con aumentos de x200 y x500, respectivamente) corresponden a la misma aleación con tratamiento térmico de recristalización (2h a 983 K). Se aprecia una estructura completamente recristalizada de granos equiaxiados con tamaño de grano promedio de 15,4 μm .

Estas muestras también fueron analizadas por microsonda, CAMEA SX50, equipada con

espectroscopía dispersiva en longitudes de onda, cuyo nivel de detección es de 200 ppm en peso. Un barrido cuidadoso por toda la extensión de las muestras analizadas, determinó una distribución homogénea de los elementos aleantes. No se detectó la presencia de ninguno de los elementos investigados (Sn, Mg, Si, Hf, Ti, Ni, Cu, V, Pb) que tampoco se encontraron en los análisis químicos efectuados previa y posteriormente a las fundiciones.

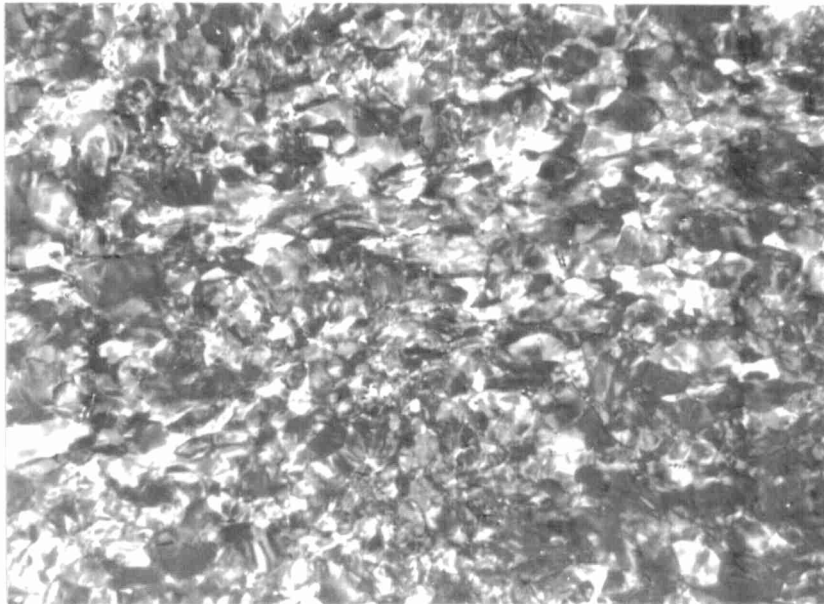


Fig. 3.6: Micrografía de una muestra de ZrAl-²³⁵U 50% trabajado en frío. (x200).

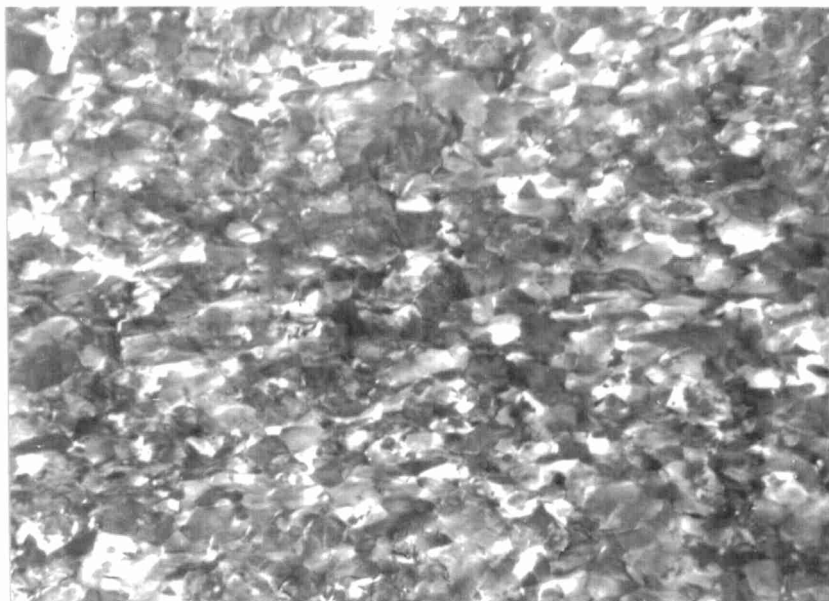


Fig. 3.7: Micrografía de una muestra de ZrAl-²³⁵U 50% trabajado en frío y liberado de tensiones (673 K, 2 h). (x200).

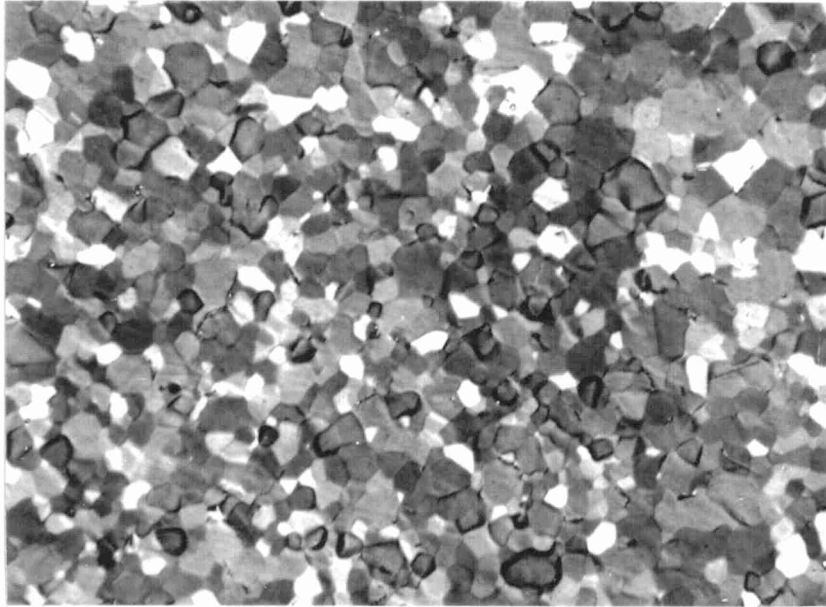


Fig. 3.8: Micrografía de una muestra de $\text{ZrAl-}^{235}\text{U}$ recristalizada (983 K, 2 h). (x200).

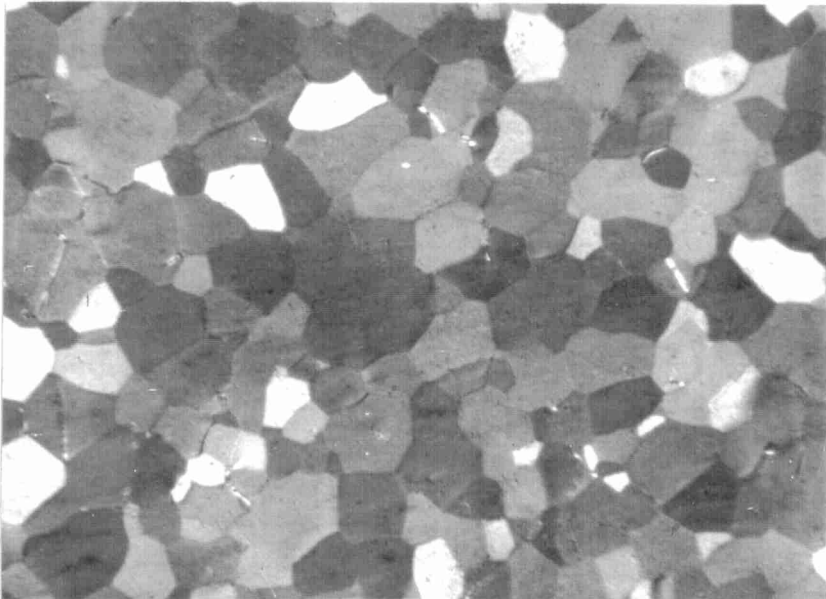


Fig. 3.9: Micrografía de una muestra de $\text{ZrAl-}^{235}\text{U}$ recristalizada (983 K, 2 h). (x500).

3.2 Facilidad de irradiación para altas temperaturas en el reactor CNEA-RA3

3.2.1 El reactor CNEA-RA3

El reactor CNEA-RA3 es un reactor de pileta abierta, con elementos combustibles de uranio enriquecido al 90% de ^{235}U , con reflector de grafito, moderado y refrigerado con agua desmineralizada. Fue concebido como reactor experimental y productor de radioisótopos en escala comercial [178].

El núcleo de este reactor, que puede adoptar diferentes configuraciones, básicamente está formado por los elementos combustibles (EC), las barras de control y seguridad, los reflectores de grafito y las cajas portamuestras, dispuestos en una grilla rectangular con 10 x 8 posiciones. El esquema presentado en la Fig. 3.10, muestra la configuración 150 del núcleo del CNEA-RA3, cuando se midió la primera cinética de crecimiento por irradiación en circonio dopado con ^{235}U a 618 K:

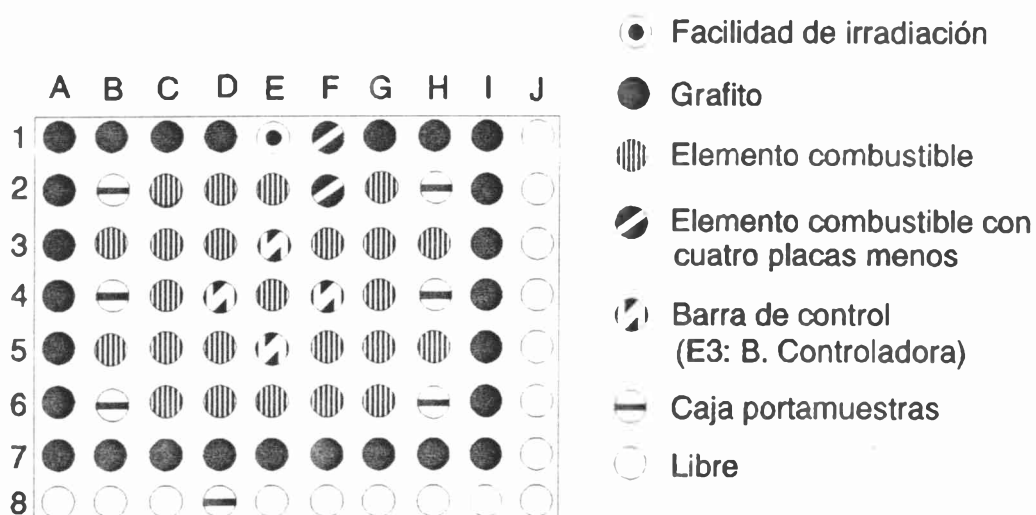


Fig. 3.10: Configuración 150 del núcleo del CNEA-RA3.

La grilla, así como la estructura metálica de los EC y las cajas de irradiación están construidas de aluminio. El agua refrigerante y moderadora de neutrones circula a través del núcleo. La altura de la columna de agua sobre la parte superior de los EC, 10 m, evita que la radiación llegue a la superficie actuando como protección biológica. El recipiente del reactor, de forma cilíndrica -desde la base hasta la altura de 4,30 m tiene un diámetro de 3,02 m, y a partir de esta altura hasta la superficie, 3,34 m-, es de acero inoxidable y está circundado por una estructura de hormigón que actúa como blindaje.

Hasta diciembre de 1987, la potencia térmica nominal del CNEA-RA3 era de 4 MW, pero debido a la escasez de EC de recambio, funcionaba con una potencia máxima de 2,8 MW. El flujo térmico medio en el núcleo era de $0,82 \times 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ para una potencia de 1 MW. Con detectores de neutrones rápidos de Fe, Al y Ni, se estimó un flujo de $2 \times 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ($E > 1 \text{ MeV}$) [179].

El ciclo de funcionamiento de este reactor es de siete días: cinco días y medio a plena potencia y, en el tiempo restante, con el reactor apagado, se realizan las tareas de mantenimiento.

La instalación de la facilidad de altas temperaturas en este reactor, está condicionada a las comodidades que ofrece la infraestructura edilicia del CNEA-RA3. En este sentido, el panel de control se instala en la sala de comandos del reactor, o consola, y, para la evacuación e inyección de gases, se utiliza el panel de control de un criostato ubicado en la denominada "sala de loops" (zona controlada). Las señales a medir y la alimentación del horno se transfieren por medio de conductores de aproximadamente 30 m de longitud, desde la boca del tanque del reactor hasta el panel de control, y el sistema de presurización y evacuación de gases requiere un caño de cobre de 3 m de largo. En la Fig. 3.11 se muestra un sector de las instalaciones del CNEA-RA3, en donde se indica la ubicación de la facilidad de irradiación, el pasaje de las líneas de alimentación del horno y de las señales, así como las líneas de

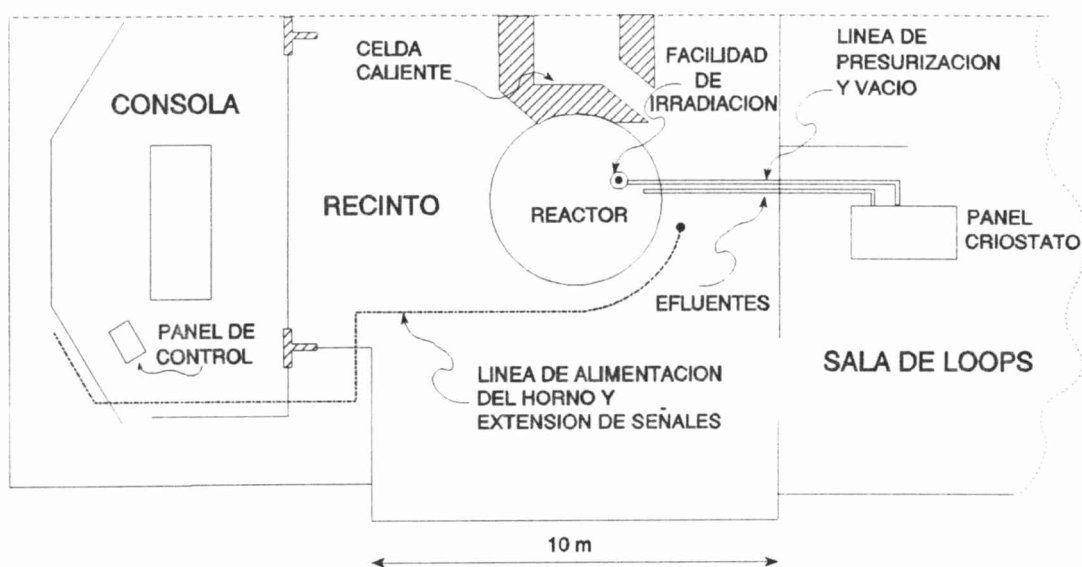


Fig. 3.11: Esquema de un sector de las instalaciones del CNEA-RA3.

presurización y evacuación de gases. Esta última se complementa con una extensión de PVC para los efluentes, también de 3 m de largo, hacia las toberas del reactor que están vinculadas con el circuito de ventilación activa.

3.2.2 Facilidad de irradiación a altas temperaturas en el CNEA-RA3

3.2.2.1 Criterios de diseño

Como se mencionó en 2.5.2, una de las partes de este trabajo consistió en la instalación y puesta a punto de la facilidad de irradiación a altas temperaturas en el reactor CNEA-RA3. En su concepción se tuvo en cuenta que la misma fuera suficientemente versátil como para poder realizar otros tipos de experimentos, además de mediciones de cinéticas de crecimiento *in situ*, como la que se describirá posteriormente. Por otra parte, para su diseño [180] se consideraron las siguientes requisitos:

-Para las experiencias de daño por radiación, en general, conviene un flujo rápido ($E > 1$ MeV) máximo, por lo que es necesario que el material a irradiar esté lo más próximo posible a los EC, de modo que sea mínima la moderación de neutrones de fisión. En particular, para las experiencias con material dopado con ^{235}U , también se requiere que el flujo térmico sea importante. Entonces, el receptáculo o *tubo de irradiación*, en donde se colocará el material en estudio, debe estar ubicado en el núcleo del reactor y en un lugar donde la moderación producida por el agua conduzca a una relación entre el flujo rápido y térmico próxima a la unidad. Este requisito requiere que la longitud de la facilidad supere los 10 m, según lo expuesto en 3.2.1.

-La dimensiones de la facilidad se deben ajustar a las características del reactor ya que cualquier elemento que se introduce en el núcleo provoca una modificación de la reactividad del reactor asociada, principalmente, con el volumen de agua que desaloja. Una disminución en la moderación de neutrones conduce a una disminución de reactividad.

-Los materiales constitutivos de la facilidad así como los de los sistemas de medición y control que se alojan dentro de ella deben ser resistentes a la radiación neutrónica y soportar las temperaturas de trabajo sin que se produzcan cambios apreciables en sus propiedades. En la selección de estos materiales se debe considerar que los mismos no sean grandes absorbedores de neutrones con el fin de no disminuir la reactividad del reactor y, además, la posibilidad de su activación por la radiación neutrónica, condiciona la elección a materiales que contengan elementos cuyos isótopos productos del decaimiento radioactivo tengan un corto

período de semidesintegración. De esta manera, se podrá manipular la facilidad después de un lapso de tiempo razonable de finalizado el experimento, disminuyendo así el riesgo radiológico.

Otro aspecto importante respecto de la elección del material del tubo de irradiación, lo constituye el hecho de que el agua del reactor no debe ser contaminada ni alterados los procesos por los cuales se la purifica. Por lo tanto, se deben descartar materiales cuyos componentes aleantes sean Cu, Ag, Cd, Pb, Fe, Si y Hg, así como otros elementos que los origine por acción de la radiación (por ej. $^{180}\text{Hg}_{80}$ producido a partir del $^{179}\text{Au}_{79}$).

El material más apropiado para la construcción del tubo de irradiación es el aluminio, ya que cumple con la mayor parte de los requisitos exigidos. Se eligen aleaciones de aluminio que sean relativamente duras y que permitan el maquinado, que posean un contenido de Cu menor que el 5% y que la suma de los contenidos de Fe y Si no supere el 1% y que admitan soldaduras resistentes.

-Para medir deformaciones producidas durante el transcurso de la irradiación, se requiere que los elementos sensores estén vinculados al espécimen a estudiar, y que éstos puedan ser introducidos y extraídos de la facilidad sin necesidad de desmontarla.

-Las dimensiones de los dispositivos de medición y control deben adaptarse al espacio limitado de la facilidad teniendo en cuenta la variación de flujo con la altura, de modo de conseguir una distribución de flujo uniforme a lo largo del espécimen a irradiar.

-Es necesaria una gran precisión en el control de la temperatura de trabajo, ya que los procesos físicos que intervienen dependen notoriamente tanto de la temperatura en sí como de sus variaciones. Para lograr tal precisión un método adecuado es el calefaccionado con resistencia eléctrica. La construcción de un horno de respuesta rápida (baja inercia) acarrea ciertos inconvenientes técnicos, pero constituye un medio óptimo de regulación de la temperatura.

-Al irradiar materiales en el CNEA-RA3 se genera un calentamiento considerable debido a su interacción con la radiación γ ; esto trae como consecuencia que se establezca un límite inferior de la temperatura de irradiación y que, para irradiaciones a temperaturas mayores a dicho límite, se deban extremar las condiciones de disipación. La utilización de fluidos adecuados, preferiblemente gases inertes, dentro de la facilidad favorece a la misma.

-La facilidad de irradiación, entonces, debe ser un recinto cerrado y estanco, en donde

el gas, que cumplirá la doble función de contribuir a la extracción de calor y de impedir la entrada de agua que se introduciría como consecuencia de una perforación accidental -provocando una variación de la reactividad que pondría supercrítico al reactor-, se mantiene a una presión predeterminada. Se utilizarán gases inertes, He, Ar o N, y de alta pureza, ya que las impurezas que pueda contener un gas puede producir inestabilidades frente a la radiación, provocando la activación del mismo y la consecuente contaminación.

-La facilidad deberá mantener una presión determinada del gas de transferencia térmica, por lo que debe poseer circuitos de evacuación e inyección de gases y válvulas de seguridad. El control permanente de la presión, las alarmas y las válvulas de escape son imprescindibles, aún considerando remotas las posibilidades de rotura violenta.

-Finalmente, el control externo de los dispositivos de medición, de la temperatura de irradiación y de la presión del gas de transferencia térmica, así como la adquisición de la información del comportamiento del espécimen, requieren que la facilidad posea salidas estancas al exterior para los conductores de las diferentes señales.

La facilidad de irradiación que se instaló en el CNEA-RA3 se construyó siguiendo todos los requisitos mencionados, utilizando dos tubos paralelos interconectados lateralmente (distancia de desplazamiento entre los ejes de ambos tubos = 40 cm) con el objeto de conformar el denominado "codo biológico", es decir, un bloqueo para la radiación proveniente del núcleo, que es moderada por la columna de agua de ~ 6 m de altura -en caso contrario, en un único tubo encontraría una vía no blindada para llegar a la superficie-. De esta manera es posible operar la facilidad desde la boca del reactor sin riesgo radiológico.

El material estructural de la facilidad es una aleación de aluminio designada IRAM - AlMgSi (Mn)(Ti)(Cr), provisto por CAMEA (CAMEA - AGS - T 88), cuya composición química nominal es:

Tabla 3.4: Composición química del material estructural de la facilidad.

| Composición (%p) | | | | | | | | | Impurezas (ppm) | |
|------------------|---------|------|------|---------|------|-----|------|---------|-----------------|----|
| Cu | Mg | Mn | Cr | Si | Fe | Ti | Zr | Al | B | Cd |
| ≤0,1 | 0,4-0,9 | ≤0,3 | ≤0,1 | 0,2-0,7 | ≤0,5 | 0,2 | ≤0,1 | balance | 20 | 20 |

3.2.2.2 Armado de la facilidad

En la *Fig. 3.12* se muestra un esquema simplificado de la facilidad instalada en el CNEA-RA3. El tubo de irradiación o *parte baja* es de sección circular ($\varnothing_{\text{ext}} = 50,8$ mm, 1 mm de espesor de pared y 4 m de longitud) consta de dos soldaduras, una en el extremo inferior que la une con el cono inferior (base de la facilidad) que hará tope en la boquilla de una caja de agua "ad hoc", similar a la de los EC, ubicada en la posición de irradiación dentro del núcleo del reactor. La otra soldadura une el tubo de irradiación con una brida NW50, que permite conectar a la parte baja con la *parte alta*, a través de dos "Te"-3xNW50 unidas consecutivamente con sus respectivas abrazaderas, O'rings y aros de centrado. La "Te" inferior permite la prolongación de los conductores del horno y de sus tres termocuplas hacia la salida exterior de la facilidad, mientras que la otra "Te" tiene la doble función de ser el acceso, por su boca superior, del dispositivo de medición y del horno, y de permitir el conexionado de la señal del sensor de medida de deformación y de una termocupla en la probeta. La boca de acceso de esta parte baja posee una tapa, de acero inoxidable, que cierra herméticamente con O'ring y aro de centrado NW50.

Todas las uniones efectuadas en las distintas partes de la facilidad se realizaron según un procedimiento especial de soldadura por el método TIG (Tungsten Inert Gas) [181], utilizando como material de aporte el alambre ER-5356 de composición similar a la del material base.

En el armado de la facilidad se utilizaron abrazaderas de aluminio de tipo comercial. A aquéllas que quedan sumergidas, se les reemplazaron el sistema de cierre, que normalmente es de hierro, por piezas de acero inoxidable.

La parte alta es un tubo de sección rectangular (40 mm x 90 mm, 2,5 mm de espesor de pared y 6 m de longitud) donde se alojan los cables que conducen al exterior todas las señales (deformación, temperatura y alimentación del horno) y conecta la facilidad con el sistema de presurización. Esta parte había sido construida para una facilidad de irradiación concebida para efectuar estudios en materiales de uso nuclear utilizando el calentamiento *y* como forma de obtener la temperatura de trabajo [182], por lo que fue necesario realizar algunas modificaciones para adaptarla a las nuevas necesidades. En este sentido, en la base se le soldó una placa del mismo material de la facilidad y, en una de las caras de 40 mm de ancho, se conservaron dos salidas selladas con conectores de acero inoxidable del anterior diseño, mientras que las otras dos se adaptaron para acoplarlas a los conectores VacUUbrand

NW40-40 (cilindro de aluminio hueco de 7 mm de pared y 130 mm de largo) que la comunican con la parte baja. En esta zona también se tuvo que anular un quinto orificio lateral soldando otra placa similar a la de la base.

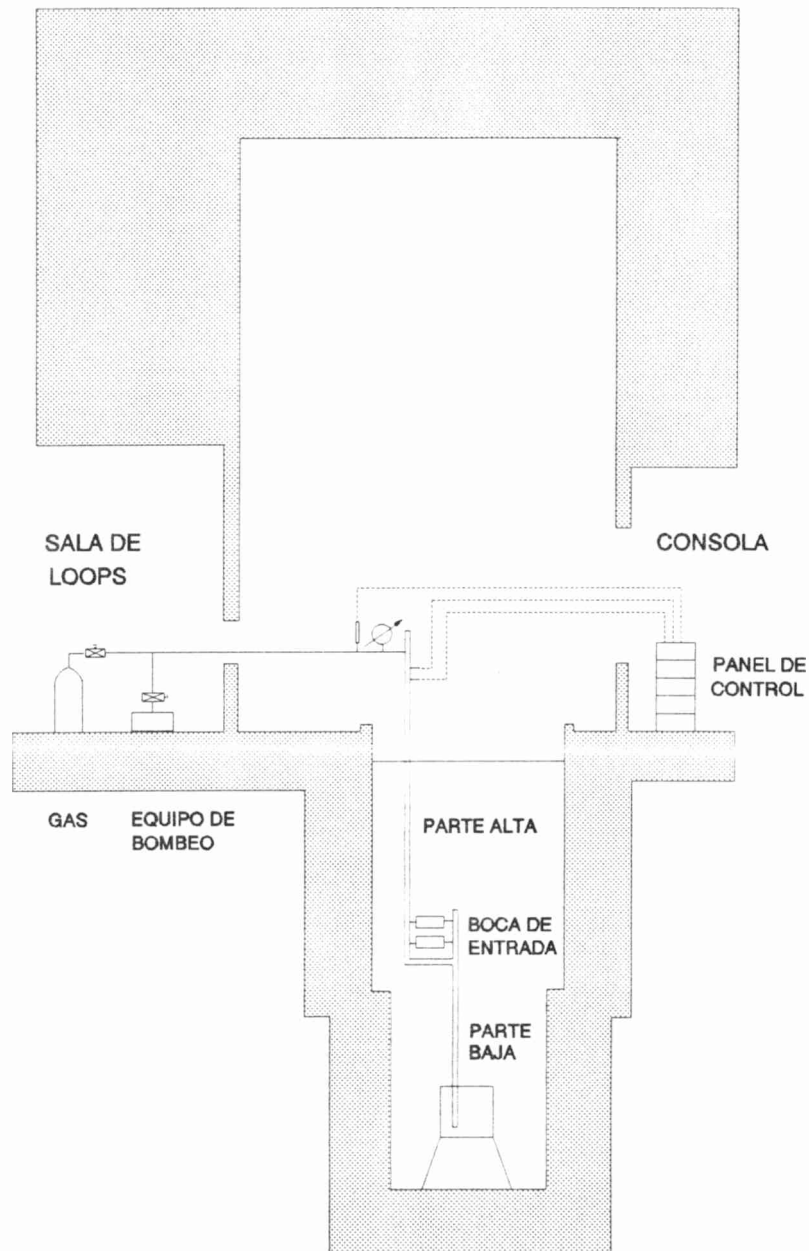


Fig. 3.12: Esquema simplificado de la facilidad de irradiación instalada en el CNEA-RA3.

El extremo superior de la parte alta tiene soldado una brida en la que apoya la tapa soporte de la facilidad, construida en aluminio y cuyo cierre hermético se logra con un O'ring ($\varnothing = 120$ mm) y ocho tornillos pasantes de bronce. Lateralmente, también en este caso se conservaron dos salidas selladas, similares a las ya mencionadas, del diseño anterior, mientras que a las tres restantes se las reemplazaron por bridas de acople, diseñadas y construidas especialmente. Estas bridas, de aluminio, son de doble asiento sobre sus caras

paralelas extremas. En una de ellas el O'ring ($\varnothing_{ext} = 34 \text{ mm}$) es comprimido por un asiento cónico a 45° y asienta en la pared lateral de la parte alta ajustada contra él por medio de un cierre pasante que va enroscado en el diámetro interno de la brida. En la otra cara el cierre se realiza mediante un O'ring ($\varnothing_{ext} = 50 \text{ mm}$) fijado por su correspondiente aro de centrado. Esta cara se maquinó como brida NW40 para asentar los diferentes conectores cuyas funciones y características se detallan a continuación:

-el conector superior, VacUUbrand NW40-40, que fue modificado agregándole dos salidas laterales para adosarle respectivamente un cabezal de vacío (Veeco DV-1M) y un manómetro de dos contactos regulables, es la entrada/salida del gas de transferencia térmica. Este conector se acopla por una de sus caras a la parte alta y por la otra a un adaptador construido en bronce NW20-32, la salida NW20 a su vez, se acopla al caño de bronce que conduce al sistema de presurización.

-El segundo conector es una "Te"-3xNW40, en dos de sus tres caras asientan tapas ciegas NW40 adaptadas con fichas de conexión eléctrica para la alimentación del horno y para la señal del sensor de deformación, respectivamente. La tercera permite el acople a la parte alta de la facilidad.

-Finalmente, el tercer conector es un acople, también de aluminio, NW50-32. En la cara NW50 asienta una tapa ciega NW50 adaptada para las salidas de la información de las cuatro termocuplas y la otra se acopla a la parte alta.

En todos los casos, los cierres herméticos se logran con O'rings, aros de centrados *ad hoc* y abrazaderas adecuadas. En la *Fig. C.1.2* del **Apéndice C** se muestra una fotografía del extremo superior de la facilidad en la que se pueden visualizar estos tres conectores.

Debido a las diversas soldaduras y a los diferentes acoples que conforman la facilidad, durante el armado se realizaron sucesivas pruebas de detección de pérdidas con un equipo Mass Spectrometer Leak Detector Veeco, Modelo MS-9, de las partes baja y alta y de los diferentes conectores "modificados" por separado, mejorando los sellados hasta conseguir un sistema estanco. Finalmente, después de su limpieza, se realizó un exhaustivo control de estanqueidad a la facilidad ya armada [183] mediante nuevas pruebas en alto vacío (10^{-5} mm de Hg) y con presión de algunas atmósferas, que arrojaron resultados satisfactorios.

El sistema de sujeción entre la parte alta y la parte baja de la facilidad consiste de un par de placas de aluminio trapezoidales -soldadas a las caras laterales de mayor ancho en el

extremo inferior de la parte alta-, de un travesaño de sección rectangular del mismo material que la parte alta, al que se le practicaron ranuras para su posicionado y ajuste con bulones de acero inoxidable, y de una abrazadera constituida de dos sectores, uno que se fija a presión al extremo del travesaño y el complementario, sujeta a la parte baja por medio de tornillos pasantes.

En el extremo inferior de las placas trapezoidales se practicaron cuatro orificios para fijar, con bulones pasantes, los contrapesos necesarios para la estabilidad de la facilidad dentro de la pileta del reactor. Con el mismo material utilizado para la construcción de la parte alta, se fabricaron dos cajas que se llenaron con plomo fundido. Luego, a cada una de ellas se les soldó, en vacío dinámico (10^{-2} mm de Hg), una tapa también de aluminio. Se obtuvieron dos contrapesos de 5 kg cada uno.

Se determinó el centro de empuje y se calculó un peso total de la facilidad de 20 kg (caños de aluminio ~ 13,80 kg, conectores de inoxidable: 1,5 kg, abrazaderas y tapas ~ 2,40 kg y accesorios ~ 2,30 kg) y, dado que se estimó el empuje de la parte sumergida en 25 kg, se encontró que era necesario un lastre de 5 kg para que la facilidad no flote y para que baje su centro de gravedad con el objeto de aumentar la estabilidad del conjunto.

En la *Fig. 3.14* se muestra esquemáticamente la facilidad armada. En las siguientes secciones se describirán el horno eléctrico y el dispositivo de medición que fueron diseñados, contruidos e instalados en esta facilidad para la obtención de la cinética de crecimiento por irradiación en circonio dopado con ^{235}U a 618 K.

3.2.2.3 Horno y control de la temperatura

Un horno eléctrico de respuesta rápida entrega el complemento energético para el caso de necesitarse temperaturas mayores que las del equilibrio entre el calentamiento γ del conjunto y la disipación radial a través de la pared de la facilidad.

Con el objeto de poder trabajar a temperaturas lo más bajas posibles se minimizó la masa de todos los componentes empleados.

Este horno se construyó a partir de un cilindro de aluminio que fue maquinado en forma de tubo ($\varnothing_{\text{ext}} = 47$ mm, 7 mm de espesor de pared, 300 mm de largo) al que se le torneó un ranurado espiralado doble de paso de 16 mm, para bobinar la resistencia calefactora. Se hace un bobinado doble para evitar inducciones magnéticas y, además, para tener la posibilidad de

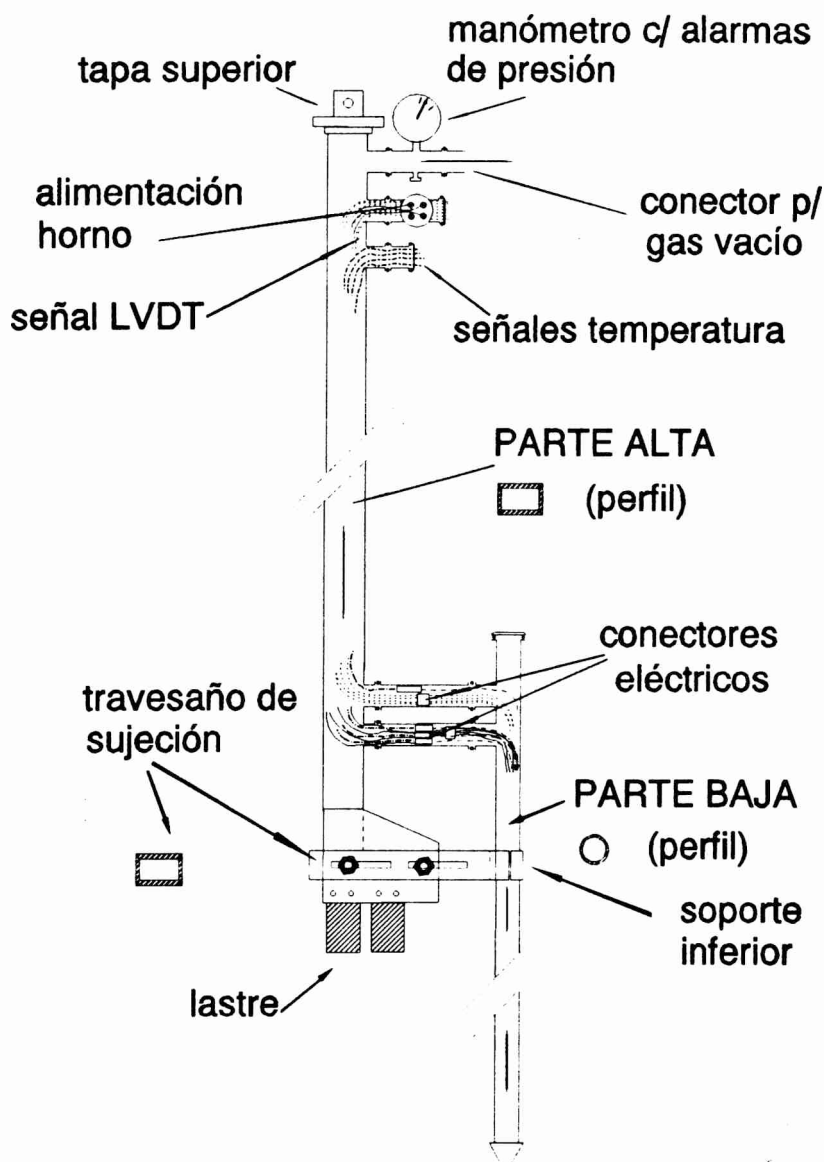


Fig. 3.13: Esquema de la facilidad armada.

realizar desde el exterior conexiones en serie o paralelo y poder continuar con el suministro de calor en el caso de deterioro de alguno de los calefactores. Se utilizaron dos conductores de calefactor compacto de Ni-Cr con aislante mineral de OMg⁷, envainados en AISI 316 (11,5 Ω m⁻¹ de resistividad eléctrica, $\varnothing_{ext} = 1,5$ mm y 5,5 m de largo) para que, con un voltaje de 220 V, el horno tenga una potencia de 1530 W, es decir, disipe 51 W cm⁻¹, circulando 3,6 A por cada tramo. La longitud del horno, asegura una distribución homogénea de la temperatura a lo largo de más de 10 cm. Debajo del calefactor se posicionaron, en ranuras *ad hoc* a 120°, tres termocuplas compactas de Chromel-Alumel (tipo K, $\varnothing_{ext} = 0,5$ mm). La termocupla central

⁷ El OMg mantiene sus propiedades aislantes bajo irradiación y el conjunto resiste grandes dosis sin deteriorarse.

se utiliza para la regulación y las dos de los extremos, separadas entre si 10 cm, permiten determinar el gradiente de temperatura a lo largo del horno.

Después de efectuar el bobinado, ver *Fig. 3.14.1*, sobre él se hace un metalizado por proyección de aluminio con el objeto de conseguir el máximo contacto térmico entre todos los elementos, que luego se tornea hasta un diámetro exterior final que deje un espacio de 1 mm entre el horno y la pared de la facilidad, *Fig. 3.14.2*. Este *gap* asegura un contacto térmico mínimo, sin que haya convección del gas de transferencia. Entonces la disipación térmica es radial y la temperatura máxima se logra mediante el gas de transferencia utilizado [9].

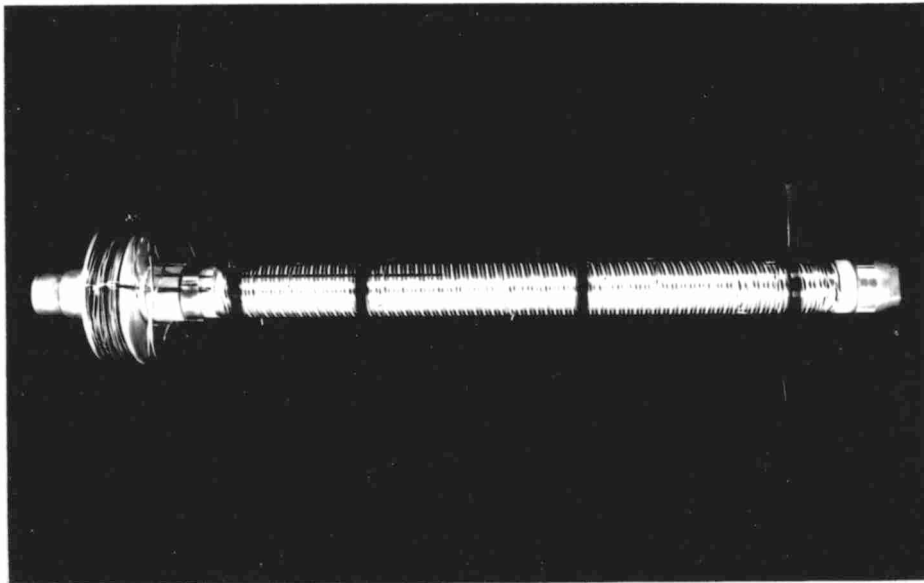


Fig. 3.14.1: Horno con su bobinado.

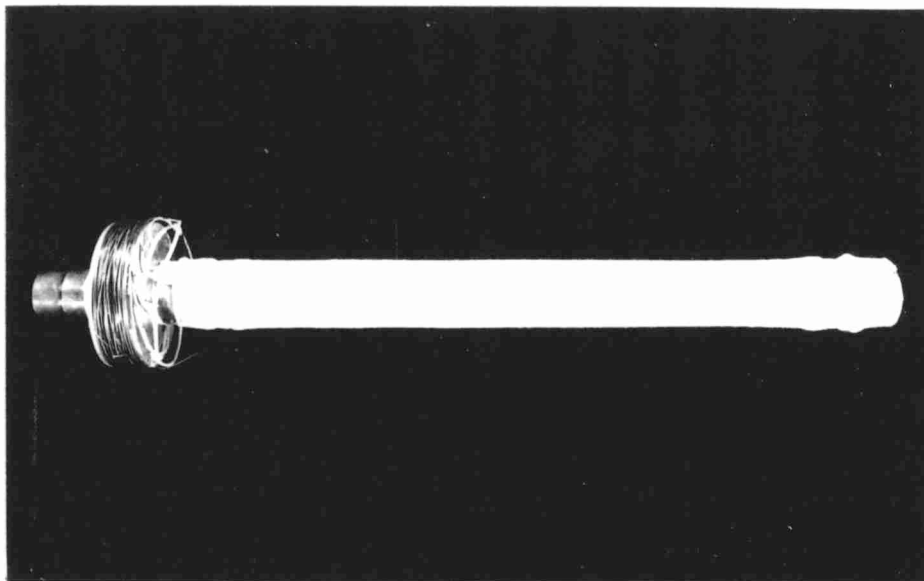


Fig. 3.14.1: Horno con la proyección de aluminio.

Una vez construido el horno se procedió a soldar cada elemento calefactor con un conductor de cobre electrolítico, también compacto (aislante mineral de OMg, vaina AISI 316, $\varnothing_{\text{ext}} = 1,5 \text{ mm}$ y 5 m de longitud) mediante conectores de 5 mm de diámetro.

Para instalar este horno en el tubo de irradiación o parte baja de la facilidad se utilizó un caño de aluminio ($\varnothing_{\text{ext}} = 42 \text{ mm}$, 4 mm de espesor de pared y 3,6 m de longitud), ranurado convenientemente para apoyar las tres termocuplas y para acomodar los cuatro conectores o uniones cable calefactor-conductor de cobre. Este *caño sostenedor del horno*, se une con el horno a presión, mediante una pieza de acople construida teniendo en cuenta la distribución de las termocuplas y de los conectores mencionados. En su extremo superior se le soldó un aro de aluminio que encastra en un asiento *ad hoc* maquinado en la boca superior de la "Te" inferior de la parte baja de la facilidad. Una vez que se sujetó el horno con el caño sostenedor, se completó el armado asegurando el conjunto con flejes externos de aluminio adecuados.

Los cuatro extremos de los conductores compactos se soldaron a una ficha de cuatro pines que se conecta en la salida lateral de la "Te" inferior de la parte baja, a la prolongación de la alimentación del horno, que se realiza a lo largo de la parte alta de la facilidad con un cable tipo tetrapolar envainado en PVC (5 m de largo). En esta salida lateral, también se conectan las tres termocuplas del horno con tres pedazos de cable compensado enmallado (para evitar señales espúreas) de 5 m de largo cada uno, mediante fichas Merlin tipo K (fichas compensadas Chromel-Alumel miniatura).

La conexión del extremo superior de la prolongación de la alimentación del horno, se realiza por medio de una ficha octal, utilizando cuatro de sus ocho pines. Esta ficha se soldó adecuadamente a una tapa ciega NW40, y permite la alimentación del horno desde el exterior, a través de una prolongación *ad hoc* de 30 m.

Los cables compensados que van alojados en la parte alta de la facilidad, fueron pasados cuidadosamente a través de una tapa ciega NW50 preparada con una ficha de pines pasantes, asegurando la estanqueidad estañando y sellando todo el conjunto con una resina epoxi. De este modo se puede efectuar la conexión, mediante fichas compensadas de Chromel-Alumel, con la prolongación externa de 30 m de cable compensado que conduce al panel de control.

La temperatura del horno se controla con un regulador diferencial de acción proporcional e integral EUROTHERM, que regula por medio de un tren de ondas. La tensión máxima que entrega es de 220 V y mantiene inyecciones de corriente de intensidad y duración que

dependen de la temperatura de trabajo. Como ya se mencionó, se utilizó la termocupla central del horno para comandar la regulación, conectando al instrumento el extremo del cable compensado correspondiente a ella. Eventualmente, esta termocupla puede ser reemplazada por cualquiera de las otras dos. Previo a la irradiación, se hicieron pruebas en las mismas condiciones de disipación que tiene el horno dentro de la facilidad -sumergida en la pileta del reactor-, presurizándola alternativamente con 600 g cm^{-2} de He (g) y N₂ (g) de alta pureza:

Tabla 3.5: Respuesta del horno a los gases de transferencia térmica.

| Gas | Termocupla central | Termocupla superior | Termocupla inferior |
|----------------|--------------------|---------------------|---------------------|
| He | 113 °C (386 K) | 113,0 °C (386,0 K) | 112 °C (385 K) |
| N ₂ | 238 °C (511 K) | 237,5 °C (510,5 K) | 226 °C (499 K) |

Para una misma potencia del horno, su respuesta con los dos gases utilizados, se corresponde con las características térmicas de los mismos: el N₂ tiene menor conductividad térmica que el He, entonces el N₂ es peor disipador de calor que el He.

Pruebas realizadas en configuraciones similares, con el reactor en funcionamiento (calentamiento γ) a máxima potencia [180], registraron una temperatura máxima de 180 °C (453 K) para He (g) como gas de transferencia térmica y un aumento fuera de los valores de seguridad para N₂ (g) de alta pureza. Por lo cual, hay una temperatura mínima de trabajo con cada gas utilizado dada por el calentamiento γ del horno y del dispositivo de medición junto con la probeta.

3.2.2.4 Dispositivo de medición *in situ* de la cinética de crecimiento por irradiación en circonio dopado con ²³⁵U en el CNEA-RA3.

Como se mencionó en 2.5.1 el método para medir la cinética de crecimiento desde el inicio de la irradiación, consiste en medir la flexión de la probeta estudiada, que se produce como consecuencia de su fabricación, 3.1, y de su interacción con la radiación neutrónica. En este sentido, el crecimiento relativo de los componentes del par debido a la irradiación, provoca el curvado de la probeta y, a partir de la amplitud de esta curvatura, se obtiene una medida indirecta del crecimiento real del material.

El dispositivo de medición es el vínculo entre la probeta y el sensor de deformación.

La amplitud de la curvatura, o *flecha*, se detecta con un transductor diferencial de

desplazamiento de respuesta lineal (LVDT), resistente a la radiación neutrónica, fabricado especialmente por la firma Schaevitz (USA) en dimensiones pequeñas, en concordancia con el espacio disponible en el reactor.

El LVDT es el elemento de inductancia mutua más simple. Produce una salida eléctrica proporcional al desplazamiento de un núcleo móvil. Cuando se aplica una excitación de corriente alterna al bobinado primario se inducen voltajes sobre otros dos bobinados secundarios idénticos, espaciados simétricamente respecto del primario, que están conectados externamente en serie-oposición, por lo que, sobre éstos últimos se inducen voltajes opuestos en fase. La diferencia entre estos voltajes es el voltaje neto de salida del LVDT. El movimiento axial del núcleo magnético dentro del LVDT varía la inductancia mutua de cada secundario respecto del primario, lo que determina el voltaje inducido desde el primario a cada secundario.

Si el núcleo está centrado entre los bobinados secundarios, el voltaje inducido en cada secundario es idéntico y desfasado en 180° , de modo que no hay salida neta. Si el núcleo se mueve desde su posición central, la inductancia del primario con uno de los secundarios será mayor que con la del otro, y aparecerá un voltaje diferencial a través de los secundarios en serie. Para desplazamientos lejos del centro y dentro del rango de operación -que normalmente es de $\pm 2,5$ mm-, este voltaje es esencialmente una función lineal del desplazamiento.

Como no hay contacto físico entre el núcleo móvil y la bobina, las componentes mecánicas del LVDT no se desgastan ni deterioran, y esta ausencia de fricción da una resolución verdaderamente infinita y nada de histéresis. La pequeña masa del núcleo y la carencia fricción aumenta sus capacidades de respuesta para mediciones dinámicas [184].

Los bobinados están cubiertos por un aislante mineral (OMg) dentro de un alojamiento de acero inoxidable; el voltaje de alterna de salida del LVDT puede ser demodulado en un voltaje continuo. El demodulador es sensible a la diferencia de fase entre la excitación y la salida.

En el presente trabajo se utilizó un LVDT, tipo 050XS-2211, resistente a dosis neutrónicas de hasta 3×10^{20} n cm^{-2} y capaz de operar hasta temperaturas de 500 °C (773 K) sin perder sus propiedades magnéticas, por lo que el núcleo ($\varnothing_{\text{ext}} = 2,74$ mm) está fabricado en 2V-Permendur (49Fe-49Co-2V). El cuerpo del LVDT mide $16,5$ mm de largo, $\varnothing_{\text{ext}} = 12,7$ mm y $\varnothing_{\text{int}} = 3,175$ mm y sus salidas eléctricas laterales, son conductores envainados en AISI

304 con aislante mineral (OMg), de tipo compacto, de 4,5 m de longitud. Los alambres de carga son de níquel sólido 28AWG.

En la *Fig. 3.15* se muestra una fotografía del dispositivo de medición, en una etapa de su armado, con la probeta y el LVDT. El dispositivo consta de un cuerpo o soporte que vincula el receptáculo superior, donde se aloja el cuerpo del LVDT, con una base donde se ajusta la probeta por su extremo inferior. El núcleo del LVDT rosca en un eje construido en un material no magnético, AISI 316, que se sujeta rigidamente al extremo superior de la probeta mediante una tuerca complementaria.

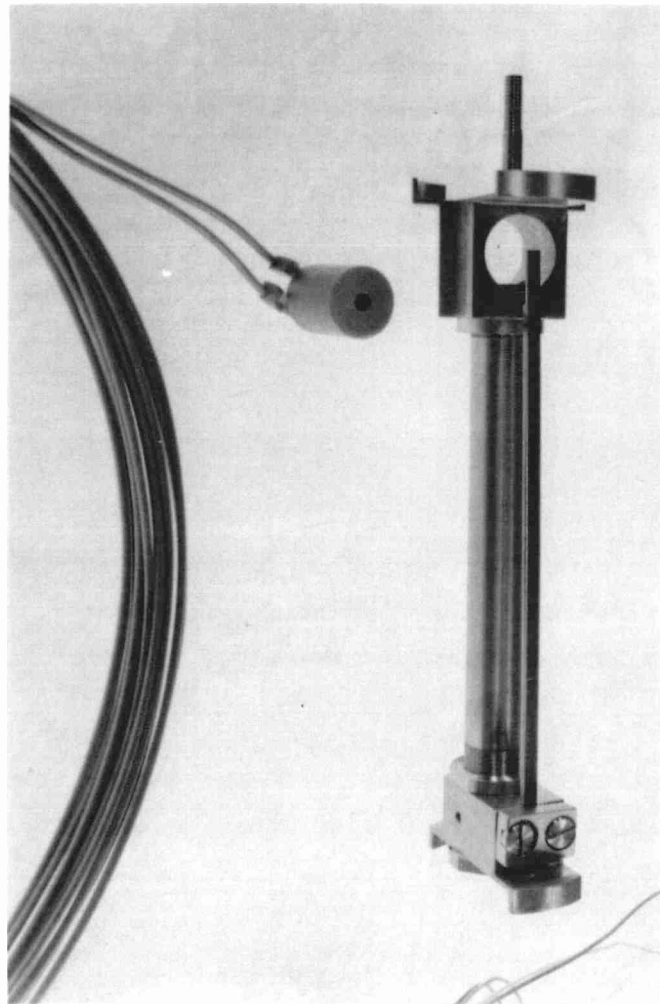


Fig. 3.15: Dispositivo de medición de crecimiento por irradiación en el CNEA-RA3.

Un sistema de roscado de paso fino permite asegurar en forma simple el centrado del núcleo móvil dentro del LVDT. El dispositivo se construyó totalmente en Zircaloy, con la misma textura e igual tratamiento térmico que la probeta, con el objeto de evitar dilataciones relativas entre el soporte y la probeta que perjudiquen el desplazamiento del núcleo móvil durante la

experiencia.

En el cuerpo del dispositivo se practicaron dos orificios para colocar, enfrentadas a la probeta en su punto medio y a 3,5 cm sobre éste, dos hojuelas de Co de diferente diámetro que dan la información del flujo de neutrones térmicos y permiten efectuar la medida de dosis integrada después de la irradiación.

La parte superior del dispositivo tiene un apéndice en el que se rosca el extremo inferior del sistema de sostén del dispositivo dentro de la facilidad. Este consiste en un alambre de aluminio ($\varnothing_{\text{ext}} = 3 \text{ mm}$ y 4 m de longitud) que por sus extremos tiene soldado dos piezas de aluminio ($\varnothing_{\text{ext}} = 10 \text{ mm}$); la inferior rosca en el dispositivo y la superior en una pieza de dimensiones similares, construida en acero inoxidable, que se soldó en la tapa ciega NW50 que conforma el cierre de la parte baja o tubo de irradiación por su boca de acceso.

El dispositivo se completa con una termocupla, similar a las utilizadas en el horno, cuyo extremo está en contacto con la probeta y sus terminales se conectan con el cable compensado correspondiente por medio de una ficha Merlin tipo K.

Los conductores del LVDT y la termocupla de la probeta, convenientemente sujetos, son guiados por el sostén del dispositivo hasta la salida lateral de la "Te" superior de la parte baja. Los terminales del cable del LVDT se soldaron a una ficha de cuatro pines que se conecta con el conductor apropiado, cable enmallado bifilar, que lleva la señal del LVDT, por el interior de la parte alta, al exterior. Los terminales de este conductor, de 5 m de largo, se soldaron a cuatro pines de una ficha octal encastrada en una tapa NW40 que conforma el cierre lateral de la "Te"-3xNW40 ubicada en la parte superior de la facilidad, ver *Fig. 3.13*.

El procesamiento de la señal del LVDT que se produce por el desplazamiento del núcleo móvil, como consecuencia de la deformación de la probeta, se hace por medio de un demodulador o acondicionador de señal (CAS). Este equipo realiza varias funciones. Provee la entrada o excitación al transductor. También provee cualquier ajuste de impedancia o compensación de transmisión necesaria para la salida de la señal del transductor. Una vez que la señal está ajustada apropiadamente, el CAS completa los requisitos para la amplificación o atenuación, demodulación y filtrado de la misma. Como sistema de lectura se utilizó un multímetro digital Hewlett-Packard (Modelo 3455 A), y dos registradores LINSEIS, permitieron obtener el comportamiento del espécimen en función del tiempo con diferente sensibilidad.

Se decidió utilizar el acondicionador de señal CAS 2500 RZ-LT, de la firma Schaevitz.

Después de analizar el comportamiento para la configuración eléctrica de trabajo (longitud de cables, blindaje, nivel de ruido, etc.) se hicieron los ajustes internos adecuados para lograr estabilidad y calidad de señal (fase, ganancia y cero). Con el método indicado por el fabricante se obtuvo un rango lineal de 4 mm verificado con un sistema mecánico micrométrico de medición con una resolución de 2 μm . La constante de calibración fue de 1,29 mV/ μm .

En la instalación del horno y del dispositivo de medición dentro de la facilidad, se tuvo especial atención en colocarlos de manera que el punto medio de la probeta coincida con el punto medio del horno y con el nivel medio la longitud activa del EC (NMEC), con el objeto de minimizar el gradiente axial del flujo neutrónico sobre ella. En la *Fig. 3.16* se muestra un esquema del tubo de irradiación o parte baja. Se indican las distancias respecto del tope de la facilidad con la boquilla de la caja de irradiación para lograr el correcto posicionado de la probeta.

3.2.2.5 Circuito de evacuación e inyección de gases

Como se mencionó en **3.2.1** se utilizó el "sistema de evacuación e inyección de gases" (SEIG) del criostato instalado en el CNEA-RA3, cuyo panel de control y comando se encuentra ubicado en la sala de loops.

Para poder realizar el conexionado de la facilidad con el SEIG se prepararon cuatro prolongaciones de caño de cobre ($\varnothing_{\text{ext}} = 3/8"$) apropiadas. A una de ellas de 1,80 m de largo se le soldaron en sus extremos bridas NW20 que asientan, respectivamente, en el conector para gas/vacío ubicado en la entrada de la facilidad (ver *Fig. 3.13*) y en la válvula **Vp** (principal). Ésta es una válvula de paso tipo bayoneta para vacío 2NW20 (marca Leybold) con la que se comanda manualmente la evacuación, presurización y aislación de la facilidad. A continuación, otra prolongación conecta **V1** (ver esquema del circuito de evacuación e inyección de gases en la *Fig.3.17*) con la parte de evacuación del SEIG, para la que se preparó una tercera prolongación de 1,5 m de largo, soldando en uno de sus extremos una brida de presión que se conecta al panel de control y comando del criostato y se activa abriendo la válvula **V1** (vacío 1). Por último, la cuarta prolongación, de 1,50 m de largo, permite la conexión de la parte de inyección del SEIG con la facilidad. Cuando se activa la válvula **Is** (aislación) del panel del criostato, esta prolongación permite la comunicación de un dosador de gases con la facilidad.

Los tres extremos de las tres últimas prolongaciones, convergen en una "Te"-3xNW10.

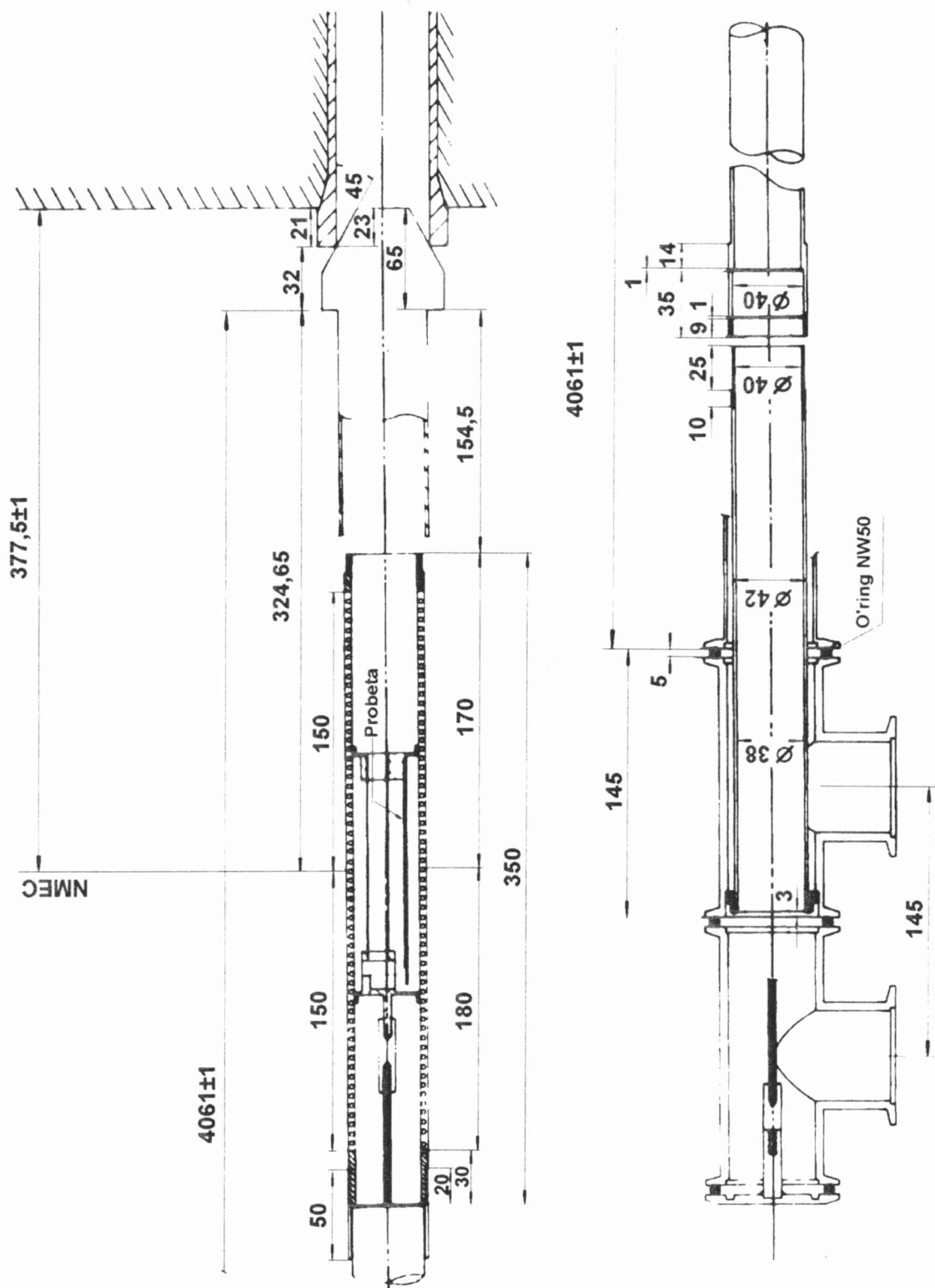


Fig. 3.16: Esquema de la parte baja de la facilidad de irradiación instalada en el CNEA-RA3.

Los cierres herméticos de todas estas conexiones consisten en aros de centrado, O'rings, bujes de retención fabricados en aluminio -como modificación de los cierres de vacío disponibles en cierres de presión- y abrazaderas NW10 y/o NW20, según el caso. Se realizaron chequeos de estanqueidad de todo el sistema hasta obtener un nivel de pérdida aceptable (100 g/cm^2 por día) en la facilidad de irradiación.

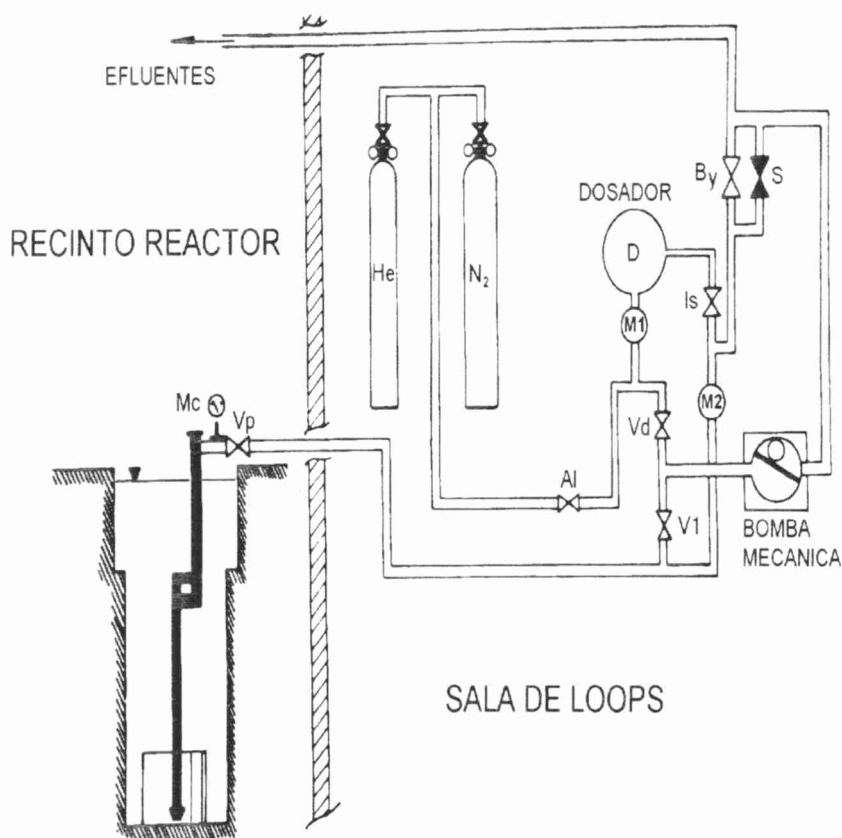


Fig. 3.17: Circuito de evacuación e inyección de gases.

El SEIG se alimenta con He(g) o con $\text{N}_2(\text{g})$ según la necesidad. Entonces, se acoplaron las salidas de los reservorios mediante manguera de presión a una "Te" construida en caño de cobre ($\varnothing_{\text{ext}} = 3/8"$), a la que se le conectó otra manguera de presión que, a su vez, se conecta en la entrada del panel de control. La válvula **AI** (alimentación) permite cargar el **dosador** a una presión prefijada, que se detecta con el manómetro **M1**.

A la salida de **efluentes** del SEIG, que se controla con la válvula **By**, se conectó una prolongación de caño flexible de PVC ($\varnothing_{\text{ext}} = 1"$ y 2 m de longitud) para guiar los gases irradiados al circuito de ventilación activa en los casos necesarios: cambios de gas durante y finalizada la irradiación.

El manovacuómetro **Mc** instalado en el extremo superior de la facilidad de irradiación, permite visualizar desde la consola del reactor, ver *Fig. 3.11*, cualquier modificación de presión en la facilidad. Posee dos contactos de alta y baja presión que producen señales luminosas en el panel de control del equipo, *Fig. 3.18*. Como la presión de trabajo debe superar la presión de la columna de agua de 10 m de altura ($\sim 1 \text{ kg/cm}^2$), los contactos se colocaron a 100 g/cm^2 y 3 kg/cm^2 por encima de la presión atmosférica. El límite superior se fijó después de verificar que la apertura de válvula de seguridad **S** se producía para ese valor de presión en la facilidad.

3.2.2.6 Panel de control

Para el control y adquisición permanente de la información durante el experimento se armó un panel de control (PC), transportable, que se instaló en la consola del reactor, *Fig. 3.11*. Todas las señales llegan a la consola por medio de sus respectivos conductores, convenientemente aislados, que fueron tendidos por una de las bandejas subterráneas *ad hoc* disponibles en el recinto del CNEA-RA3.

Se pasaron tramos, de 30 m de largo cada uno, de los tres tipos de cable alojados en la parte alta de la facilidad, junto con un cable para tierra y otro que lleva la señal de alta y baja presión. Este último, en la boca del reactor, se conecta al manovacuómetro **Mc** y en el PC a una alarma sonora y luminosa.

Los extremos de los cables compensados, correspondientes a las termocuplas superior e inferior del horno y a la probeta, fueron acondicionados como *juntas frías*, uniéndoles cables enmallados, en tramos de 2 m, cuyos extremos se conectan al PC de donde se lleva la información a los respectivos registradores. Extensiones en paralelo, comandas por una llave selectora "T" permiten una lectura puntual de la señal en el multímetro digital asociado.

El conductor correspondiente a la señal del transductor de desplazamiento se conecta en el demodulador "D", cuya salida se conecta al otro multímetro digital. Dos extensiones en paralelo permiten obtener el registro en función del tiempo con diferente sensibilidad.

En el panel de control también se instaló el circuito de alimentación y regulación del horno que es controlada por la termocupla central. En la *Fig. 3.18* se muestra un esquema del PC (panel de control).

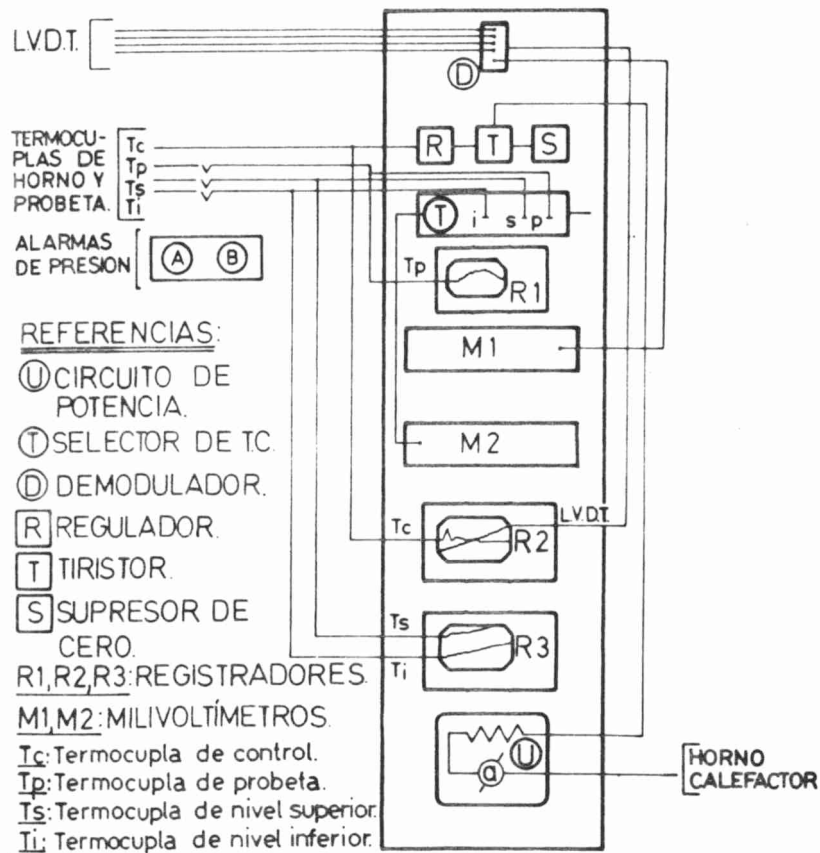


Fig. 3.18: Esquema del panel de control (PC) de la facilidad de irradiación instalada en el CNEA-RA3.

3.2.2.7 Operativo de colocación y sistema de sujeción de la facilidad en el núcleo del CNEA-RA3

Previo a la autorización de la instalación de la facilidad de irradiación por la autoridad regulatoria (CALIN⁸), fue necesario efectuar un procedimiento para el estudio de la variación de la reactividad del reactor [185].

En la posición designada para la ubicación de la facilidad en el núcleo del CNEA-RA3, E1, Fig. 3.10, había un grafito, que al ser extraído -en condiciones de reactor crítico a una potencia no mayor que 1 Mw- produjo una variación de -306 pcm equivalente a ϕ 40 (40 centavos de dólar). La colocación de la caja de irradiación produjo una variación de -14 pcm (ϕ 1,6) y la introducción de la facilidad en ella, -12 pcm (ϕ 1,4), con lo que la caja de irradiación junto con la facilidad implica una variación negativa de reactividad de ϕ 3. Esta variación resulta ser despreciable para la operación del reactor.

⁸Consejo Asesor de Licenciamiento de Instalaciones Nucleares.

Para la colocación de la facilidad en el núcleo del reactor se siguió el procedimiento RA3-8-23 [186]: se sostiene la facilidad con la grúa del reactor por su extremo superior, mientras un tensor, unido a la parte baja, permite controlar desde abajo las inclinaciones producidas por el empuje y el peso del tubo de irradiación. La altura de la facilidad, 11 m, requiere la altura máxima permitida por el techo del recinto. Una vez introducida en la pileta, la colocación en el núcleo la realiza el personal de operación del reactor.

Una vez que la facilidad se posicionó en el núcleo del reactor se procede a su fijación. Para ello se diseñó un sistema totalmente desmontable, que consiste en un soporte conformado en dos partes. Una de ellas, que se fija en el piso del recinto, consiste de un pie de hierro y una varilla roscada ($\varnothing_{\text{ext}} = 1"$, 1 m de largo) y la otra es un brazo construido en caño de sección rectangular de aluminio (40 mm x 90 mm) que, por medio de ranuras, bulones y tuercas apropiadas permite el posicionado y la sujeción de la facilidad.

En el **Apéndice C** se puede apreciar algunas fotografías de la facilidad en funcionamiento. La *Fig. C.1.1* muestra el soporte de fijación mencionado.

3.3 Facilidad de irradiación para altas temperaturas en el CNEA-RA1

3.3.1 El reactor CNEA-RA1

El reactor experimental CNEA-RA1 -primera realización en la Argentina en materia de construcción de reactores nucleares- en su versión original fue una copia fiel del reactor Argonauta (USA) y desde su primera puesta a crítico en 1958 ha sido modificado para satisfacer las necesidades surgidas durante su explotación. Entre ellas se destacan las destinadas a la producción de radioisótopos de vida corta, al análisis de activación, a las mediciones de secciones eficaces, al estudio de blindajes, al ensayo y calibración de detectores de neutrones, entre otras, y, en particular, en el área de la investigación en Ciencia de Materiales, a mediciones de endurecimiento por irradiación a bajas temperaturas y de cinéticas de crecimiento por irradiación *in situ* a altas y bajas temperaturas en las facilidades de irradiación instaladas por la Div. Daño por Radiación [165,9].

En sucesivas etapas se aumentó su potencia que originalmente era de 10 kw hasta llegar al valor actual de 40 kW, para lo que se modificó el diseño de los elementos combustibles (EC). Además, con el fin de facilitar el acceso al núcleo, se reemplazó la tapa superior del tanque por blindaje con agua.

Otras modificaciones posteriores del mecanismo de movimiento de barras y de la lógica

de control, condujeron a una mayor seguridad en la operación del reactor y a una mejor disponibilidad en su utilización.

El núcleo de tipo "tanque abierto", está alimentado por uranio enriquecido al 20% de ^{235}U . El reflector es de grafito y la refrigeración es por agua liviana. La profundidad del tanque o pileta es de 2,7 m, y la distancia entre el nivel superior del agua y la altura media de los EC es de 2,2 m.

Las grillas de aluminio que sostienen a los EC tienen forma de corona circular ($\varnothing_{\text{min}} = 152 \text{ mm}$ y $\varnothing_{\text{max}} = 332 \text{ mm}$) y están dispuestas en tres niveles, unidas por cuatro tubos de aluminio que las atraviesan y se prolongan por debajo de la grilla inferior formando cuatro soportes sobre los que se apoya el conjunto.

Estas grillas poseen orificios de $\varnothing = 10 \text{ mm}$, distribuidos en cinco circunferencias concéntricas, destinados a alojar los EC y al pasaje del agua de refrigeración. Además, de otras cuatro perforaciones de mayor diámetro, una está destinada a canal de arranque y contiene dos detectores de BF_3 ($\varnothing = 26 \text{ mm}$), en otras dos de $\varnothing = 41 \text{ mm}$ y $\varnothing = 36 \text{ mm}$ se alojan los tubos de irradiación de las facilidades de alta y baja temperatura, respectivamente, y la restante, también de $\varnothing = 26 \text{ mm}$, se utiliza eventualmente para colocar otros tipos de detectores. En la Fig. 3.19 se muestra esquemáticamente la configuración 3 del núcleo del CNEA-RA1 [187].

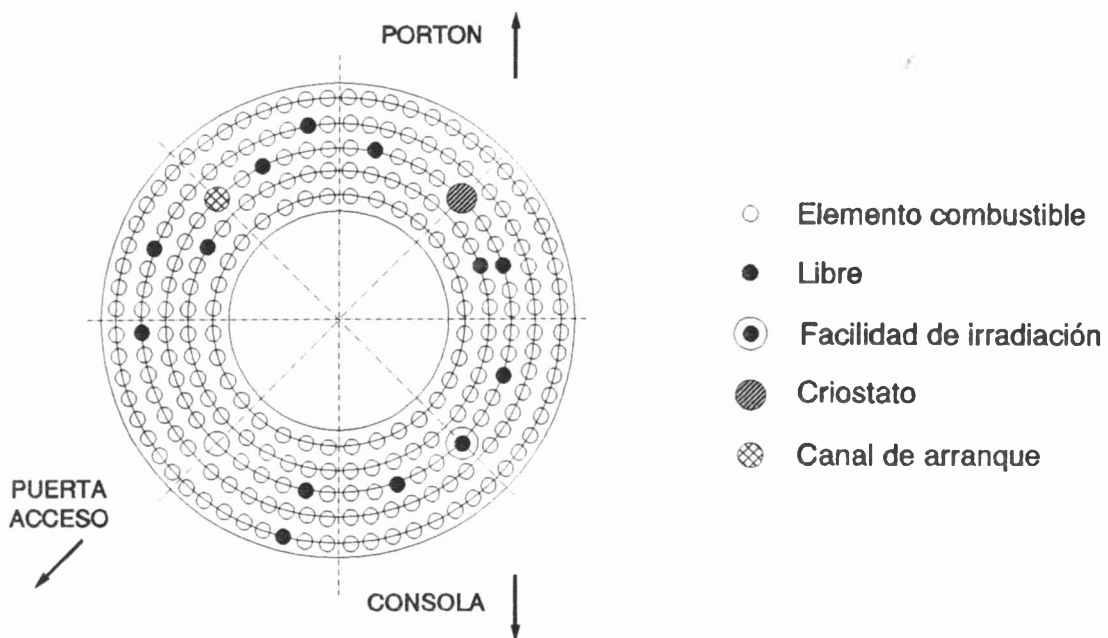


Fig. 3.19: Configuración 3 del núcleo del CNEA-RA1.

Entonces, el núcleo del CNEA-RA1 tiene la forma de un cilindro anular, de 660 mm de altura y cuya base tiene 332 mm de diámetro, con capacidad de alojar hasta 228 elementos combustibles -con 540 mm de longitud activa cada uno-. La parte central del núcleo está ocupada por un reflector central de grafito de pureza nuclear de forma cilíndrica ($\varnothing = 158$ mm y 870 mm de altura). Todo el núcleo está rodeado por otro dos reflectores de grafito, dentro y fuera del tanque.

El flujo de neutrones térmicos promedio en el núcleo de este reactor para una potencia de 40 kW es del orden de 10^{12} n cm⁻² s⁻¹ y la relación entre flujos de neutrones rápidos ($E > 1$ MeV) y térmicos en las posiciones de las facilidades de irradiación resultan del orden de 1,3 [188].

Las características de bajo ruido térmico y de mínimo nivel de vibraciones mecánicas del CNEA-RA1 lo convierten en un reactor óptimo para estudios básicos en materiales bajo irradiación, ya que se facilita el control de la temperatura de irradiación y la estimación del tiempo de irradiación (dosis) [9].

3.3.2 Facilidad de irradiación a altas temperaturas instalada en el CNEA-RA1

En la *Fig. 3.20* se muestra un esquema de la ubicación de la facilidad de irradiación a altas temperaturas instalada en el CNEA-RA1 para realizar experiencias de crecimiento por irradiación *in situ* [9]. A diferencia de la infraestructura edilicia del CNEA-RA3, en este caso se cuenta con una "sala de control de experiencias", donde se controla tanto la parte eléctrica -alimentación del horno, demodulación de la señal de deformación, etc.- como la parte de inyección y evacuación de gases de transferencia térmica -a través del panel del criostato allí ubicado-. En este lugar también se encuentra el panel de adquisición y registro de la información experimental.

En el presente trabajo, se reacondicionó esta facilidad con un nuevo horno diseñado para realizar experiencias a temperaturas de irradiación de 553 K y un nuevo dispositivo de medición. En el diseño de ambos se contempló especialmente las dimensiones del sensor de deformación y el espacio disponible en la facilidad, ya que el diámetro de la parte inferior del tubo de irradiación -que se aloja en el orificio *ad hoc* dentro del núcleo del reactor- es más limitado que en el caso de la facilidad instalada en el CNEA-RA3: $\varnothing_{\text{ext}} = 40$ mm y 1 mm de espesor de pared. En las secciones siguientes se describirán estos elementos junto con su armado e instalación en la facilidad.

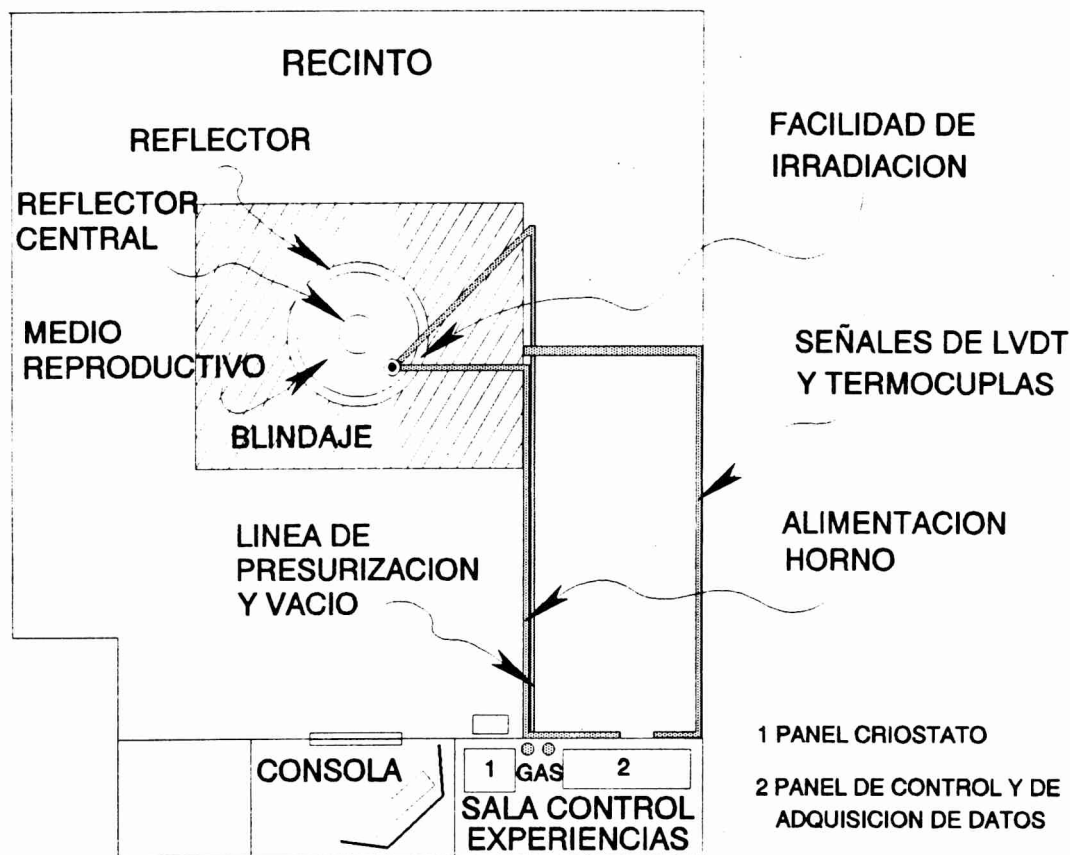


Fig. 3.20: Esquema de las instalaciones del CNEA-RA1.

3.3.2.1 Horno: diseño, construcción, armado y puesta a punto

Las limitaciones de espacio impuestas por las dimensiones del tubo de irradiación y por las del sensor de deformación (LVDT tipo 050XS-2211, similar al utilizado en el dispositivo descrito en 3.2.2.4) indujeron a la concepción de un horno constituido en una sola pieza, pero con dos ranuras (de 130 mm de longitud) en el sector superior de su cuerpo. Mediante una de ellas, de 13 mm de ancho, se gana espacio para la salida de los conductores laterales del LVDT, que forma parte del dispositivo de medición alojado en el interior del horno. Esto requiere dos tipos de roscas para el bobinado del elemento calefactor (calefactor compacto de Ni-Cr con aislante mineral de OMg, de $11,5 \Omega \text{ m}^{-1}$ y $\varnothing_{\text{ext}} = 1,5 \text{ mm}$), como se muestra en la Fig. 3.21. Además, en el cuerpo del horno hay tres ranuras longitudinales de 1 mm de diámetro, posicionadas a 120° , para las tres termocuplas compactas de Chromel-Alumel (tipo K, $\varnothing_{\text{ext}} = 0,8 \text{ mm}$, de 3,5 m de longitud).

Los extremos del cuerpo del horno, $\varnothing_{\text{ext}} = 38 \text{ mm}$, hacen las veces de guías de posicionado dentro de la facilidad. El extremo superior tiene un roscado interior ($\varnothing_{\text{máx}} = 32 \text{ mm}$, de rosca métrica 0,75 y 10 mm de profundidad) que se acopla al "tubo prolongador del horno",

consistente en un tubo de 350 mm de longitud ($\varnothing_{int} = 30$ mm y 1,5 mm de espesor de pared en los 290 mm centrales, mientras que en su extremo inferior este espesor se duplica para dar mayor rigidez al roscado con el horno y en su extremo superior se rebajó a 1 mm para acoplar con el "caño sostenedor del horno"), que también tiene una ranura de 13 mm en toda su longitud.

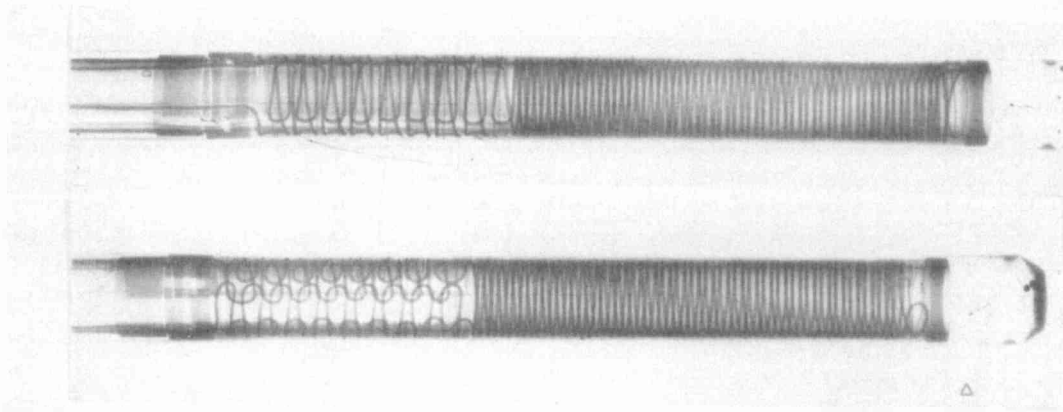


Fig. 3.21: Bobinado del horno para experiencias de crecimiento "in situ" en el CNEA-RA1.

Luego de construir el cuerpo del horno en aluminio, se posicionaron las termocuplas y se bobinó el elemento calefactor. Se hizo un bobinado doble desde su base hasta una longitud de 190 mm, a partir de donde se continuó con un bobinado en zig-zag realizado con cada uno de los extremos del calefactor hasta completar los 300 mm de longitud. Este trabajo requirió un cuidadoso ajuste con flejes de alambre Kanthal ($\varnothing = 1$ mm) para reasegurar a las espiras del sector superior en particular. Ver Fig. 3.21.

Después de efectuar el metalizado por proyección de aluminio para lograr un buen contacto térmico entre los elementos, se torneó hasta un diámetro de 37,6 mm.

En el armado del horno se utilizaron 10 m de elemento calefactor: 8,5 m para el bobinado, y las dos prolongaciones de sus extremos se unieron con dos tramos de conductor de cobre electrolítico, también de tipo compacto (vainas AISI 316, aislante mineral de OMg y $\varnothing_{ext} = 1,5$ mm) mediante dos conectores de 5 mm de diámetro y 5 cm de largo.

Durante todo el proceso de construcción de este tipo de hornos se tiene especial cuidado en conseguir y mantener una alta aislación tanto del elemento calefactor como del conductor de cobre, ya que el aislante mineral de OMg es muy higroscópico. Si bien las especificaciones de fábrica de estos elementos compactos, así como las de las termocuplas, indican valores de aislación, entre vaina y elemento, del orden de $20 \text{ M}\Omega$, se ha comprobado que disminuyen con el tiempo. Entonces, se requiere un tratamiento térmico en mufla antes del armado y un sellado con resina especial.

En particular, después de la construcción, armado y colocación de este horno en el tubo de irradiación -previo a su funcionamiento-, se hizo un exhaustivo control para mejorar su aislación mediante vacío dinámico y pasaje de corriente hasta conseguir óptimos resultados.

Para instalar el horno en el tubo de irradiación, se preparó un tubo de aluminio ($\varnothing = 40 \text{ mm}$ y $1,8 \text{ mm}$ de espesor de pared) que haría las veces de "caño sostenedor del horno" y guía de las termocuplas y conductores del horno hacia el exterior. En su extremo inferior se acopla con la parte superior del "tubo prolongador del horno" mediante un aro, construido en aluminio. Este aro se encastra por su diámetro interno sobre el rebaje superior del tubo prolongador mientras que, por su diámetro exterior se ajusta en un rebaje efectuado en la cara interna del caño sostenedor. El acople se asegura mediante tres tornillos dispuestos a 120° . Luego de posicionar el conjunto horno-tubo prolongador-caño sostenedor, cuya longitud se calculó de manera que el punto medio del horno coincidiese con el punto medio de la probeta -una vez colocado el dispositivo en su interior- y éstos con el nivel medio de los elementos combustibles, se sujetaron las termocuplas y los conductores del horno en toda su longitud con flejes *ad hoc*.

Se soldó por TIG un acople en forma de aro concéntrico ($\varnothing_{\text{ext}} = 52 \text{ mm}$, 10 mm de largo) al extremo superior del caño sostenedor del horno que apoya en un rebaje efectuado en la boca superior de un conector 2NW50, construido en aluminio, de 25 mm de longitud. La parte inferior de este conector apoya y cierra herméticamente, con aro de centrado, O'ring y abrazadera NW50, en la boca superior de la "Te"-3xNW50 asociada con el horno. Una vez introducido el horno, la parte inferior de esta "Te" apoya en la brida de acceso del tubo de irradiación y, mediante aro de centrado, O'ring y abrazadera NW50 se logra el cierre hermético. La salida lateral de esta "Te" está destinada a la salida de las tres termocuplas y a la alimentación del horno.

Se diseñó una tapa NW50, que se construyó en bronce, con cinco orificios, dos de los

cuales ($\varnothing = 7$ mm) se destinaron a los conductores del horno, y los tres restantes ($\varnothing = 8$ mm), que se practicaron en un resalto en forma de semicírculo de 16 mm de altura, a las salidas de las termocuplas. En los dos primeros se soldaron conectores de Covar los que, por su parte interna, se unieron a cada uno de los conductores de cobre compacto -manteniendo la aislación con su vaina- mediante cable de cobre flexible, y por su parte externa a una prolongación, también de cable de cobre flexible, a la ficha de dos pines que conecta con el circuito de alimentación del horno. En los orificios destinados a las termocuplas, se soldaron pasantes contruidos en bronce. Estos fueron diseñados de manera que por su parte externa calzasen rigidamente cada una de las tres fichas compensadas, después que la termocupla correspondiente haya sido pasada a través del orificio interior de 1 mm de diámetro.

Un estudio del funcionamiento del horno -una vez armado y colocado en el tubo de irradiación- dentro de un simulador con flujo de agua en condiciones equivalentes a las de la refrigeración del reactor y con 450 g/cm^2 de nitrógeno de alta pureza sobre la presión atmosférica, arrojó como resultado que para una tensión máxima de 296 V y una corriente de 2,6 A, la potencia del horno es 770 W.

3.3.2.2 Dispositivo de medición *in situ* de la cinética de crecimiento por irradiación en circonio dopado con ^{235}U en el CNEA-RA1

En el diseño de este dispositivo se tuvo en cuenta, además del limitado espacio disponible en el tubo de irradiación, el gradiente del horno que se esperaba por su diseño, según se describió en la sección anterior, dado que la estimación de la potencia de su parte superior resultaba ser del orden de la tercera parte de la potencia del bobinado inferior. En este sentido, se pensó en un dispositivo compuesto de un cuerpo principal construido en Zircaloy-4 -con un tratamiento termomecánico similar al de la probeta estudiada- y de un conjunto de tres piezas homogeneizadoras de aluminio que, como se muestra en el esquema presentado en la *Fig. 3.22*, ocupa toda la extensión del horno.

El cuerpo del dispositivo consta de un tubo soporte que vincula la base donde se sujeta la parte inferior de la probeta mediante un par de tornillos y el receptáculo donde va alojado el sensor de deformación. Los extremos roscados del tubo soporte, $\varnothing_{\text{ext}} = 11,3$ mm, permiten ajustar por su parte inferior la base "pasante" mediante tuerca y contratuerca, mientras que por su parte superior se rosca la pieza porta LVDT la que se ajusta con contratuercas *ad hoc* roscadas previamente en el tubo soporte.

Las tuercas mencionadas también ajustan al homogeneizador de la probeta, que se

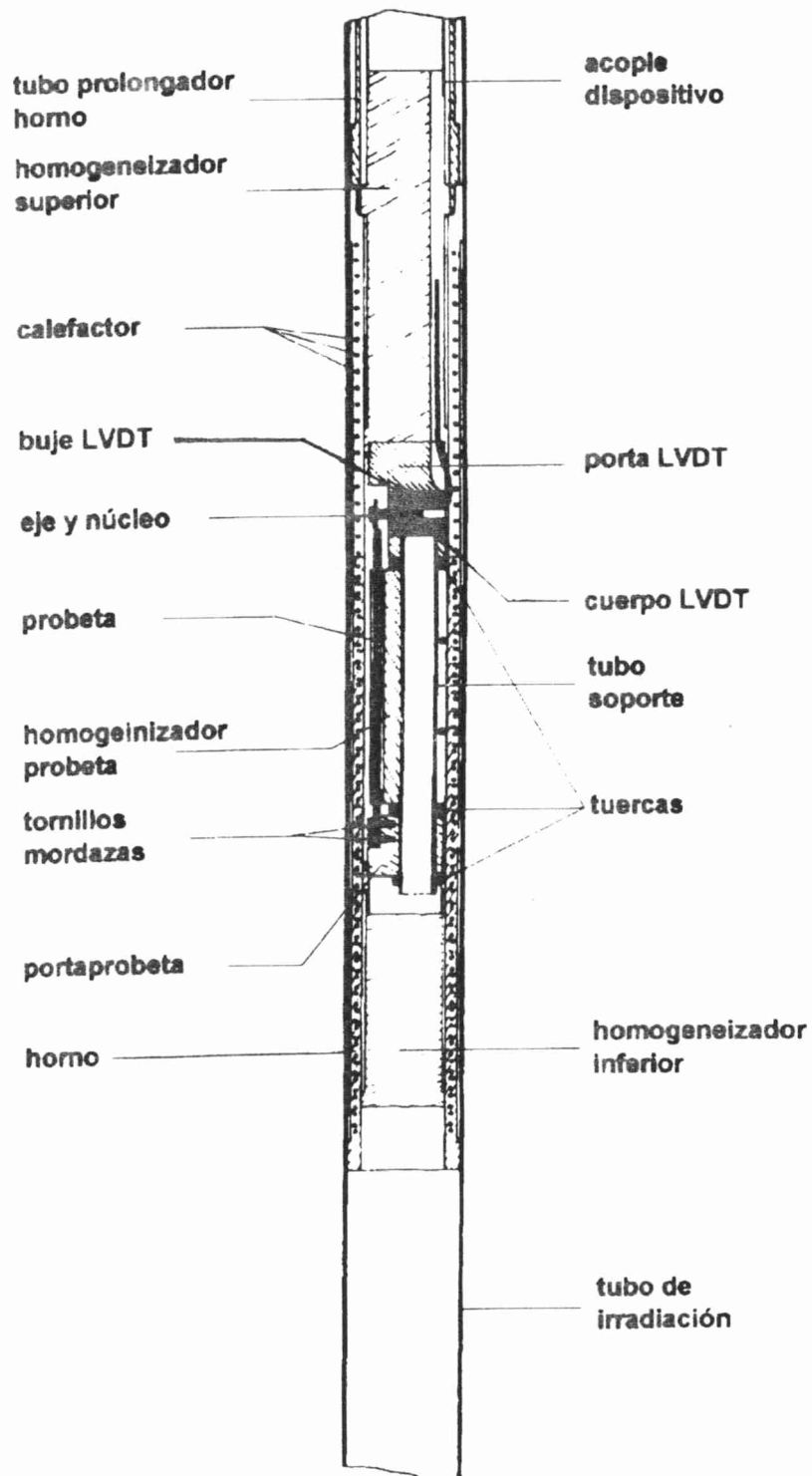


Fig. 3.22: Esquema del dispositivo de medición.

coloca a lo largo del tubo soporte. Este consiste en una pieza maciza cilíndrica pasante de aluminio con una cara plana donde se fresó una canaleta para guiar a la probeta. A la altura correspondiente al punto medio de la probeta, se practicó un canaleta-guía de la termocupla que registrará la temperatura de la misma. Esta pieza homogeneizadora tiene, además, una pequeña cavidad de pared roscada en la que se coloca la hojuela de ^{59}Co -con la que se determina el flujo de neutrones térmicos una vez concluido el experimento- que cierra con un tornillo construido del mismo material.

Por la parte inferior de la base porta probeta se rosca el homogeneizador inferior y por la parte superior del receptáculo del sensor de deformación se rosca el homogeneizador superior, que lleva fresada una canaleta de 13 mm de ancho para guiar a los conductores del LVDT, que, una vez armado y colocado el dispositivo dentro del horno, coincide con las ranuras del horno y de su tubo prolongador.

Para sostener y guiar los conductores del sensor de deformación y la termocupla de la probeta al exterior del tubo de irradiación se utilizó un caño de aluminio, $\varnothing_{\text{ext}} = 25 \text{ mm}$ y 1 mm de espesor de pared, cuya longitud se determinó de manera que el centro del probeta coincida con el centro del horno y el nivel medio de los EC. El extremo inferior del tubo se acopla con la parte superior del homogeneizador y se ajusta con tres tornillos adecuados posicionados a 120° entre sí.

En su extremo superior, el caño sostenedor del dispositivo de medición se acopla a la tapa superior de una cruz asimétrica 2NW50-2NW10 que, una vez instalado el conjunto dentro del tubo de irradiación, constituye el cierre del sistema. Esta es una tapa ciega NW50 de acero inoxidable, con cuatro orificios, $\varnothing = 7 \text{ mm}$, donde se soldaron los cuatro conectores de Covar para la alimentación y salida de la señal del LVDT. Por su parte interna lleva soldada una pieza que se une al caño sostenedor del dispositivo con tres tornillos posicionados a 120° . Una de las bocas laterales NW10 de la cruz se destina a la salida de la termocupla de la probeta, del tipo K con conector y $\varnothing = 0,8 \text{ mm}$, para la que se construyó una tapa de cierre NW10 en bronce, que por su parte externa tiene un soporte para el casquillo del conector. La otra salida lateral de la cruz será la comunicación con el sistema de evacuación e inyección de gas que se comanda desde el panel del criostato, ubicado en la sala de control de experiencias como se indica en la *Fig. 3.20*.

Los cierres herméticos de todas las tapas se logran con aros de centrados, O'rings y abrazaderas apropiadas. Cuando todo el sistema estuvo armado, se completó el sellado

mediante sucesivas pruebas de vacío y a presiones de hasta 600 g/cm^2 de nitrógeno, hasta no registrar pérdidas.

En las *Fig. 3.23* y *Fig. 3.24* se muestra el dispositivo en una de las etapas de su armado junto con el despiece de otro similar y con el horno armado, respectivamente. En particular, en la *Fig. 3.24* también se muestra la probeta con el núcleo del LVDT en su extremo superior, que rosca en el eje pasante y se ajusta con una contratuerca por su lado posterior.

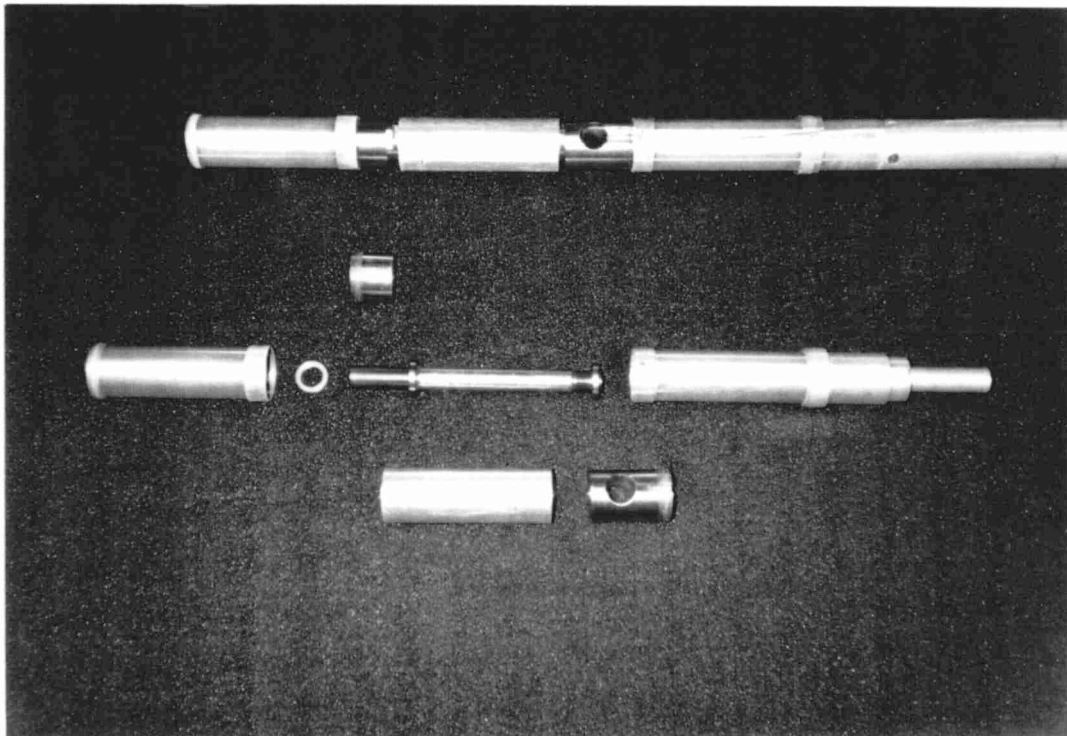


Fig. 3.23: Despiece del dispositivo de medición.

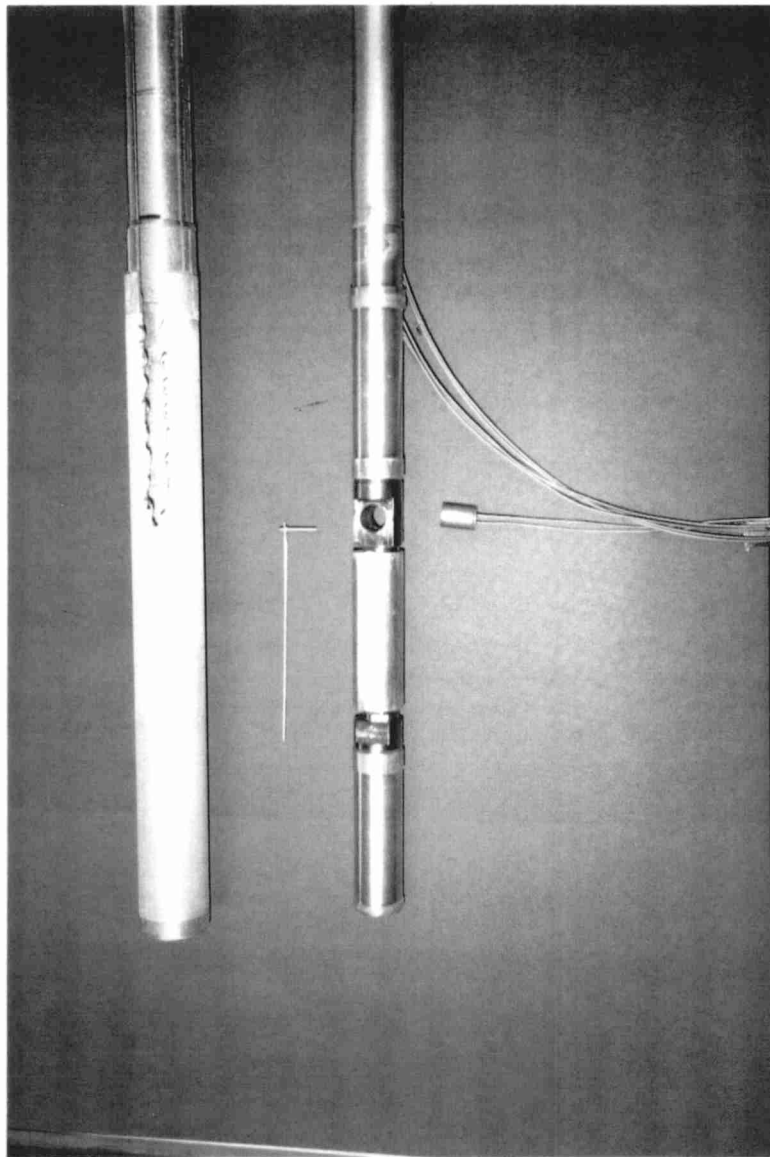


Fig. 3.24: Dispositivo con probeta presentada y horno armado.

En la *Fig. 3.25* se muestra el dispositivo armado -sin el homogeneizador inferior- con la probeta montada. Esta fotografía se tomó en una de las etapas de pruebas, durante el análisis del comportamiento del sistema de medición de la deformación, conformado por el LVDT y el demodulador de señal, para la configuración eléctrica de trabajo. En este caso, como en el experimento realizado en la facilidad instalada en el CNEA-RA3, se utilizó el acondicionador de señal CAS 2500 RZ-TL, marca Schaevitz. Cuando se logró estabilidad y calidad de señal mediante los ajustes internos adecuados (fase, ganancia y cero) y con el método indicado por el fabricante se obtuvo un rango lineal de 4,5 mm verificado con el sistema mecánico micrométrico de medición con una resolución de $2\ \mu\text{m}$. En esta oportunidad la constante de calibración fue de $1\ \text{mV}/\mu\text{m}$.



Fig. 3.25: Dispositivo armado con la probeta y sin el homogeneizador inferior.

3.3.2.3 Instalación y ensayos de funcionamiento de la facilidad de irradiación en el reactor CNEA-RA1

En la *Fig. 3.26* se muestra un esquema de la instalación de la facilidad. El circuito de inyección de gas está formado por una cañería de cobre, $\varnothing = 0,5''$, y cuenta con alarmas sonoras y con una conexión a la consola de comando del reactor que, en caso de producirse una avería en el tubo de irradiación durante la experiencia, provocará la caída de las barras de control. Además, la sobrepresión de gas de transferencia térmica, 450 g/cm^2 respecto de la presión atmosférica, dificultará la entrada de agua en la facilidad en el caso de producirse una pinchadura. La válvula de seguridad se abre a $3,5 \text{ kg/cm}^2$, siendo la presión de rotura del tubo de 100 kg/cm^2 .

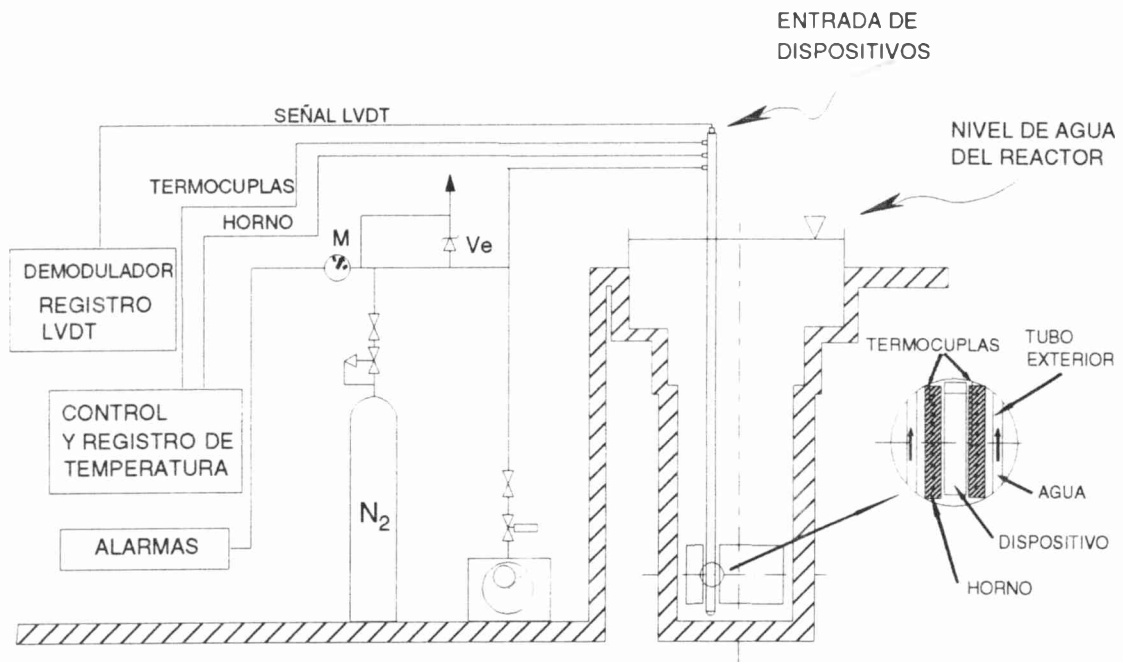


Fig. 3.26: Esquema de la facilidad instalada en el CNEA-RA1.

La caída de presión está controlada por dos contactos en el manómetro **M**, el contacto de baja presión acciona la alarma en $1,1 \text{ kg/cm}^2$ y el de alta produce la caída de barras a 1 kg/cm^2 .

El control de temperatura del horno, como en el caso de la otra facilidad, se logra mediante un regulador diferencial, con acción proporcional e integral que regula por medio de tren de ondas. Por las características constructivas del horno, en este caso se agregó, en la alimentación del regulador, un transformador 220 V-300 V para lograr un buen margen de regulación a la temperatura de trabajo de 553 K ($280 \text{ }^\circ\text{C}$).

Las señales de las termocuplas llegan al panel de control a través de sus respectivos cables compensados. La termocupla de regulación, se usó la correspondiente a la superior del horno, se conectó directamente al regulador, mientras que las otras tres -inferior y central del horno y de la probeta- tienen juntas frías a $0 \text{ }^\circ\text{C}$ en un termo *ad hoc*, ubicado también en el panel de control.

Se hicieron pruebas del funcionamiento de la facilidad, en particular para verificar el comportamiento del circuito de regulación del horno en las condiciones de disipación de trabajo, dentro del reactor con y sin su equipo de refrigeración en funcionamiento. En las mismas condiciones y ya optimizado el sistema de regulación, se hizo un estudio del gradiente

de temperatura en el lugar que ocupará la probeta, ajustando la termocupla de la probeta en diferentes alturas a lo largo de dicha posición. Se encontró, a la temperatura de trabajo, un gradiente menor de 5 °C entre sus extremos, estimándose que en las condiciones reales de disipación, con el reactor en funcionamiento, este gradiente sería mínimo.

La facilidad se fija en el recipiente del reactor por medio de un soporte, luego de su colocación dentro del núcleo con la ayuda de un mecanismo de poleas instalado sobre uno de los tensores que vinculan las paredes del recinto. En todo el operativo de posicionamiento del tubo de irradiación en la núcleo, se tiene especial cuidado en minimizar la posibilidad de contacto entre el tubo y la grilla, a fin de evitar las vibraciones mecánicas provenientes del circuito de refrigeración del reactor que ésta última le pueda transmitir.

En el **Apéndice C.2** se muestran tres vistas de la facilidad de irradiación instalada en núcleo del CNEA-RA1 durante el curso de la experiencia. En la *Fig. C.2.1* se puede observar las salidas correspondientes a la señal del LVDT y la conexión al sistema de evacuación e inyección de gas, mientras que en la *Fig. C.2.2* se muestra el conexionado del horno y sus termocuplas. Finalmente en la *Fig. C.2.3* se observa el soporte superior de la facilidad.

4 RESULTADOS

4.1 Amplificación del par bimetalico

Por construcción, ver 3.1.3, la probeta está formada por dos varillas unidas, cuyas dimensiones, para el presente desarrollo, serán: espesor = $h/2$, ancho = b y longitud = l , una de las cuales, la varilla 1, está dopada con ^{235}U . Al ser sometida a la radiación, los neutrones térmicos producen fisión y estos fragmentos energéticos producen muchos desplazamientos, como se vió en 1.7. De este modo la varilla 1 *crecerá* a una mayor velocidad que la varilla 2, y el par bimetalico se curvará, y constituirá un ejemplo de flexión de una viga conformada por dos materiales diferentes [189].

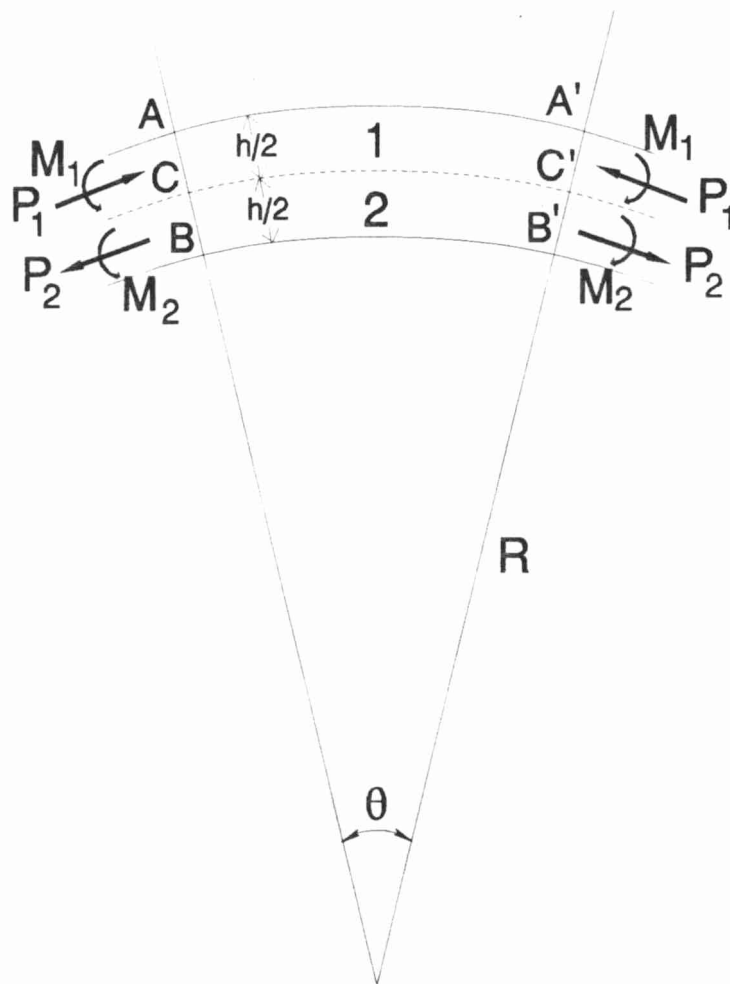


Fig. 4.1: Esquema de la flexión de la probeta.

La varilla **1** estará sujeta a flexión y compresión, y la varilla **2** a flexión y expansión o tracción. Considerando un elemento de la varilla limitada por dos secciones adyacentes **AB** y **A'B'**, Fig. 4.1, las fuerzas internas sobre estas secciones pueden reducirse a una fuerza de compresión P_1 y a una cupla o par M_1 sobre la sección transversal de la varilla **1**. En la misma forma las fuerzas internas en la varilla **2** pueden reducirse a una tracción P_2 y a una cupla M_2 . Las fuerzas internas sobre cualquier sección de la viga deben estar en equilibrio:

$$P_1 = P_2 = P \quad 4.1$$

y,

$$P \frac{h}{2} = M_1 + M_2 \quad 4.2$$

siendo:

$$P = \frac{\epsilon}{2} E \left(\frac{h}{2} b \right) \quad 4.3$$

en donde $\frac{\epsilon}{2}$ es el crecimiento de una de las varillas y el acortamiento de la otra, $\left(\frac{h}{2} b \right)$ es el área de la sección transversal y E es el módulo de elasticidad o *módulo de Young*. Se puede sustituir a los momentos flectores, M_1 y M_2 , por sus expresiones en función de la curvatura:

$$M_1 = \frac{E_1 I_1}{R} \quad \text{y} \quad M_2 = \frac{E_2 I_2}{R}$$

donde el producto EI , con I momento de inercia de la sección transversal recta respecto del eje neutro, es la rigidez a la flexión [190], y como las varillas son del mismo material, la Ec. 4.2 queda:

$$P \frac{h}{2} = 2 \frac{EI}{R} \quad 4.4$$

Debido al vínculo entre ambas varilla en la superficie de unión **CC'**, se añaden las deformaciones, Δ_1 y Δ_2 , producidas por P en las varillas **1** y **2**, respectivamente:

$$\Delta_1 = -\frac{P}{E\left(\frac{h}{2}b\right)} \quad 4.5$$

$$\Delta_2 = +\frac{P}{E\left(\frac{h}{2}b\right)}$$

Entonces, las deformaciones totales de cada varilla serán:

$$e_1 = +\frac{\epsilon}{2} + \Delta_1 \quad 4.6$$

$$e_2 = -\frac{\epsilon}{2} + \Delta_2$$

siendo la diferencia de deformación de los ejes **AA'** y **BB'**:

$$e_1 - e_2 = \epsilon - \frac{4P}{Ehb} \quad 4.7$$

Considerando las longitudes elementales:

$$e_1 - e_2 = \frac{AA' - BB'}{CC'} = \frac{\left(R + \frac{h}{4}\right)\theta - \left(R - \frac{h}{4}\right)\theta}{R\theta} = \frac{h}{2R} \quad 4.8$$

donde **CC'** es la longitud de la fibra neutra. Igualando las Ecs. 4.7 y 4.8:

$$\frac{h}{2R} = \epsilon - \frac{4P}{Ehb} \quad 4.9$$

finalmente, teniendo presente la Ec. 4.4 y reemplazando el momento de inercia **I** por su expresión correspondiente a un área plana de ancho **b** y altura **h/2** respecto a su eje

transversal, $I = \frac{bh^3}{96}$, la Ec. 4.9 toma la forma:

$$\frac{h}{2R} = \epsilon - \frac{1}{6} \frac{h}{R} \quad 4.10$$

es decir,

$$\epsilon = \frac{2}{3} \frac{h}{R} \quad 4.11$$

Para relacionar la deformación de crecimiento ϵ con la flecha f , que es la magnitud medible en la experiencia, se remite al esquema de la Fig. 4.2:

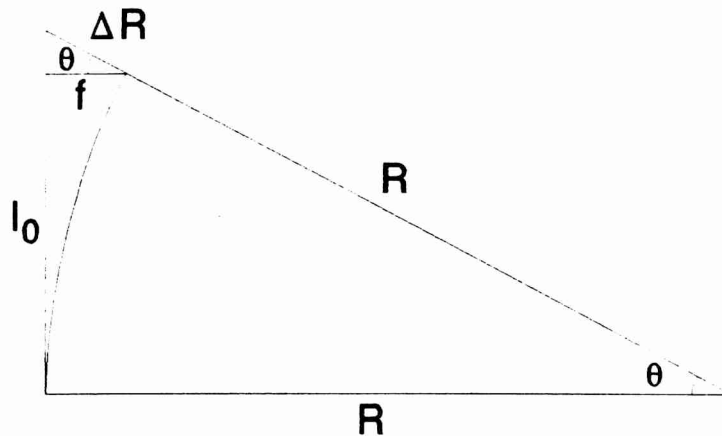


Fig. 4.2: Flexión de la probeta.

para deformaciones pequeñas:

$$f = R - R \cos \theta = R(1 - \cos \theta) \approx R \frac{\theta^2}{2} \quad 4.12$$

$$\Rightarrow R = \frac{2f}{\theta^2} \quad 4.13$$

como,

$$\theta \approx \frac{l_0 + \Delta l}{R} \approx \frac{l_0}{R} \Rightarrow \theta^2 = \frac{l_0^2}{R^2} \quad 4.14$$

comparando las Ecs. 4.13 y 4.14:

$$\frac{1}{R} = \frac{2f}{l_0^2} \quad 4.15$$

Finalmente, reemplazando en la Ec. 4.11:

$$e = \frac{\Delta l}{l_0} = \frac{4}{3} \frac{h}{l_0^2} f \quad 4.16$$

En estas condiciones, la amplificación que la flecha da al incremento de longitud de cada uno de los especímenes irradiados es:

Tabla 4.1: Amplificación geométrica de las probetas.

| Probeta irradiada en | l_0 (mm) | h (mm) | amplificación = $\frac{f}{\Delta l} = \frac{3}{4} \frac{l_0}{h}$ |
|----------------------|------------|--------|--|
| CNEA-RA3 | 102,5 | 1 | 77 |
| CNEA-RA1 | 102,4 | 1 | 77 |

Durante la deformación bajo irradiación, el material no debe entrar en fluencia. En este sentido se puede hacer una estimación del valor de la tensión que producirá la deformación máxima que, por diseño, se toma como la correspondiente a una flecha de 0,1 cm.

La fuerza en el extremo del elemento que se curva es:

$$F = \frac{3EI}{l_0^3} f \quad 4.17$$

En la siguiente tabla se muestran los valores del módulo de elasticidad y de la tensión de fluencia para circonio 50% trabajado en frío y sometido a tratamientos termomecánicos de liberación de tensiones y de recristalización, correspondientes a los de los especímenes irradiados en los reactores CNEA-RA3 y CNEA-RA1, ver 3.1.4, respectivamente, ensayados a temperaturas similares a los de los presentes experimentos [191]:

Tabla 4.2: Tensión de fluencia y módulo de elasticidad del Zr 50% trabajado en frío.

| Tratamiento térmico | Temperatura de ensayo (K) | σ_f (MPa) | E (MPa) |
|-----------------------|---------------------------|------------------|---------|
| Liberado de tensiones | 620 | 125 | 71400 |
| Recristalización | 550 | 90 | 68600 |

Entonces, considerando cada una de las probetas con $I = 2,5 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^4$ y utilizando los valores de E dados en la Tabla 4.2, mediante la Ec. 4.17 se encuentra que F es aproximadamente $5 \times 10^{-2} \text{ N}$ para ambas.

La tensión en una fibra a una distancia y de la fibra neutra es $\sigma_{\text{máx}} = \frac{My}{I}$ con $M = F l =$

$5 \cdot 10^{-3}$ N m. Luego para $y = h/2 = 0,05$ cm:

$$\sigma_{\text{máx}} = 10 \text{ MPa}$$

que es un 10% del valor de correspondiente a las tensiones de fluencia, σ_f , registrados en la *Tabla 4.2*, indicando que en las condiciones experimentales, desde el punto de vista de las propiedades de tensión, las probetas están dentro del rango elástico.

4.2 Amplificación del daño producido por los fragmentos de fisión

Para determinar la amplificación del daño que se obtiene al dopar con material fisionable, ^{235}U , se estimará el número total de átomos desplazados producidos por neutrones rápidos ($E_1 \geq 1$ MeV), y por los fragmentos de fisión, siguiendo el formalismo presentado en las secciones 1.4.2 y 1.4.3.

4.2.1 Número de átomos desplazados producidos por neutrones rápidos

La energía máxima que un neutrón rápido le transfiere a un átomo de la red, en el caso que nos ocupa, circonio, en una colisión elástica, según *Ec. 1.4*, es:

$$E_2 = \frac{4 \times 1 \times 91,2}{(1 + 91,2)^2} E_1 = 0,431 \text{ MeV} = 43 \text{ keV} \quad 4.18$$

Con este valor, utilizando el tratamiento de Thomas-Fermi, *Ecs. 1.11 y 1.14*, en donde el proyectil es el primario y éste colisiona con otro átomo de circonio, se encuentra que la variable reducida, ϵ , correspondiente a la energía es:

$$\epsilon = 0,0115 \frac{E_2}{Z^{7/3}} = 0,0904 \quad 4.19$$

donde $Z = 40$ (carga del circonio). Con la expresión del parámetro k_L (contante de proporcionalidad entre el poder de frenamiento electrónico y $\epsilon^{1/2}$) dada por la *Ec. 1.16*, en donde, nuevamente el subíndice **1** corresponde al primario y el **2**, al átomo de circonio con el que colisiona:

$$k_L = 0,1338 \frac{Z^{2/3}}{M^{1/2}} = 0,1338 \frac{40^{2/3}}{91,2^{1/2}} = 0,164 \quad 4.20$$

Entonces la aproximación numérica de la función universal $g(\epsilon)$ [27,35] dada por la *Ec. 1.20* conduce a:

$$g(\epsilon) = 2,435 \quad 4.21$$

y la energía de daño, es decir, la energía efectiva que produce desplazamientos, por la *Ec. 1.19* será:

$$T_D = \frac{E_2}{[1 + k_L g(\epsilon)]} = \frac{43.000 \text{ eV}}{[1 + 0,164 \times 2,435]} \approx 31 \text{ keV} \quad 4.22$$

Finalmente utilizando la expresión de Kinchin-Pease, *Ec.1.21*, se obtiene el número de desplazamientos que provoca un átomo de circonio al que un neutrón de 1 MeV le transfirió una energía de ~ 43 keV:

$$\nu = \nu(E_2) = \frac{0,8 T_D}{2E_d} \approx 500 \quad 4.23$$

En esta expresión se utilizó como energía umbral de desplazamiento, E_d , el valor de 25 eV. Es de notar que, como se refirió en el **1.4**, dependiendo de la estructura cristalográfica del material, la energía umbral de desplazamiento varía de acuerdo a la dirección en que el átomo es eyectado de su sitio de red, y la E_d es el promedio sobre todas las direcciones, [22]. Para el circonio, algunos autores utilizan el valor de 25 eV, y otros el de 40 eV [134], y otros el promedio de estos valores, 33 eV [133]. Sin embargo, al menos que se comparen desplazamientos en diferentes elementos, o que se intente establecer una relación teórica absoluta entre los desplazamientos y algunas propiedades macroscópicas del material tales como el creep o el crecimiento, no es muy importante asignar a E_d el valor 25 o 40 eV. Lo que sí es importante es que ν varía inversamente con E_d , y que en los trabajos relacionados se debe establecer qué valor de E_d se utiliza.

4.2.2 Número de átomos desplazados producidos por los fragmentos de fisión

En el proceso de fisión del ^{235}U se producen directamente más de 200 isótopos diferentes que tienen combinaciones (M,Z) que van desde $(66,23)$ hasta $(171,71)$ con energías cinéticas totales que varían desde 142 MeV hasta 176 MeV. Se ha mostrado [192] que la energía cinética promedio total del par de fragmentos de fisión es de 168 MeV, que puede repartirse entre un fragmento pesado de $M_p = 96$ uma que lleva una energía de 68 MeV y otro liviano de $M_l = 140$ uma con energía de 100 MeV. En la base de datos FISSPROD [193] se encuentra que los máximos rendimientos para los isótopos de masas 96 y 140 son, respectivamente el estroncio ($Z = 38$) y el xenon ($Z = 54$).

Los dos fragmentos producen dos cascadas con un total de $\sim 10^5$ átomos desplazados [194]. Para calcular la cantidad de desplazamientos provocados por los fragmentos de fisión producidos *in situ* en circonio, se utilizan las expresiones generalizadas de ϵ , Ecs. 1.11 y 1.14, y de k_L , Ec. 1.16, donde el subíndice **1**, en este caso, se refiere al fragmento de fisión, y el subíndice **2**, a los átomos de la matriz de circonio. Es decir, a cada uno de los dos fragmentos se aplican las siguientes expresiones:

$$\epsilon = \frac{0,0368 M_2 E_2}{Z_1 Z_2 [Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3}]^{1/2} (M_1 + M_2)} \quad 4.24$$

y,

$$k_L = \frac{0,0795 (M_1 + M_2)^{3/2} Z_1^{2/3} Z_2^{1/2}}{[Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3}]^{3/4} M_1^{3/2} M_2^{1/2}} \quad 4.25$$

En la *Tabla 4.3* se resumen las características de cada fragmento (M, Z) , la energía E_1 de cada uno de ellos considerado como el primario, el valor de la energía cinética máxima transferida al átomo de circonio E_2 , valores estos que permiten calcular los parámetros ϵ y k_L dados por las Ecs. 4.24 y 4.25. Finalmente con las relaciones dadas por las Ecs. 1.19 y 1.21, se determinan las energías de daño, T_D , y el número de desplazamientos, ν , producidos por cada fragmento respectivamente:

Tabla 4.3: Producción de desplazamientos por los fragmentos de fisión del ^{235}U

| fragmento | M | Z | E_1 (MeV) | E_2 (MeV) | ϵ | k_L | T_D (MeV) | ν |
|-----------|-----|----|-------------|-------------|------------|-------|-------------|---------|
| estroncio | 96 | 38 | 100 | ~100 | 245,7 | 0,154 | 2,6 | ~40.000 |
| xenón | 140 | 54 | 68 | 95,5 | 85,7 | 0,139 | 4,4 | ~70.000 |

Así un evento de fisión producirá en promedio 10^5 desplazamientos en circonio.

4.2.3 Cálculo de la velocidad de producción de átomos desplazados

El número total de desplazamientos atómicos por la unidad de tiempo en la unidad de volumen se puede aproximar con la expresión:

$$\frac{dN_d}{dt} = N_p \nu = \phi N_0 \sigma_d \nu \quad 4.26$$

donde ϕ es el flujo de partículas de radiación incidentes por unidad de superficie (en cm^2) y por unidad de tiempo (en segundos, s), N_0 es la densidad de átomos del material blanco, σ_d es la sección eficaz de desplazamiento atómico y ν es la función daño, **1.4.3**.

4.2.3.1 Probeta irradiada en el RA3

En el RA3 se encontró que el flujo de neutrones térmicos, con la técnica de medición de la activación del ^{59}Co [195] en las dos hojuelas que habían sido ubicadas adyacentes a la probeta, ver **3.2.2.4.**, era de $2 \times 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, y se estimó una relación de flujo rápido a térmico de 1 (dentro del error del 10%). En estas condiciones, tomando $N_0 = 4,29 \times 10^{22} \text{ át/cm}^3$ para el circonio (de peso atómico 91,2 g y densidad: $\delta = 6,51 \text{ g/cm}^3$), $\nu = 500$, según *Ec. 4.23*, y, finalmente, considerando a σ_d en promedio como la $\sigma_e = 4,5 \text{ barn}$, sección eficaz elástica del circonio para neutrones de 1 MeV [196], la velocidad de producción de desplazamientos atómicos por unidad de volumen debido a los neutrones rápidos es:

$$\frac{dN_d}{dt} = 2 \times 10^{13} \frac{n}{\text{cm}^2 \text{ s}} 4,29 \times 10^{22} \frac{\text{át}}{\text{cm}^3} 4,5 \times 10^{-24} \text{ cm}^2 500$$

4.27

$$= 1,93 \times 10^{15} \frac{\text{desplazados}}{\text{cm}^3 \text{ s}}$$

Siendo la velocidad de producción de desplazamientos por átomo: $\sim 4,5 \times 10^{-8} \text{ dpa s}^{-1}$.

La velocidad de producción de átomos desplazados producidos por los fragmentos de fisión en la rama dopada con ^{235}U es:

$$\frac{dN_d}{dt} = 2 \times 10^{13} \frac{n}{\text{cm}^2 \text{ s}} 4,29 \times 10^{22} \frac{\text{át}}{\text{cm}^3} 6 \times 10^{-4} 582,93 \times 10^{-24} \text{ cm}^2 10^5$$

4.28

$$= 3 \times 10^{16} \frac{\text{desplazados}}{\text{cm}^3 \text{ s}}$$

valor que se obtuvo a partir de la *Ec.* 4.26, en donde se ha considerado la concentración atómica de ^{235}U , 0,06 %át., el número promedio de desplazados producidos por los dos fragmentos, según la estimación hecha en 4.2.2, y para la σ_d se ha tomado el valor de la sección eficaz de fisión del ^{235}U para neutrones térmicos (de 2200 m s⁻¹ o de 25 mV de energía), según Ref. [49]. En este caso, la velocidad de producción de desplazamientos por átomo es: $\sim 7 \times 10^{-7} \text{ dpa s}^{-1}$.

4.2.3.2 Probeta irradiada en el RA1

En el RA1 se encontró que el flujo de neutrones térmicos, con la técnica de medición de la activación del ^{59}Co [197], en una hojuela que, como en el caso anterior, había sido ubicada adyacente a la probeta, dentro del dispositivo de medición, fue de $5 \times 10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, y se estimó una relación de flujo rápido a térmico de 1,3 (dentro del error del 10%). Entonces, en este caso:

$$\frac{dN_d}{dt} = 6,5 \times 10^{11} \frac{n}{\text{cm}^2 \text{ s}} 4,29 \times 10^{22} \frac{\text{át}}{\text{cm}^3} 4,5 \times 10^{-24} \text{ cm}^2 500$$

4.29

$$= 6,3 \times 10^{13} \frac{\text{desplazados}}{\text{cm}^3 \text{ s}}$$

siendo la velocidad de producción de desplazamientos por átomo: $\sim 1,5 \times 10^{-9} \text{ dpa s}^{-1}$.

Finalmente, la velocidad de producción de átomos desplazados producidos por los fragmentos de fisión en la rama dopada con ^{235}U correspondiente a este caso es:

$$\frac{dN_d}{dt} = 5 \times 10^{11} \frac{n}{\text{cm}^2 \text{ s}} 4,29 \times 10^{22} \frac{\text{át}}{\text{cm}^3} 6 \times 10^{-4} 582,93 \times 10^{-24} \text{ cm}^2 10^5$$

4.30

$$= 7,5 \times 10^{14} \frac{\text{desplazados}}{\text{cm}^3 \text{ s}}$$

es decir, $\sim 1,75 \times 10^{-8} \text{ dpa s}^{-1}$.

En estas condiciones, las relaciones entre las velocidades de producción de daño por los fragmentos de fisión y por los neutrones rápidos en las probetas irradiadas en los reactores CNEA-RA3 y CNEA-RA1 son 15 y 12, respectivamente. Entonces, la amplificación del daño debida al flujo de neutrones en la posición de irradiación dentro del núcleo, en ambos reactores es de un orden de magnitud.

4.3 Puesta en funcionamiento de la facilidad de irradiación a altas temperaturas instalada en el CNEA-RA3. Primera medición de la cinética de crecimiento por irradiación.

Una vez que se posicionó la facilidad dentro del núcleo del CNEA-RA3, según 3.3.2.6, se hizo un control general del comportamiento de los sistemas de medición y control de deformación y de temperatura, junto con el del sistema de evacuación e inyección de gases. En particular, este último, requería una optimización en el tiempo para un posible recambio del gas de transferencia térmica dado que, si bien se tenía una estimación del calentamiento gamma, la misma correspondía a una configuración diferente de la presente [180].

Se presurizó la facilidad con 600 g/cm^2 de $\text{N}_2(\text{g})$ y, después que se puso en marcha el sistema de refrigeración del reactor, se elevó la temperatura del horno hasta que la temperatura de la probeta se estabilizó en 498 K, y se llevó a cero la señal del LVDT. A continuación se comenzaron a levantar las barras del reactor, notándose un inmediato aumento de la temperatura de la probeta muy por encima de la temperatura de trabajo, que se había fijado en 553 K, por lo que se decidió el corte de energía del horno y un cambio del gas de transferencia térmica. Se hicieron varios lavados, previa evacuación del $\text{N}_2(\text{g})$, inyectando y evacuando $\text{He}(\text{g})$, hasta que finalmente se colocó dentro de la facilidad 600 g/cm^2 de $\text{He}(\text{g})$. Este operativo duró 12 minutos en total, y en los siguientes 30 minutos se logró la estabilización de la temperatura de la probeta en $618 \text{ K} \pm 1 \text{ K}$ -que se tomó como el valor de la temperatura de trabajo- mientras el horno regulaba a $408 \text{ K} \pm 1 \text{ K}$.

Desde el momento que comenzó la irradiación el curvado de la probeta se hizo notorio. En la Fig. 4.3 se presenta la curva obtenida durante la irradiación del espécimen de ZrAl dopado con ^{235}U 50% trabajado en frío y liberado de tensiones (673 K, 2 h), hasta la dosis neutrónica equivalente de $1,3 \times 10^{24} \text{ n m}^{-2}$ ($E > 1\text{MeV}$). La *dosis neutrónica equivalente* es el producto del flujo de neutrones rápidos por el tiempo de irradiación por el factor 15 obtenido en 4.2.3.2. En la representación de la cinética de crecimiento de la Fig. 4.3 se ha eliminado el "salto" producido por las dilataciones relativas, entre el eje y el núcleo del LVDT, estimado a partir del análisis, efectuado previo a la irradiación, del comportamiento del sistema de medición de deformación. Se había encontrado que para un incremento de temperatura de 393 K la probeta deflectaba $40 \mu\text{m}$, valor que se repitió en las paradas, programadas e imprevistas, acaecidas durante el experimento.

Se observa una velocidad de deformación inicial muy rápida, $\dot{\epsilon}_g = 2,7 \times 10^{-9} \text{ s}^{-1}$, que

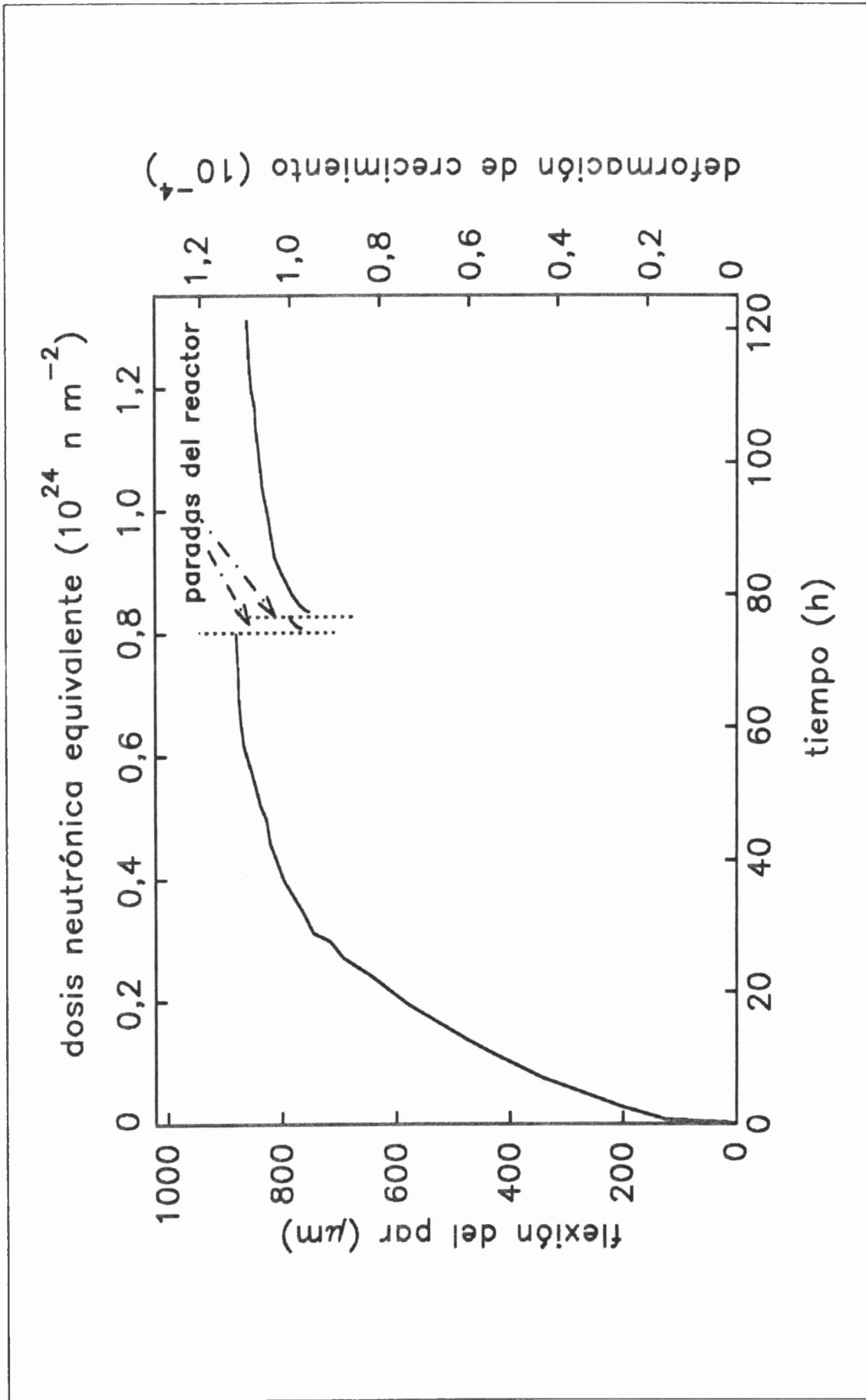


Fig. 4.3: Cinética de crecimiento por irradiación de ZrAl dopado con ^{235}U irradiado a 618 K bajo un flujo de neutrones rápidos equivalente de $3 \times 10^{14} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ($E > 1 \text{ MeV}$) en el CNEA-RA3.

cambia continuamente hasta el valor $2,4 \times 10^{-11} \text{ s}^{-1}$ para una dosis neutrónica equivalente de $\sim 0,8 \times 10^{24} \text{ n m}^{-2}$, a partir de la cual ocurren dos eventos relacionados con el funcionamiento del reactor. Por un lado se registra una disminución de la potencia que incide en la temperatura de irradiación de modo de disminuirla en 6 K, y en segundo lugar ocurren dos paradas (*scrams*) sucesivas de aproximadamente 50 minutos de duración cada una. La primera de ellas consistió en una parada "programada" con el fin de cambiar la configuración del núcleo 150, según Fig. 3.10, por la configuración 150', colocando un elemento combustible en la posición H6, dado que con la configuración anterior el núcleo había quedado sin exceso de reactividad.

Cuando se llega a potencia después de la primera parada y cuando se restablecen las condiciones estables de irradiación, se observa una disminución de un 13% en la deformación de crecimiento, mientras que el ritmo de crecimiento varía desde $\dot{\epsilon}_g \sim 10^{-9} \text{ s}^{-1}$ hasta $2,4 \times 10^{-10} \text{ s}^{-1}$, para una dosis neutrónica equivalente de $0,82 \times 10^{24} \text{ n m}^{-2}$, en la que ocurre la segunda parada del reactor. Esta parada imprevista o "no programada" se produjo como consecuencia de una variación en el caudal del sistema de refrigeración del reactor. En esta etapa del experimento, cuando se alcanzan nuevamente las condiciones estables de irradiación, se registró un decremento del 4% de la deformación de crecimiento. Esta vez la velocidad de crecimiento cambió desde $\dot{\epsilon}_g \sim 10^{-9} \text{ s}^{-1}$ hasta $3,6 \times 10^{-11} \text{ s}^{-1}$ para la dosis neutrónica equivalente final alcanzada en esta experiencia de $1,3 \times 10^{24} \text{ n m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$). La deformación final de crecimiento a 612 K fue de $1,1 \times 10^{-4}$.

En la Fig. 4.4 se muestra un esquema de las variaciones del flujo rápido equivalente y de la temperatura de la probeta registradas durante las dos paradas del reactor. En la primera parada se cambió inmediatamente el gas de transferencia térmica He(g) por N₂(g) y la regulación del horno se fijó de modo que la termocupla de la probeta registrase $498 \text{ K} \pm 1 \text{ K}$ correspondiente a la temperatura de la probeta en el inicio del experimento. Cuando se llegó nuevamente a potencia, luego de los lavajes correspondientes, se inyectó nuevamente 600 g/cm^2 de He(g) a la facilidad. En la segunda parada, en cambio, se mantuvo este gas, de modo que con la máxima regulación del horno se logró que la probeta registre una temperatura mínima de $449 \text{ K} \pm 1 \text{ K}$ durante el tiempo efectivo de detención del reactor de aproximadamente 30 minutos.

El control de temperatura durante la experiencia fue de $\pm 1 \text{ K}$ y la estabilidad de la señal de deformación fue de 10 mV ($\sim 10 \mu\text{m}$).

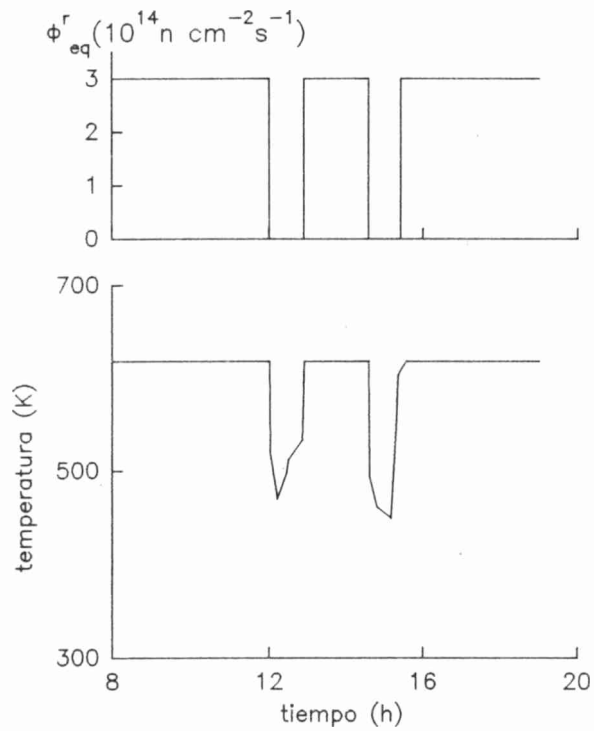


Fig. 4.4: Variaciones de flujo y temperatura de la probeta durante las paradas del reactor.

Al finalizar la experiencia, inmediatamente después de la caída de barras del reactor, se procedió a cambiar el gas de transferencia térmica por $\text{N}_2(\text{g})$ y se llevó el regulador de temperatura de modo que la temperatura de la probeta registrase nuevamente los 498 K tomados como la temperatura de referencia. El crecimiento neto total registrado en condiciones de reactor parado y a 498 K, fue de 1×10^{-4} .

4.4 Recuperación del crecimiento por irradiación de la probeta irradiada en el CNEA-RA3

Como se mencionó en 1.3, gran parte de los defectos puntuales y algunos aglomerados de defectos en estado de no equilibrio creados durante la irradiación, son configuraciones metaestables de la red que pueden ser eliminados por medio de recocidos térmicos. De este modo es posible dilucidar qué tipo de estructura de defectos se formó y contribuyó al comportamiento de la propiedad medida, en el presente caso el *crecimiento*, durante la irradiación del material.

En este trabajo, se intentó de determinar el *pico de recuperación* correspondiente a la Etapa V, es decir la temperatura a la que ocurre la disociación de los aglomerados de vacancias y/o intersticiales, de la probeta irradiada en el CNEA-RA3. En este sentido, la probeta fue sometida a un recocido pos-irradiación luego de montarla en un dispositivo de medición similar al descrito en 3.2.2.4, que se instaló en un equipo de recocido. Los recocidos se efectuaron bajo una presión de Ar(g) de 0,1 MPa.

Se realizaron recocidos isócronos cada 10 K hasta la temperatura de 758 K de 90 minutos de duración cada uno. La flecha se midió, luego de cada pulso a la temperatura de referencia fijada en 614 K. Como la temperatura máxima de operación del LVDT garantizada por el fabricante era de 773 K, a partir del pulso medido a 758 K, se continuó con recocidos isotérmicos a ésta temperatura hasta no detectar variación en la curvatura.

Con los recocidos isócronos se logró el 48% de la recuperación del crecimiento. En las 5 h de recocidos isotérmicos se alcanzó el 22%, totalizando un 70% de recuperación.

En la *Fig. 4.5* se presenta la curva de recuperación del crecimiento por irradiación de la probeta de ZrAl dopado con ^{235}U (50% trabajado en frío y liberado de tensiones, 2 h a 673 K) irradiada en el CNEA-RA3 hasta una dosis neutrónica equivalente de $1,3 \times 10^{24} \text{ n m}^{-2}$ ($e > 1 \text{ MeV}$). De la misma se puede inferir que el pico de recuperación de la Etapa V se encuentra por arriba de los 740 K.

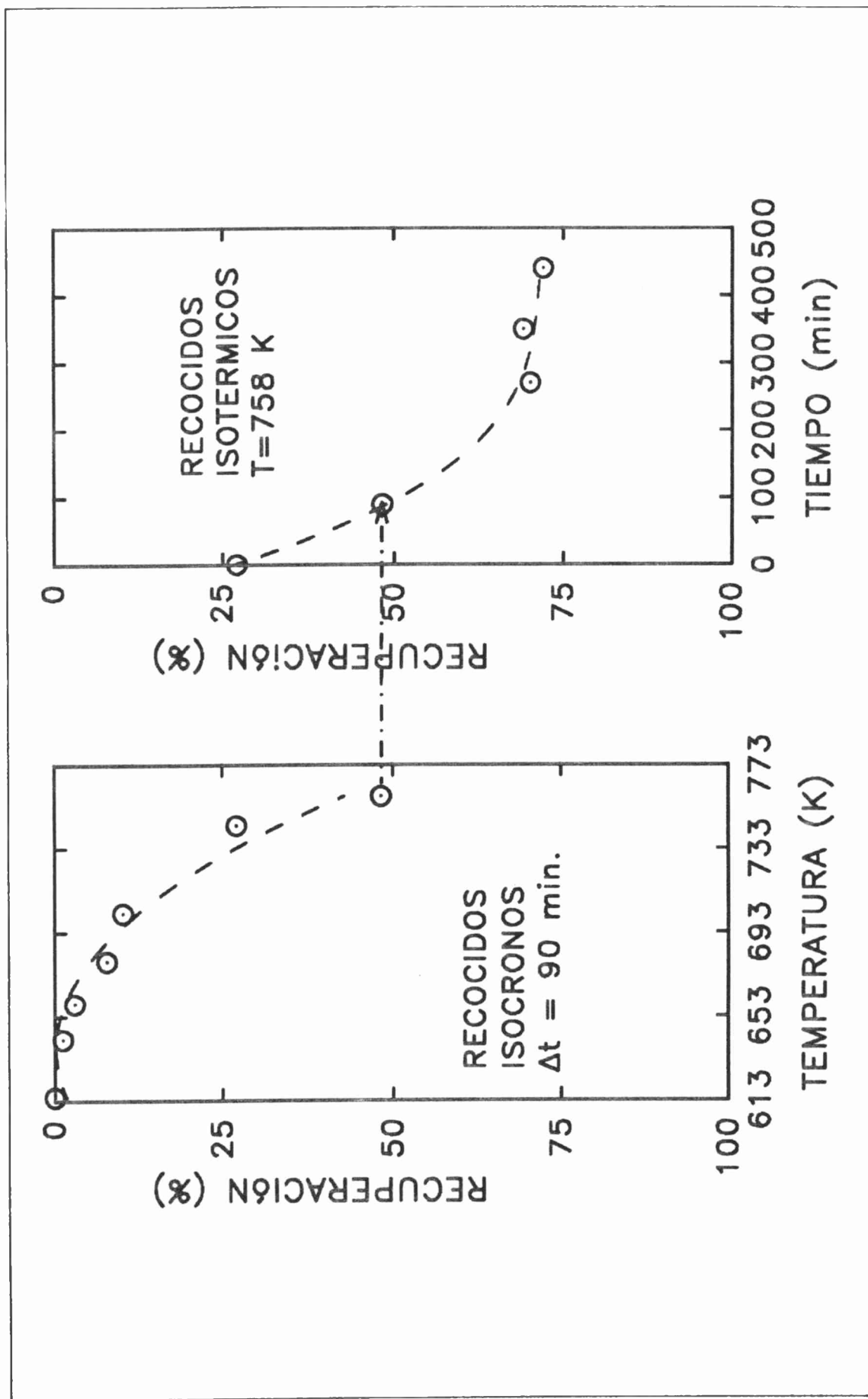


Fig. 4.5: Recuperación del crecimiento por irradiación en ZrAl dopado con ^{235}U irradiado a 618 K hasta una dosis neutrónica equivalente de $1,3 \times 10^{24} \text{ n m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$) en el CNEA-RA3.

4.5 Medición del crecimiento por irradiación en ZrAl-²³⁵U a 533 K en el reactor CNEA-RA1

Cuando se concluyó con la optimización del funcionamiento de la facilidad de irradiación instalada en el reactor CNEA-RA1, de acuerdo a 3.3.2.3, se montó la probeta a estudiar, ZrAl dopado con ²³⁵U recristalizada (2 h a 983 K) y se revisó el comportamiento de los sistemas de medición de deformación y de control de temperatura.

Se realizaron varios lavajes de la facilidad mediante sucesivas inyecciones y evacuaciones de N₂(g) de alta pureza utilizando el circuito de inyección de gases, Fig. 3.2.6. Finalmente, se presurizó con 300 g/cm², por encima de la presión atmosférica, de N₂(g) y, dado que se esperaba, con el reactor en funcionamiento, un aumento de la temperatura en ~ 10 K debido al calentamiento γ , se fijó la temperatura en el regulador de manera que la probeta registrase 528 K. Se dejó estabilizar el sistema durante 5 h hasta el inicio de la irradiación.

Cuando el reactor llegó a potencia, la temperatura de la probeta registró 533 K, valor que se mantuvo durante toda la irradiación.

En la Fig. 4.6 se presenta la cinética de crecimiento obtenida a lo largo de 26 días continuados de irradiación. En ella se ha eliminado el "salto" producido por las dilataciones relativas. En este caso se observa una velocidad de crecimiento, $\dot{\epsilon}_g$, inicial de ~ 10⁻⁹ s⁻¹ que cambia a ~ 6 x 10⁻¹¹ s⁻¹ hasta la dosis neutrónica equivalente de 0,33 x 10²³ n m⁻² (E > 1 MeV), a partir de la cual se observa una $\dot{\epsilon}_g$ que cambia lenta y continuamente hasta el valor de ~ 1,6 x 10⁻¹¹ s⁻¹ para la dosis neutrónica equivalente alcanzada en este experimento de 1,8 x 10²³ n m⁻² (E > 1 MeV). La deformación de crecimiento total a 533 K fue de 0,56 x 10⁻⁴.

El control de temperatura durante la experiencia fue de ± 0,2 K y la estabilidad de la señal de deformación fue de 2 mV (2 μm).

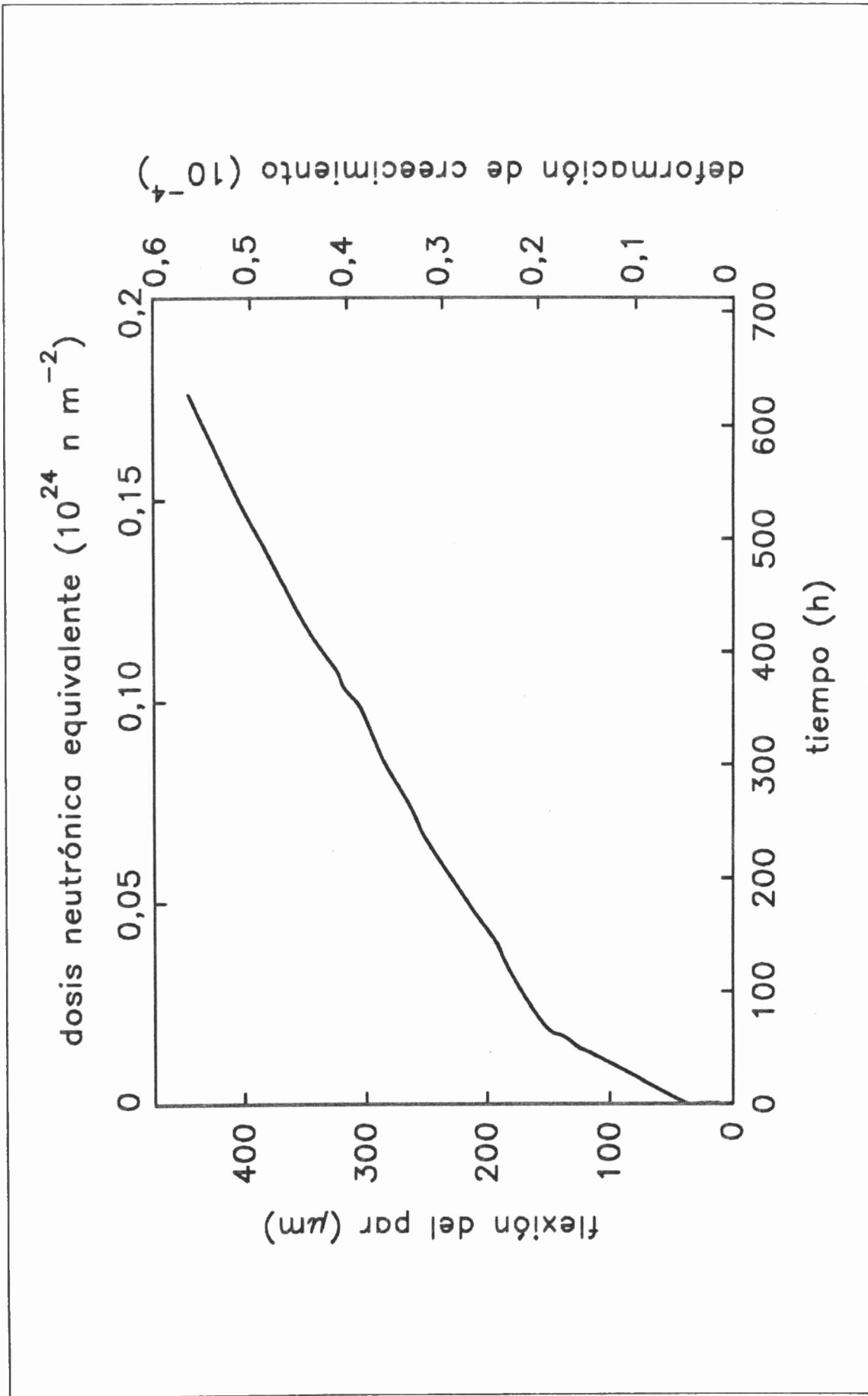


Fig. 4.6: Cinética de crecimiento por irradiación de ZrAl dopado con ²³⁵U irradiado a 533 K bajo un flujo de neutrones rápidos equivalente de $7,8 \times 10^{12} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ($E > 1 \text{ MeV}$) en el CNEA-RA1.

5 DISCUSIÓN

Se han realizado mediciones de cinéticas de crecimiento por irradiación *in situ* en dos especímenes de Zr-0,25 %at Al dopado con ^{235}U . Uno de ellos -50% trabajado en frío y liberado de tensiones (2 h a 673 K) y 20 μm de tamaño de grano- fue irradiado a 618 K en el reactor CNEA-RA3 bajo un flujo de neutrones rápidos equivalente de $3 \times 10^{14} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. El otro espécimen -completamente recristalizado (2 h a 983 K) y 15 μm de tamaño de grano- fue irradiado a 533 K en el reactor CNEA-RA1 bajo un flujo de neutrones rápidos equivalente de $7,8 \times 10^{12} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$.

Los especímenes fueron construidos en forma de pares bimetálicos a partir de dos aleaciones de circonio, una de ellas dopada con ~ 600 ppm de uranio natural y la otra con la misma concentración de ^{235}U . Estas aleaciones se obtuvieron mediante fusión por haz de electrones. Los análisis químicos detectaron iguales niveles de impurezas en ambas aleaciones, siendo éstos inferiores a los correspondientes a aleaciones comerciales de circonio de las que provienen la mayor parte de los datos de crecimiento publicados. Además, estudios por microsonda determinaron una distribución homogénea de los elementos constitutivos en muestras de ambas aleaciones.

El método experimental utilizado consiste en la medición continua de la deformación de crecimiento desde el comienzo de la irradiación mediante la flexión o curvatura (f) del espécimen, que se produce como consecuencia de su construcción y de su interacción con la radiación neutrónica. Entonces, es menester considerar dos amplificaciones, una derivada de la geometría del espécimen y la otra de la utilización de material fisionable para incrementar el ritmo del daño, según se presentó en **1.7**.

El cálculo de la flexión, f , de cada uno de los especímenes irradiados, basado en la teoría clásica de la elasticidad, conduce a una amplificación de la deformación de crecimiento igual a $\frac{f}{\Delta l} = 77$. La relación entre las velocidades de producción de defectos por los fragmentos

de fisión y por los neutrones rápidos ($E > 1 \text{ MeV}$) conduce además a una aceleración del daño en los especímenes irradiados en los reactores CNEA-RA3 y CNEA-RA1, de 15 y 12 veces respectivamente. Los cálculos de estas relaciones se han basado en el modelo NRT [27] para la determinación del número de desplazamientos atómicos producidos por cada átomo primario. Si bien este modelo aún es motivo de discusiones, es el que se utiliza para normalizar mediciones de crecimiento por irradiación efectuadas en distintos entornos de

irradiación. Así, tomando 25 eV como valor de la energía umbral de desplazamiento para el circonio [22,82,8], las estimaciones de las velocidades de daño para los presentes especímenes resultan 7×10^{-7} dpa s^{-1} para el irradiado en el CNEA-RA3 y $1,8 \times 10^{-8}$ dpa s^{-1} para el irradiado en el CNEA-RA1. Estos valores son comparables con las estimaciones presentadas en la *Tabla 2.3* [82], en donde se resumen las velocidades de daño por desplazamiento en circonio para diferentes tipos de reactores, en los que se han realizado gran parte de los ensayos para estudios de crecimiento por irradiación de literatura.

En estas condiciones, a partir de los experimentos presentes se puede deducir que, en ambas facilidades de irradiación instaladas en los reactores CNEA-RA3 y CNEA-RA1, para alcanzar un daño de 1 dpa se requiere una dosis de $4,4 \pm 0,1 \times 10^{24}$ n m^{-2} ($E > 1\text{MeV}$).

Se ha logrado medir la denominada Etapa I [8,152], o transiente inicial del comportamiento del crecimiento por irradiación a las temperaturas de irradiación de 618 K y 533 K, en Zr-0,25 %at Al dopado con ^{235}U en dos estados metalúrgicos diferentes. Las mediciones de deformación se realizaron en la dirección de trabajado o dirección longitudinal (DL). Esta dirección tiende a contener la mínima cantidad de polos basales y, recíprocamente, una gran concentración de polos de tipo $a\langle 11\bar{2}0 \rangle$ como se vió en 3.1.4. En esta dirección la deformación de crecimiento por irradiación del circonio y sus aleaciones es, en general, positiva [8,75,77,79,80,81,90].

Esta etapa del crecimiento abarca dosis de hasta 2×10^{24} n m^{-2} ($E > 1 \text{ MeV}$) según la temperatura de irradiación y según el tamaño de grano [80]. Se acepta generalmente que el comportamiento del crecimiento del circonio y sus aleaciones en esta etapa es independiente de su estado metalúrgico [75,90,8] y que se trata de un transiente de baja deformación ($\epsilon \sim 0,1\%$), en donde hay indicios de una ligera disminución de densidad [8,82,83].

5.1 Cinética de crecimiento del espécimen irradiado a 618 K en el CNEA-RA3

A partir de la cinética de crecimiento obtenida para el espécimen irradiado a 618 K en el reactor CNEA-RA3, *Fig. 4.3* y considerando que la temperatura de irradiación corresponde al límite entre las Etapa IV y V de recuperación, en donde las vacancias son móviles [198] y migran a diferentes sumideros, es factible que para el rango de dosis alcanzado, haya una competencia entre la nucleación de lazos de intersticiales y de vacancias y la migración de las vacancias. Éstas eventualmente, se recombinarán con los intersticiales o irán a otros sumideros, por ejemplo dislocaciones que comenzarán a trepar.

La recuperación térmica pos-irradiación de este espécimen presentada en la *Fig. 4.5*, permite inferir que el pico de recuperación se encuentra por encima de 740 K. Este rango de temperatura corresponde a la Etapa V de recuperación, donde se acepta generalmente la disociación térmica de los aglomerados de vacancias y/o intersticiales [199]. Entonces, se puede confirmar que los aglomerados de vacancias y de intersticiales aún son importantes en el crecimiento por irradiación a 618 K a las dosis alcanzadas. Sin embargo, el 30% de deformación de crecimiento que queda sin recuperar indica que efectivamente han comenzado otros mecanismos no recuperables relacionados a la interacción entre la estructura de defectos inducida por radiación y la red de dislocaciones intrínseca del material [90].

Durante las paradas del reactor se produce un retardo de la cinética de crecimiento; las causas más evidentes son: a) el cese de producción de defectos detiene naturalmente el proceso y se produce un rápido rearrreglo de los defectos preexistentes; b) este rearrreglo de los defectos y la abrupta disminución de la temperatura, del orden de ~ 290 K, ver *Fig. 4.4*, modifica notablemente el estado de tensiones intergranulares, lo que produce una componente de la deformación difícil de determinar pero indudablemente presente en el comportamiento [8.82,83].

Al disminuir la temperatura, los aglomerados de intersticiales no pueden disociarse, los intersticiales libres migran rápidamente a distintos sumideros y la vacancias -como consecuencia de su menor movilidad- probablemente se aglomeren y colapsen en lazos cuyos vectores de Burgers estén orientados en la dirección longitudinal del espécimen. Estos aglomerados, de unas pocas vacancias fueron propuestos como existentes, aunque no visibles, al explicar el crecimiento a bajas temperaturas [9,10].

Cuando se restablece la producción de defectos, se observa que la velocidad de crecimiento, $\dot{\epsilon}_g$, alcanza el valor previo al de las paradas y lo supera lentamente. Este hecho indica indudablemente el carácter transiente de esta etapa del crecimiento.

A partir de una dosis de 2×10^{24} n m⁻² ($E > 1$ MeV), se espera una dependencia lineal del crecimiento, con una velocidad ($\dot{\epsilon}_g$) que aumenta con el nivel de trabajado [90]. Por otra parte, mediciones de crecimiento por irradiación en Zircaloy-2 trabajado en frío muestran que a medida que aumenta la temperatura de irradiación desde 550 K hasta 670 K el ritmo de crecimiento disminuye, invirtiéndose este comportamiento a temperaturas superiores a 670 K [108]. El resultado para el espécimen irradiado en el CNEA-RA3 no se contradice con estas observaciones.

5.2 Cinética de crecimiento del espécimen irradiado a 533 K en el CNEA-RA1

La cinética de crecimiento obtenida para el espécimen irradiado a 533 K en el CNEA-RA1, en el rango de dosis alcanzado, $1,8 \times 10^{23} \text{ n m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$), muestra un comportamiento que puede ajustarse con la relación:

$$\epsilon_g = A(\phi t)^n \quad 5.1$$

que relaciona la deformación de crecimiento (ϵ_g) con la dosis neutrónica (ϕt), donde t es el tiempo en segundos, ϕ es el flujo de neutrones rápidos equivalente en $\text{n m}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Se encuentra que $n = 0,6$ y $A = 5,34 \times 10^{-19}$. En Zircaloy-2 irradiado a 553 K, se ha encontrado un comportamiento similar a éste hasta dosis de alrededor de $3 \times 10^{25} \text{ n m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$) [78,80].

En la *Fig. 5.1* se muestra la cinética de crecimiento obtenida para este espécimen junto con la correspondiente a la de un espécimen de ZrAl dopado con 0,1 %at de ^{235}U , también recristalizado, irradiado a 365 K en el CNEA-RA1 [9,10], obtenida con el mismo método de medición empleado en este trabajo.

Se observa que a 533 K las deformaciones de crecimiento son menores que a 365 K. Para el espécimen irradiado a 365 K se propuso un mecanismo en el cual, debido a la inmovilidad de las vacancias a esta temperatura [198,199], se formaban lazos de vacancias en los planos basales como consecuencia del colapso de las zonas diluídas, mientras que los intersticiales, aún muy móviles a esta temperatura, migraban y se nucleaban en los planos prismáticos [200]. En cambio a 533 K, la movilidad de la vacancia es varios órdenes de magnitud mayor que a 365 K [198,201,202], entonces la contribución de las vacancias a los lazos es menor puesto que un número considerable de ellas migrará a sumideros como bordes de grano.

Estos experimentos permiten verificar que las extrapolaciones hechas en literatura para la Etapa I del crecimiento por irradiación en circonio policristalino, Zircaloy-2 y Zircaloy-4 son correctas y, además, constituyen la única confirmación experimental de la hipótesis de Murgatroyd y Rogerson [91] de la formación, a temperaturas próximas a 550 K, de lazos de intersticiales submicroscópicos. Esta hipótesis estaba solamente basada en observaciones por TEM pero a temperaturas algo superiores, donde es posible su identificación [64]. A dosis mayores de $5 \times 10^{24} \text{ n m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$), estos lazos crecerán produciendo una inversión en los comportamientos, es decir deformaciones de crecimiento mayores a mayor temperatura de irradiación, como se puede ver en la *Fig. 2.1*.

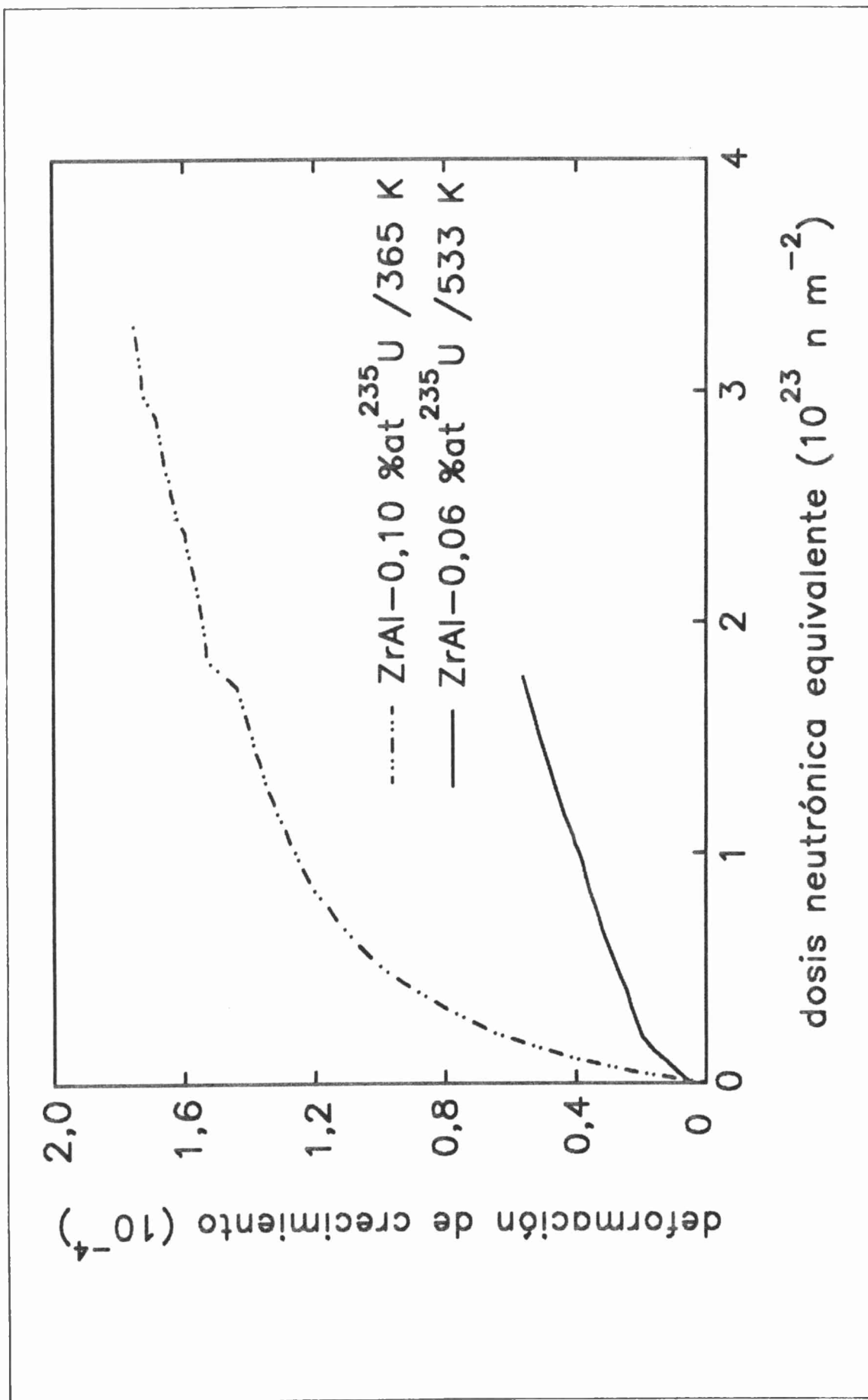


Fig. 5.1: Cinéticas del crecimiento por irradiación en especímenes recristalizados de ZrAl-0,10 %at ^{235}U y ZrAl-0,06 %at ^{235}U , obtenidas en el reactor CNEA-RA1 a 365 K y 533 K, respectivamente.

Entonces, a las dosis alcanzadas, los resultados experimentales obtenidos en este trabajo concuerdan con los resultados de experimentos de crecimiento realizados en especímenes irradiados directamente con neutrones rápidos. Se puede afirmar que, a las dosis alcanzadas, la estructura de daño generada por los fragmentos de fisión no es muy diferente de la generada por neutrones rápidos.

Se obtuvieron cinéticas de crecimiento a bajas dosis a través de una medición indirecta. Son necesarias irradiaciones más largas a fin de determinar la posibilidad de reproducir, mediante este método, el comportamiento de las etapas de crecimiento subsiguientes. Para flexiones mayores, componentes de tensiones externas tales como las inducidas en una de las ramas del par bimetálico por la otra, o alguna componente eventual de creep a la mayor temperatura de irradiación podrían modificar el comportamiento del crecimiento [203]. Estas componentes podrían contribuir de una manera importante a la redistribución de las tensiones internas, cuya relajación bajo irradiación puede ser considerado como una componente del crecimiento por irradiación [83,204].

6 CONCLUSIONES Y SUGERENCIAS PARA FUTUROS TRABAJOS

- La aceleración del daño neutrónico por los fragmentos de fisión es un método apropiado para producir crecimiento por irradiación en circonio y sus aleaciones.

- La medición del crecimiento por irradiación mediante la flexión continua de un par bimetalico, permite el estudio del crecimiento por irradiación desde el comienzo de la irradiación así como el estudio de los transientes provocados por las interrupciones de la irradiación.

- Las mediciones *in situ* permiten reducir los errores en las medidas de deformación que se observan en las realizadas mediante procedimientos posirradiación.

- Las cinéticas medidas permitieron verificar hipótesis de mecanismos responsables del crecimiento a bajas dosis, formuladas por otros investigadores como consecuencia de la falta de mediciones precisas.

A partir de los resultados alentadores de este trabajo, se proponen como posibilidades de futuros trabajos:

- Realizar irradiaciones más prolongadas en especímenes similares a los del presente trabajo para confirmar la validez del método de medición más allá del transiente inicial del crecimiento.

- Construir especímenes similares a los presentes con mayor concentración de ^{235}U con el fin de alcanzar una mayor aceleración del daño neutrónico por los fragmentos de fisión y medir con la técnica empleada el crecimiento por irradiación a altas temperaturas. Esto permitirá establecer la validez del método a dosis mayores.

- Comparar deformaciones de pares bimetalicos y especímenes individuales para obtener la componente aparente de crecimiento debida a la relajación de tensiones intergranulares.

1. S.H. Paine y J.H. Kittel, *Irradiation effects in uranium and its alloys*, en Proc. Int. Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy, U.N., Vol. 7, 1955. 445-454.
2. J.A. Horak y H.V. Rhude, *Irradiation growth of zirconium-plutonium alloys*, J. Nucl. Mater. 3 (1) (1961) 111-112.
3. S.N. Buckley, *Irradiation growth*, Proc. Int. Conf. on Properties of Reactor Materials and Effects of Radiation Damage, Gloucestershire, England, 1961, 413-429
4. S.F. Pugh, *The growth of alfa-uranium under irradiation*, Report AERE M/R 873 (AERE-Harwell, 1952).
5. L.L. Seigle y L.S. Opinsky, *Mechanisms of dimensional instability of uranium*, Nucl. Sci. Eng. 2 (1957) 38-48.
6. B. Hudson, *The crystallography and Burgers vectors of dislocations loops in α -uranium*, Philos. Mag. 10 (1964) 949-960.
7. H. Wiedersich, *Relation between void formation, irradiation creep and irradiation growth*, The Physical Metallurgy of Reactor Fuel Elements, Eds. J.E. Harris y E.C. Sykes, Metals Soc. London, 1973, 142-147.
8. R.A. Holt, *Mechanisms of irradiation growth of alfa-zirconium alloys*, Proc. Int. Conf. en Fundamental Mechanisms of Radiation-Induced Creep and Growth, Hecla Island, Canadá, 22-25 Jun. 1987, J. Nucl. Mater. 159 (1988) 310-338.
9. A.M. Fortis, *Crecimiento por irradiación a bajas dosis en circonio*, Tesis Doc. en Física, U.B.A., 1986.
10. H.C. González, A.M. Fortis y T.H. Blewitt, *Radiation-induced dimensional changes in zirconium*, J. Nucl. Mater. 108&109 (1982) 485-489.
11. C. Abromeit, *Aspects of simulation of neutron damage by ion irradiation*, J. Nucl. Mater. 216 (1994) 78-96.
12. A. Seeger, *On the theory of radiation damage and radiation hardening*, Proc. 2nd UN Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, 1958, vol. 6 (United Nations, New York, 1958) p. 250-273.
13. J.A. Brinkman, *On the nature of the radiation damage in metals*, J. Appl. Phys. 25 (1954) 961-970; *Production of atomic displacements by high energy particles*, Am. J. Phys. 24 (1956) 246-267.
14. J.B. Gibson, A.N. Goland, M. Milgram y G.H. Vineyard, *Dynamics of radiation damage*, Phys. Rev. 120 (4) (1960) 1229-1253.
15. R.H. Silsbee, *Focusing in collision problems in solids*, J. Appl. Phys. 28 (11) (1957) 1246-1250.
16. F. Seitz y J.S. Koheler, *Displacement of atoms during irradiation*, in Solid State Physics - Adv. in Research and Appl., Eds. F. Seitz y D. Turnbull, vol. 2 (Academic Press, 3rd Ed., 1962) 307-448.
17. G.H. Kinchin y R.S. Pease, *The displacement of atoms in solids by radiation*, Prog. Phys. 18 (1955) 1-51.

18. P. Ehrhart, P. Jung, H. Schultz y H. Ullmaier, Landolt-Börnstein, Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaften und Technik, Band 25, Atomare Fehlstellen in Metallen, Ed. H. Ullmaier, Springer-Verlag Berlin-Heidelberg 1991, pág. 7.
19. M.W. Thompson, *A direct measurement of the focusing energy for <110> collision sequences in gold*, Phys. Lett., 6 (1) (1963) 24-26.
20. Ching-Yeu Wei y D. N. Seidman, *The spatial distribution of self-interstitial atoms around depleted zones in tungsten ion irradiated at 10 K*, Phil. Mag. A, 43 (6) (1981) 1419-1439.
21. J.B. Gibson, A.N. Goland, M. Milgram y G.H. Vineyard, *Dynamics of radiation damage*, Phys. Rev. 120 (4) (1960) 1229-1253.
22. M. Griffiths, *Displacement energies for Zr measured in a HVEM*, J. Nucl. Mater. 165 (1989) 315-317.
23. M.W. Thompson, *Defects and Radiation Damage in Metals*, Cambridge University Press, Cambridge, 1969, pág. 107.
24. *Idem* Ref. 23, pág. 143.
25. P. Jung, B.R. Nielsen, H.H. Andersen, J.F. Bak, H. Knudsen, R.R. Coltman Jr., C.E. Klabunde, J.M. Williams, M.W. Guinan y C.E. Violet, *Defect production rates by electrons, ions and neutrons in cubic metals*, en Proc. 11th Int. Symp. on Effects of Materials on Radiation, Scottsdale, Ariz., 28-30 Jun. 1982, ASTM STP 782, (ASTM, Philadelphia, 1982) 963-982.
26. R.S. Averback, R. Benedek y K.L. Merkle, *Correlations between ion and neutron irradiations: defect production and stage I recovery*, J. Nucl. Mater. 75 (1978) 162-166.
27. M.J. Norgett, M.T. Robinson e I.M. Torrens, *A proposed method of calculating displacement dose rates*, Nucl. Eng. Des. 33 (1975) 50-54.
28. T.A. Gabriel, J.D. Amburgey y N.M. Greene, *Radiation-damage calculations: primary knock-on atom spectra, displacement rates and gas production rates*, Nucl. Sci. Eng. 61 (1976) 21-32.
29. N. Bohr, *The penetration of atomic particles through matter*, K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. 18 (8) (1948), citado por M.W. Thompson, *Defects and Radiation Damage in Metals*, Cambridge, 1969, pág. 97, por F. Seitz y J.S. Koheler (Ref.5) págs. 311, 317, 318, 338 y por todos los tratados de daño por radiación.
30. J. Lindhard, V. Nielsen y M. Scharff, *Approximation method in classical scattering by screened coulomb fields (Notes on Atomic Collisions I)*, K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. 36 (10) (1968) 1-32.
31. J. Lindhard, M. Scharff y H.E. Schiøtt, *Range Concepts and heavy ion ranges (Notes on Atomic Collisions II)*, K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. 33 (14) (1963) 1-40.
32. J. Lindhard, V. Nielsen, M. Scharff y P.V. Thomsen, *Equations governing radiation effects (Notes on Atomic Collisions III)*, K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. 33 (10) (1963) 1-42.
33. P. Gombás, *Statistische Behandlung des Atoms*, Handbuch der Physik, Ed. S. Flügge, vol. XXXVI (Springer, Berlin, 1956) 109-231.

34. K.B. Winterborn, P. Sigmund y J.B. Sanders, *Spatial distribution of energy deposited by atomic particles in elastic collisions*, K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. 37 (14) (1970) 1-73.
35. M.T. Robinson, *The theory of radiation induced defect production*, Radiation Damage in Metals, Seminario de la ASM, Eds. N.L. Petersen y S.D. Harkness, 1975, pág. 12.
36. W.S. Snyder y J. Neufeld, *Disordering of solids by neutron radiation*, Phys. Rev. 97 (1955) 1636-1646.
37. M.T. Robinson y I.M. Torrens, *Computer simulation of atomic displacement cascades in solids in the binary-collision approximation*, Phys. Rev. B. 9 (12) (1974) 5008-5024.
38. R.S. Averback, H. Horngming, T. Díaz de la Rubia y R. Benedek, *Molecular dynamics studies of displacement cascades*, J. Nucl. Mater. 179-181 (1991) 87-93.
39. J.R. Beeler, *Displacement spikes in cubic metals. I. α -iron, copper and tungsten*, Phys. Rev. 150 (1966) 470-487.
40. J.H. Kinney, M.W. Guinan y Z.A. Munir, *Defect production efficiencies in thermal neutron irradiated copper and molybdenum*, J. Nucl. Mater. 122&123 (1984) 1028-1032.
41. S.J. Zinkle y B.N. Singh, *Analysis of displacement damage and defect production under cascade damage conditions*, J. Nucl. Mater. 199 (1993) 173-191.
42. L.E. Rehn y P.R. Okamoto, *Production of freely-migrating defects during irradiation*, Mat. Sci. Forum 15-18 (1987) 985-1002.
43. H.L. Heinsich, *Correlation of mechanical property changes in neutron-irradiated pressure vessel steels on the basis of spectral effects*, J. Nucl. Mater. 178 (1991) 19-26.
44. L.R. Greenwood, *Neutron interactions and atomic recoil spectra*, J. Nucl. Mater. 216 (1994) 29-44.
45. Comunicación personal con el Dr. R. Calabrese (Area Coordinación Reactores-CAC), Junio 1995.
46. A.M. Weinberg y E.P. Wigner, *The Physical Theory of Nuclear Chain Reactors*, The University Chicago Press, Chicago, 3ª Edición, 1972.
47. S. Glasstone y A. Sesonske, *Nuclear Reactor Engineering*, D. Van Nostrand Co. Inc., 2ª Ed., New York, 1963, pág. 87.
48. T.J. Connolly, *Foundations of Nuclear Engineering*, Ed. J. Willey & Sons, Canada, 1978, pág. 335.
49. H. Derrien, G. de Saussure, N.M. Larson, L.C. Leal y R.B. Perez, *R-matrix analysis of the ^{235}U and ^{239}U* , Proc. Int. Conf. in Nuclear Data of Science and Technology, Mito, Japón, Mayo 30-Jun. 3, 1988, Ed. S. Igarassi, 83-86.
50. L.T. Chadderton y I. McC. Torrens, *Fission Damage in Crystals*, Ed. Methuen & Co. Ltd., Londres, 1969.
51. L.C. Northcliffe y R.F. Schilling, *Range and stopping-power tables for heavy ions*, Nuclear Data tables, Vol. 7, Nos. 3 y 4 (1970), Ed. K. Way, Academic Press, New York y London.

52. R.S. Averback y K.L. Merkle, *Radiation-annealing effects in energetic cascades*, Phys. Rev. B. 10 (9) (1977) 3860-3869.
53. R.C. Birtcher y T.H. Blewitt, *Cascade damage in nickel: production saturation and recovery*, J. Nucl. Mater. 152 (1988) 204-211.
54. T.H. Blewitt, *Low-temperature irradiation studies*, en Proc. 18th Summer School **Enrico Fermi** on Radiation Damage in Solids, (New York, Academic Press, 1962) págs. 654-660
55. T.H. Blewitt, R.R. Coltman, C.E. Klabunde y J.K. Redman, Solid State Division Annual Progress Report, ORNL-3017, UC-34, Physics and Mathematics, TID-4500, 15th Ed., 1960.
56. T.H. Blewitt, R.R. Coltman y C.E. Klabunde, *Volume changes induced by radiation in copper and aluminium*, Proc. Int. Conf. en Crystal Lattice Defects, 1962, J. Phys. Soc. Jpn. 18 Suppl III (1963) 283-287.
57. H.J. Wollenberger, *Production rates of Frenkel defects during low-temperature irradiations, Vacancies and Interstitials in Metals*, Proc. Int. Conf., Sept.23-28, 1968, Jülich, Alemania, Eds.: A. Seeger, D. Schumacher, W. Schilling y J. Diehl, North-Holland, Amsterdam, 1970, pág. 233.
58. R.C. Birtcher, T.H. Blewitt, B.S. Brown y T.L. Scott, *The study of defect saturation in copper with fission fragments*, Proc. Int. Conf. on Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals Vol I, Gatlinburg, Tennessee, USA, Oct. 6-10, 1975 (USDC, Springfield, 1976) 138-144.
59. B.S. Brown, T.H. Blewitt, T.L. Scott y A.C. Klank, *Low-temperature fast-neutron radiation damage studies in superconducting materials*, J. Nucl. Mater. 52 (1974) 215-228.
60. R.C. Birtcher y T.H. Blewitt, *Damage saturation effects on volume and resistivity changes induced by fission-fragment irradiation of copper*, J. Nucl. Mater. 98 (1981) 63-70.
61. F.W. Young Jr., *Interstitial mobility and interactions*, J. Nucl. Mater. 69&70 (1978) 310.
62. A. Barbu y G. Martin, *Radiation effects in metals and alloys*, Solid State Phenom. 30&31 (1993) pág. 197.
63. M. Griffiths, *A review of microstructure evolution in zirconium alloys during irradiation*, Proc. Int. Conf. en Fundamental Mechanisms of Radiation-Induced Creep and Growth, Hecla Island, Manitoba, Canadá, 22-25 Jun. 1987, J. Nucl. Mater. 159 (1988) 190-218.
64. D.O. Northwood, *Irradiation damage in zirconium and its alloys*, At. Energy Rev 15 (4) (1977) 593.
65. R.V. Hesketh, *Application of the generalized theory of yielding creep to irradiation creep in zirconium alloys*, J. Nucl. Mater. 26 (1968) 77-86.
66. R.V. Hesketh, *Non-linear growth in Zircaloy-4*, J. Nucl. Mater. 30 (1969) 219-220.
67. R.V. Hesketh, J.E. Harbottle, N.A. Waterman y R.C. Lobb, *Irradiation growth and creep in Zircaloy-2*, Proc. Symp. en Radiation Damage in Reactor Materials Vol. I, 2-6 Jun. 1969, Vienna, IAEA, Vienna, 1969, 265-383.

68. J.E. Harbottle, *The temperature and neutron dose dependence of irradiation growth in Zircaloy-2*, en *Irradiations Effects on Structural Alloys for Nuclear Reactor Applications*, ASTM STP 484, Am. Soc. for Testing and Materials, 1970, 287-299.
69. V. Fidleris, *The effect of cold-worked and stress-relieving on the irradiation growth behaviour of zirconium alloys*, *J. Nucl. Mater.* 46 (1973) 356-360.
70. P.A. Carlson, A. Russell y J.P. Schmidt, *Zircaloy-2 pressure tube experience at Handford N Reactor*, *Trans. Amer. Nucl. Soc.* Vol. 16 (1973), 98-99.
71. P.A. Ross-Ross, *In-reactor elongation of zirconium alloy pressure tubes*, *Trans. Amer. Nucl. Soc.* Vol. 16 (1973) 99-100.
72. D.O. Northwood, R.W. Gilbert, L.E. Bahen (Chalk River Nuclear Lab.-Canada), P.M. Kelly, R.G. Blake, A. Jostons (AAEC-Australia), P.K. Madden (Berkeley Nuclear Lab.-Reino Unido), D. Faulkner (Whiteshell Nuclear Research Estab.-Canada), W. Bell y R.B. Adamson (General Electric Co., Vallecitos Nuclear Center-EEUU), *Characterization of neutron irradiation damage in zirconium alloys-An international "round-robin" experiment*, *J. Nucl. Mater.* 79 (1979) 379-394.
73. R.B. Adamson, R.P. Tucker y V. Fidleris, *High-temperature irradiation growth in Zircaloy*, V Int. Conf. en Zirconium in the Nuclear Industry, 1980, Boston, USA, ASTM STP 754 (ASTM, Philadelphia, 1982), 208-234.
74. M. Griffiths, R.W. Gilbert, V. Fidleris, R.P. Tucker y R.B. Adamson, *Neutron damage in zirconium irradiated at 644 to 710 K*, *J. Nucl. Mater.* 150 (1987) 159-168.
75. R.A. Murgatroyd y A. Rogerson, *Irradiation growth in cold-worked Zircaloy-2*, Proc. IV Conf. en Zirconium in the Nuclear Industry, Stratford-upon-Avon, UK, Jun. 26-29, 1978, ASTM STP 681, ASTM, Philadelphia, 1979, 213-226.
76. A. Rogerson y R.A. Murgatroyd, *Effects of texture and temperature cycling on irradiation growth in cold-worked Zircaloy-2 at 353 K and 553 K*, *J. Nucl. Mater.* 80 (1979) 253-259.
77. R.A. Murgatroyd y A. Rogerson, *An assessment of the influence of microstructure and test conditions on the irradiation growth phenomenon in zirconium alloys*, *J. Nucl. Mater.* 90 (1980) 240-248.
78. A. Rogerson y R.A. Murgatroyd, *"Breakaway" growth in annealed Zircaloy-2 at 353 K and 553 K*, *J. Nucl. Mater.* 113 (1983) 256-259.
79. A. Rogerson, *Irradiation-induced dimensional changes in polycrystalline iodide zirconium and Zircaloy-2*, Proc. VI Int. Symp. en Zirconium in the Nuclear Industry, Vancouver, B.C., 28 Jun.-1 Jul. 1982, ASTM STP 824, (ASTM, Philadelphia, 1984) 394-408.
80. A. Rogerson, *Irradiation growth in zirconium and its alloys*, Proc. Int. Conf. en Fundamental Mechanisms of Radiation-Induced creep and Growth, Hecla Island, Manitoba, Canada, 22-25 Jun. 1987, *J. Nucl. Mater.* 159 (1988) 43-61.
81. V. Fidleris, *Irradiation growth in zirconium alloys; a review*, Report AECL-7053, AECL 1980.
82. V. Fidleris, R.P. Tucker y R. B. Adamson, *An overview of microstructural and experimental factors that affect the irradiation growth behavior of zirconium alloys*, VII Int. Conf. en Zirconium in the Nuclear Industry, Strasbourg, France, 24-27 Jun. 1985, ASTM STP 939 (ASTM, Philadelphia, 1987) 49-85.

83. V. Fidleris, *The irradiation creep and growth phenomena*, Proc. Int. Conf. en Fundamental Mechanisms of Radiation-Induced Creep and Growth, Hecla Island, Manitoba, Canada, 22-25 Jun. 1987, J. Nucl. Mater. 159 (1988) 22-42.
84. D.O. Northwood y R.A. Herring, *Irradiation growth of zirconium alloy nuclear reactor structural components*, J. Mater. Energy Systems 4 (4) (1983) 195-216.
85. V.F. Zelensky y E.A. Reznichenko, *Irradiation growth in metals and alloys*, en Modern Problems in Condensed Matter Sciences: "Physics of Radiation Effects in Crystals", Eds. R.A. Johnson y A. N. Orlov, North Holland (1986) 528-573.
86. R.G. Fleck, *In reactor deformation of CANDU pressure tubes*, Can. Metal. Quarterly. 18 (1979) 65-72.
87. Nuclear Engineering International, Julio 1990, pág. 31.
88. S.R. MacEwen y A.R. Causey, *Analysis of the interaction of fuel channels with the end shields in CANDU reactors*, Nucl. Tech. 44 (1979) 118-131.
89. Dr. C. Rodriguez, comunicación personal, Junio 1995.
90. R.B. Adamson, *Irradiation growth of Zircaloy*, Proc. III Int. Conf. en Zirconium in the Nuclear Industry, Quebec, Canada, 10-12 Agosto 1976, ASTM STP 633 (ASTM, Philadelphia, 1977) págs. 332-333.
91. R.A. Murgatroyd y A. Rogerson, *Irradiation growth in annealed Zircaloy-2*, J. Nucl. Mater. 79 (1979) pág. 305.
92. *Idem* Ref. 77, págs. 242-243.
93. *Idem* Ref. 91, pág. 309.
94. R.P. Tucker, V. Fidleris y R.B. Adamson, *High-fluence irradiation growth of zirconium alloys at 644 K to 725 K*, Proc. VI Int. Conf. en Zirconium in the Nuclear Industry, Vancouver, Canada, 28 Jun.-1 Jul. 1982, ASTM STP 824 (ASTM, Philadelphia, 1984) págs. 427-451.
95. *Idem* Ref. 80, Fig. 8 de pág. 52 y pág. 53.
96. *Idem* Ref. 82, págs. 78-79.
97. *Idem* Ref. 80, Fig. 10 de pág. 54.
98. *Idem* Ref. 94, págs. 446-447.
99. *Idem* Ref. 82, págs. 57-59, Figs. 4 y 5, Tabla 3.
100. C.D. Williams y R.W. Gilbert, *Fast-neutron damage in zirconium-based structural alloys*, Proc. Symp. en Radiation Damage in Reactor Materials Vol.I, 2-6 Jun. 1969, Vienna, IAEA, Vienna, 1969, págs. 240 y sig. y Fig. 6.
101. D.O. Northwood, *Comments on "in-pile dimensional changes in neutron irradiated zirconium base alloys"*, J. Nucl. Mater. 64 (1977) 316-319.
102. R.A. Holt y R.W. Gilbert, *c-Component dislocations in irradiated Zircaloy-2*, J. Nucl. Mater. 116 (1983) 127-130.

103. *Idem* Ref. 72, ver Tabla 4 de pág. 386.
104. G.J.C. Carpenter y D.O. Northwood, *The contribution of dislocation loops to radiation growth*, J. Nucl. Mater. 56 (1975) 260-266.
105. R.A. Holt y R.W. Gilbert, *c*-Component dislocations in annealed Zircaloy irradiated at about 570 K, J. Nucl. Mater. 137 (1986) 185-189.
106. M. Griffiths y R.W. Gilbert, *The formation of c-component defects in zirconium alloys during neutron irradiation*, J. Nucl. Mater. 150 (1987) 169-181.
107. M. Griffiths, R.W. Gilbert y G.J.C. Carpenter, *Phase instability, decomposition and redistribution of intermetallic precipitates in Zircaloy-2 and -4 during neutron irradiation*, J. Nucl. Mater. 150 (1987) 53-66.
108. A. Rogerson, *Irradiation growth in annealed and 25% cold-worked Zircaloy-2 between 353-673 K*, J. Nucl. Mater. 154 (1988) 276-285.
109. *Idem* Ref. 82, págs. 70-73, Figs. 17-19.
110. R.A. Holt, *Effect of microstructure on irradiation creep and growth of Zircaloy pressure tubes in power reactors*, J. Nucl. Mater. 82 (1979) 419-429.
111. Ver Fig. 9 de Ref. 82.
112. En Ref. 64 ver en particular la Tabla VII.
113. *Idem* Ref. 82, Fig. 3, págs 56-57.
114. A.R. Causey, C.H. Woo y R.A. Holt, *The effect of intergranular stresses on the texture dependence of irradiation growth of irradiation growth in zirconium alloys*, Proc. Int. Conf. en Fundamental Mechanisms of Radiation-Induced Creep and Growth, Hecla Island, Manitoba, Canadá, 22-25 Jun. 1987, J. Nucl. Mater. 159 (1988) 225-236.
115. *Idem* Ref. 80, pág. 56 y Fig. 15.
116. G.L. Miller, *Metallurgy of the Rarer Metals-2: Zirconium* (Butterworths Publ. Ltd., Londres, 1957), págs. 79-91.
117. G.J.C. Carpenter, R.A. Murgatroyd, A. Rogerson y J.F. Watters, *Irradiation growth of zirconium single crystals*, J. Nucl. Mater. 101 (1981) 28-37.
118. A. Rogerson y R.H. Zee, *High fluence irradiation growth in single crystal zirconium at 553 K*, J. Nucl. Mater. 151 (1987) 81-83.
119. R.H. Zee, G.J.C. Carpenter, A. Rogerson y J.F. Watters, *Irradiation growth in deformed zirconium*, J. Nucl. Mater. 150 (1987) 319-330.
120. *Idem* Ref. 80, págs. 49-53, ver Fig. 4.
121. *Idem* Ref. 119, Fig. 5.
122. *Idem* Ref. 80, Fig. 6.
123. *Idem* Ref. 82, pág. 74, Fig. 21 y Tabla 5.
124. *Idem* Ref. 77, pág. 245, Fig. 5.

125. *Idem* Ref. 80, pág. 59 y Fig. 18.
126. R.G. Fleck, R.A. Holt, V. Perovic y J. Tadros, *Effects of temperature and neutron fluence on irradiation growth of Zr-2,5wt% Nb*, Proc. Int. Conf. en Fundamental Mechanisms of Radiation-Induced Creep and Growth, Hecla Island, Manitoba, Canadá, 22-25 Jun. 1987, J. Nucl. Mater. 159 (1988) 75-85.
127. *Idem* Ref. 94, Fig. 4.
128. R.A. Holt, R.W. Gilbert y V. Fidleris, *Dislocation substructure in zirconium alloys irradiated in EBR-II*, Proc. XI Int. Conf en Effects of Radiation on Materials, ASTM STP 782 (ASTM, Philadelphia, 1982) 234-250. Ver pág. 238 y sig.
129. *Idem* Ref. 63, págs. 203 y 214.
130. R.H. Zee, A. Rogerson, G.J.C. Carpenter y J. Watters, *Effect of tin on the irradiation growth of polycrystalline zirconium*, J. Nucl. Mater. 120 (1984) 223-229.
131. A. Rogerson y R.H. Zee, *Irradiation growth in zirconium-tin alloys at 353 K and 553 K*, J. Nucl. Mater. 152 (1988) 220-224.
132. C.H. Woo, *Neutron-induced displacement damage analysis*, Report AECL-6189, Atomic Energy Canada Ltd., 1978.
133. G.R. Piercy, *The effect of the fast neutron spectrum on the rate and distribution of damage in zirconium*, J. Nucl. Mater. 29 (1969) 267-284.
134. J.H. Rosolowski, apéndice del trabajo de D. Lee y E.F. Koch, *Irradiation damage in Zircaloy-2 produced by high-dose ion bombardment*, J. Nucl. Mater. 50 (1974) 162-174.
135. P.M. Kelly, *Irradiation growth in zirconium*, Physical Metallurgy of Reactor Fuel Elements, Eds. J.E. Harris y E.C. Sykes (The Metals Soc., Londres, 1973) 123-126.
136. C.C. Dollins, *In-pile dimensional changes in neutron irradiated zirconium base alloys*, J. Nucl. Mater. 59 (1975) 61-76.
137. C.C. Dollins, *In-pile temperature dependence of the yield strength and growth of Zircaloy*, J. Nucl. Mater. 82 (1979) 311-316.
138. D. Fainstein-Pedraza, E.J. Savino y A.J. Pedraza, *Irradiation growth of zirconium-base alloys. Part I*, J. Nucl. Mater. 73 (1978) 151-168.
139. R.A. Holt y E.F. Ibrahim, *Factors affecting the anisotropy of irradiation creep and growth of zirconium alloys*, Acta Met. 27 (1979) 1319-1328.
140. A.J. Pedraza y D. Fainstein-Pedraza, *Irradiation growth of zirconium-base alloys. II. Annealed material*, J. Nucl. Mater. 88 (1980) 236-248.
141. R. Bullough, M.R. Hayns y C.H. Woo, *The sink strength of dislocation loops and their growth in irradiated materials*, J. Nucl. Mater. 84 (1979) 93-100.
142. C.H. Woo, *Irradiation creep due to climb-induced glide in an anisotropic dislocation structure*, J. Nucl. Mater. 98 (1981) 295-305.
143. R. Bullough y M.H. Wood, *Mechanisms of radiation induced creep and growth*, J. Nucl. Mater. 90 (1980) 1-21.

144. G.M. Hood, *Point defect diffusion in α -Zr*, J. Nucl. Mater. 159 (1988) 149-175.
145. S.R. MacEwen y G.J.C. Carpenter, *Calculations of irradiation growth in zirconium*, J. Nucl. Mater. 90 (1980) 108-132.
146. R.A. Holt, *Microstructure dependence of irradiation creep and growth of zirconium alloys*, J. Nucl. Mater. 90 (1980) 193-204.
147. G.V. Kidson, *Vacancy-interstitial recombination coefficients in radiation-induced growth models*, J. Nucl. Mater. 118 (1983) 115-120.
148. P.M. Kelly comunicación privada a R.A. Holt, 1981, Ref. 8.
149. H. Wiedersich y S.R. MacEwen, *Solute effects on radiation-induced creep and growth*, J. Nucl. Mater. 90 (1980) 175-168.
150. R. Bullough y M.H. Wood, *On the effect of temperature cycling on the irradiation growth in cold-worked Zircaloy-2*, J. Nucl. Mater. 87 (1979) 196-199.
151. C.H. Woo, *Intrinsic bias differential between vacancy loops and interstitial loops*, J. Nucl. Mater. 107 (1982) 20-30.
152. H.J. Willard, Jr., *Irradiation growth of Zircaloy (LWBR Development Program)*, Proc. VI Int. Symp. en Zirconium in the Nuclear Industry, Vancouver, B.C., 28 Jun.-1 Jul. 1982, ASTM STP 824, (ASTM, Philadelphia, 1984) 452-480.
153. *Idem* Ref. 83, Fig. 30, pág. 39, en donde se comparan los resultados de Ref. 77 y de Ref. 126.
154. M. Griffiths, R.W. Gilbert y C.E. Coleman, *Grain boundary sinks in neutron-irradiated Zr and Zr-alloys*, Proc. Int. Conf. en Fundamental Mechanisms of Radiation-Induced Creep and Growth, Hecla Island, Manitoba, Canadá, 22-25 Jun. 1987, J. Nucl. Mater. 159 (1988) 22-42.
155. B.L. Adams, G.S. Clevinger y J.P. Hirth, *An upper-bound evaluation of interactive creep and growth in textured Zircaloy*, J. Nucl. Mater. 90 (1980) 75-88.
156. E.J. Savino y C.E. Laciana, *Radiation induced creep and growth of zirconium alloys*, J. Nucl. Mater. 90 (1980) 89-107.
157. C.H. Woo, *Polycrystalline effects on irradiation creep and growth in textured zirconium*, J. Nucl. Mater. 131 (1985) 105-117.
158. R.A. Holt y A.R. Causey, *The effects of intergranular constraints on irradiation growth of Zircaloy-2 at 320 K*, J. Nucl. Mater. 150 (1987) 318.
159. S.R. MacEwen, J.Faber Jr. y A.P.L. Turner, *The use of time-of-flight diffraction to study grain interaction stresses*, Acta Met. 31 (5) (1983) 657-676.
160. C.J. Ball, *The contribution of the intrinsic anisotropy of point defect diffusion rates to irradiation growth of zirconium*, J. Nucl. Mater. 101 (1981) 147-149.
161. C.H. Woo y U. Gösele, *Dislocation bias in an anisotropic diffusive medium and irradiation growth*, J. Nucl. Mater. 119 (1983) 219-228.

162. C.H. Woo, *Theory of irradiation deformation in non-cubic metals: Effects of anisotropic diffusion*, Int. Conf. en Fundamental Mechanisms of Radiation Induced Creep and Growth, Manitoba, Canadá, 22-25 Jun. 1987, J. Nucl. Mater. 159 (1988) 237-256.
163. *Idem* Ref. 82, págs. 61-64 y Fig. 10.
164. R.A. Holt, C.H. Woo y C.K. Chow, *Production bias - A potential driving force for irradiation growth*, J. Nucl. Mater. 205 (1993) 293-300.
165. H.C. González, *Endurecimiento por irradiación con neutrones rápidos en monocristales de magnesio, zinc y cobre a 77 K*, Tesis de Doctorado en Física, UNC-CNEA, 1973.
166. H.C. González, T.H. Blewitt y E.A. Bisogni, *Micromáquina de tracción y criostato que operan en el reactor RA1 (CNEA)*, CNEA-NT 29/76, 1976.
167. J.A. Horak y T.H. Blewitt, *Isochronal recovery of fast neutron irradiated metals*, J. Nucl. Mater. 49 (1973/74) 161-180.
168. G.D.H. Cocoz, A.M. Fortis y H.C. González, *Fabricación de aleaciones ZrAl-²³⁵U y ZrAl-²³⁸U y elaboración de probetas para medición de crecimiento por irradiación neutrónica*, 1985, Informe Reservado de la División Daño por Radiación (DM-CAC-CNEA).
169. E.A. Douce, Informe No. 850.317-1, 1985, Dpto. Química (GD-DIA-CNEA).
170. J. Divito, comunicación personal, 1983, PPAE-CNEA.
171. C.B. Alcock, K.T. Jacob y S. Zados, "Thermomechanical Properties", Zirconium: Physico - Chemical Properties of its Compounds and Alloys, Ed. O. Kubaschewski, Atomic Energy Review, Special Issue No. 6, IAEA, (Vienna, 1976).
172. E. Tenckhoff, "Deformation, mechanisms, texture and anisotropy in zirconium and Zircaloy-2", Special Technical Publication, ASTM STP 966 (Philadelphia, 1988).
173. B.A. Cheadle, C.E. Ells y W. Evans, *The development of texture in zirconium alloy tubes*, J. Nucl. Mater. 23 (1967) 199-208.
174. B.A. Cheadle, *The Physical Metallurgy of Zirconium*, Report CRNL-1208, Chalk River, Ontario, 1974.
175. E. Tenckhoff, *A review of texture and texture formation in Zircaloy tubing*, Proc. V Conf. en Zirconium in the Nuclear Industry, 1980, Boston, USA, ASTM STP 754 (ASTM, Philadelphia, 1982) 5-25.
176. Comunicación personal con la Dra. M. Ortiz, marzo 1995.
177. Las metalografías, micrografías y determinaciones del tamaño de grano fueron realizadas por la Srta. B.S Bermúdez de la Div. Metalografía del Dpto. de Materiales (AM-CAC-CNEA).
178. *Directory of Nuclear Reactors, Vol.10: Power and Research Reactors*, Int. Atomic Energy Agency (IAEA), Vienna, 1976, págs. 327-333.
179. L.C. de Porto, M.T. Bang, J.J. Gil Gigerbino, *Flujo de neutrones en el núcleo y facilidades de irradiación del RA3, CNEA, Re-57* (1971).

180. H.C. González y A.M. Fortis, *Facilidad para irradiar a altas temperaturas en el reactor RA3*, CNEA-DI 1/89, 1989.
181. Informe Técnico, Dto. SATI-CNEA (1979).
182. E. Mezzabolta, *Dispositivo para la realización de experiencias de irradiación con neutrones en materiales no fisionables (diseño, construcción y operación)*, Informe Interno. Div. Daño por Radiación, marzo 1976.
183. G.D.H. Cocoz, A.M. Fortis y H.C. González, *Performance de la facilidad y del dispositivo de crecimiento por irradiación instalados en el RA3 - Cinética de crecimiento en Zr a 340 °C*, Informe Interno N°16-DR-PG3-RA3, 1989.
184. E.E. Herceg, *Handbook of Measurement and Control*, Schaevitz Eng., 3a. Ed. 1983.
185. L. Porto y M. Banch, Procedimiento RA3-8-024, *Variación de reactividad*, agosto 1987.
186. A.M. Fortis y H.C. González, Procedimiento RA3-8-024, *Crecimiento por irradiación*, octubre 1987.
187. Informe de Seguridad del RA1 para Licenciamiento de Reactores Experimentales, 1991.
188. M.D. Bovisio de Ricabarra, *Verificación de las características de irradiación en el RA1*, CNEA-Re-144, 1977.
189. S. Timoshenko, *Resistencia de Materiales*, Ed. Espasa-Calpe, 1970.
190. *Idem* Ref. 189, págs. 85-87.
191. *Idem* Ref. 116, Capítulo 9: Mechanical Properties of Zirconium, págs. 186-190.
192. J.C.D. Milton y J.S. Fraser, *Time of Flight Fission Studies on U-233, U-235 and Pu-239*, AECL-1618, 1962.
193. W.H. Walker y A. Hébert, *Fissprod 3 - An Expanded Fission Product Accumulation Program using ENDF/B-V Decay Data*, Ed. M. Milgram, AECL-6973, 1982.
194. *Idem* Ref. 23, pág. 149.
195. L. Porto y M.D. B. de Ricabarra, Comunicación personal, 1988.
196. Zou Yiming, Ma Gonggui y Wang Shiming, *Evaluation of neutron nuclear data of natural zirconium*, Comm. Nucl. Data Progress, 6 (1991) 158-167.
197. D. Weissman, Comunicación personal, 1994.
198. W. Frank, *Intrinsic point defects in hexagonal close-packed metals*, Proc. Int. Conf. en Fundamental Mechanisms of Radiation-Induced Creep and Growth, Hecla Island, Canadá, 22-25 Jun. 1987, J. Nucl. Mater. 159 (1988) 122-148.
199. *Idem* Ref. 18, pág. 101.
200. H.C. González, A.M. Fortis y G.D.H. Cocoz, *Recovery of irradiation growth in annealed Zr-1.5 at% Al*, J. Nucl. Mater. 158 (1988) 235-239.

201. G.M. Hood, R.J. Schultz y J.A. Jackman, *The recovery of single crystal α -Zr from low temperature electron irradiation - A positron annihilation spectroscopy study*, J. Nucl. Mater. 126 (1984) 79-82.
202. G.M. Hood y R.J. Schultz, *Defect recovery in electron-irradiated α -Zr single crystals: a positron annihilation study*, J. Nucl. Mater. 151 (1988) 172-180.
203. J.P. Parsons y C.W. Hoelke, *The cantilever beam method for simulating irradiation creep and growth*, Proc. of 14th Int. Symp en: Effects of Radiation on Materials, Vol. II, Andover, MA, USA, 27-30 Jun. 1988, ASTM STP 1046, (ASTM, Philadelphia, 1990) p. 588.
204. R.A. Holt, T.M. Holden, A.R. Causey y V. Fidleris, *Intergranular constraints in polycrystalline Zircaloy-2*, Proc. 10th Risø Int. Symp. on Metallurgy and Materials Science: Materials Architecture, Eds.: J.B. Bilde-Sørensen, N. Hansen, D. Juul Jensen, T. Leffers, H. Liholt, O.B. Pedersen, Risø National Laboratory, Roskilde, Denmark, 1989, p. 383.

APÉNDICE A

A.1 Vista y esquema de los componentes del reactor de la CNA-I fabricados en aleaciones de circonio.

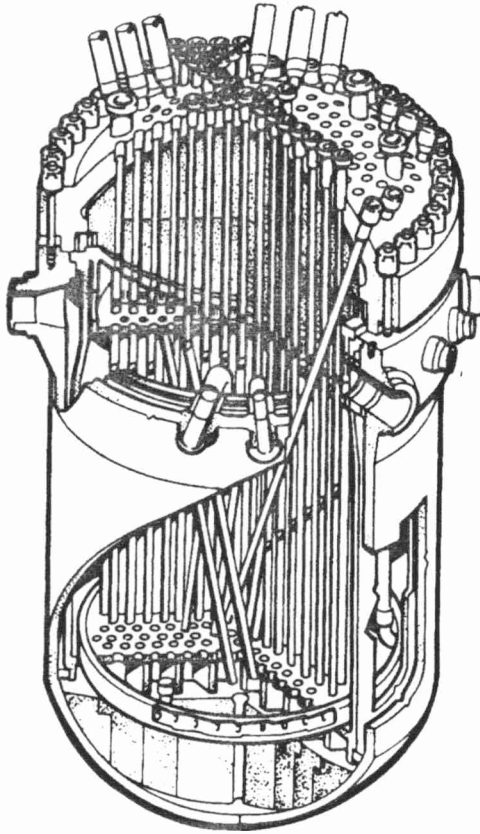
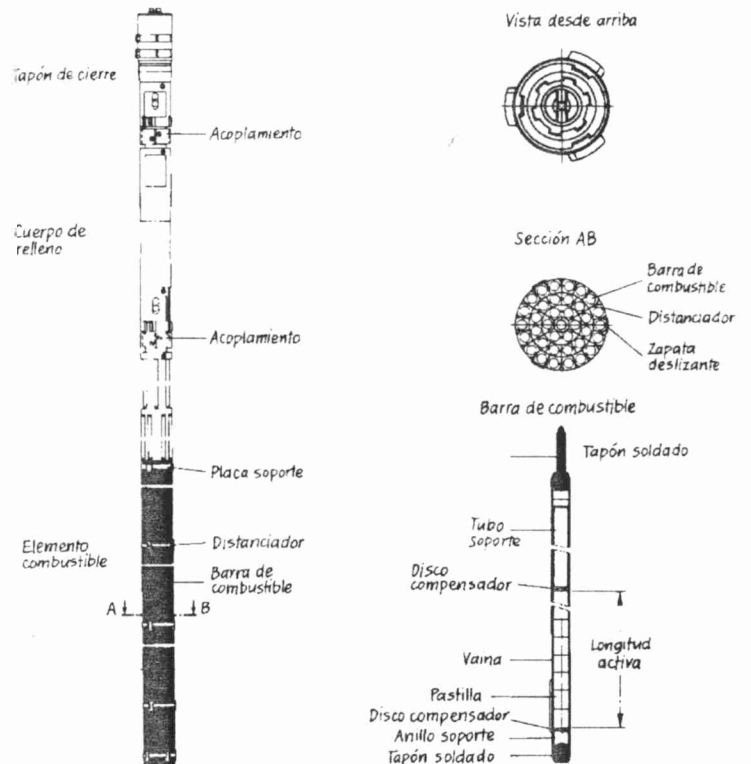


Fig. A.1.1: Corte del recipiente de presión del reactor de CNA-I.

Fig. A.1.2: Columna de combustible.



A.2 Vista general y esquema de los componentes del núcleo del reactor de la CNE.

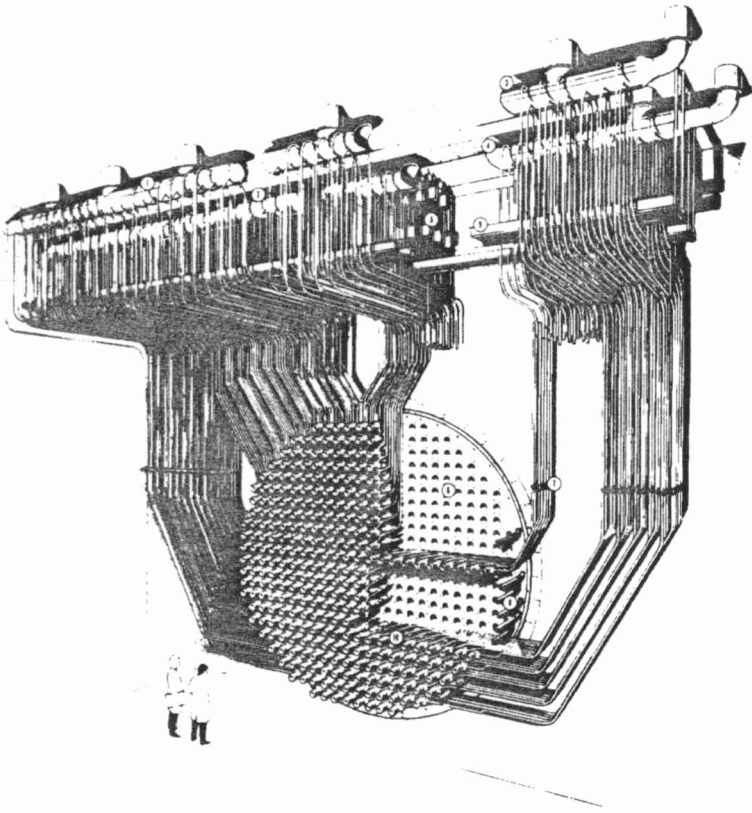


Fig. A.2.1: Vista general del reactor CANDU.

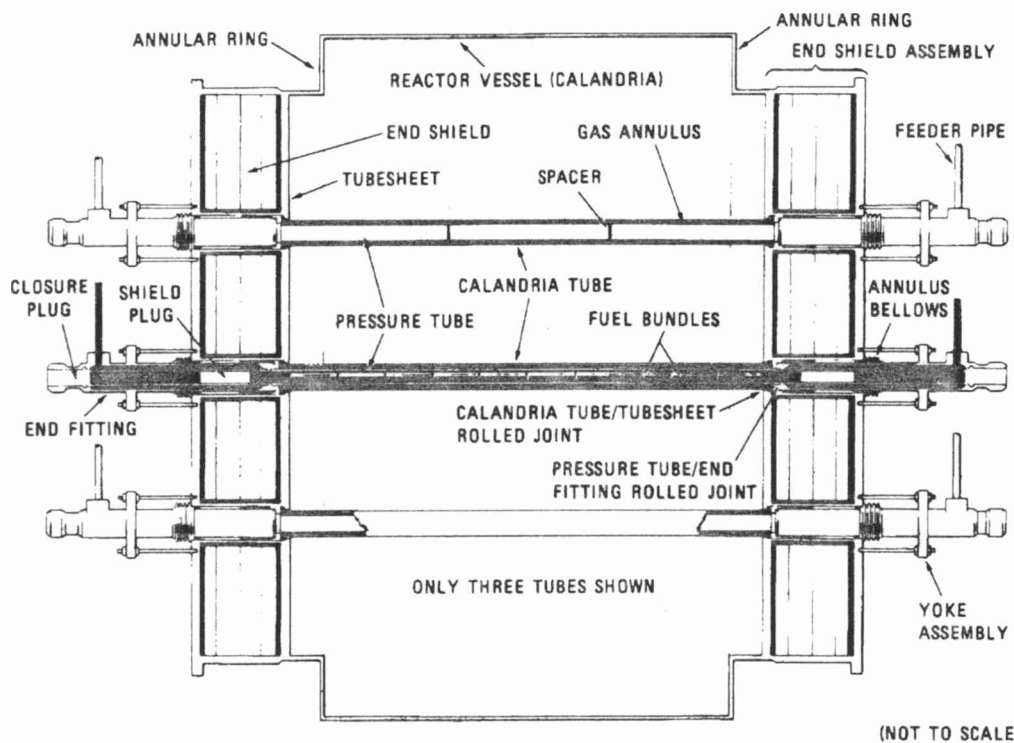


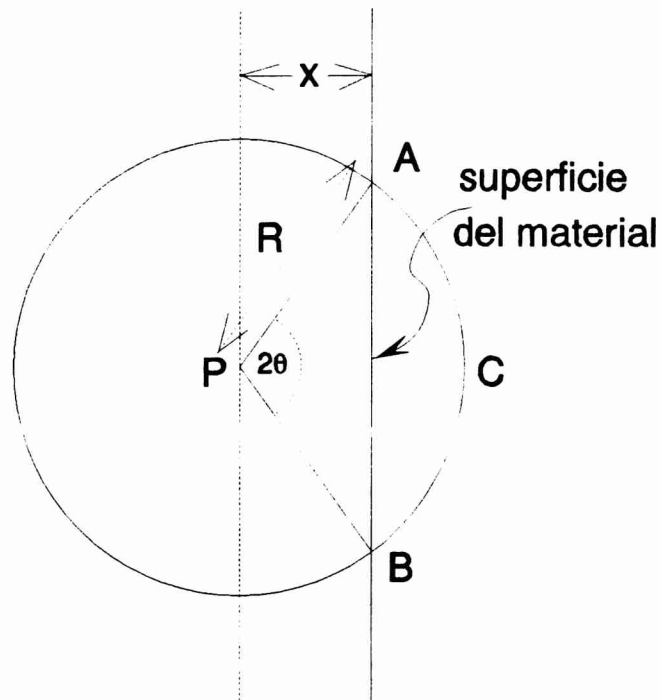
Fig. A.2.2: Diagrama simplificado de los componentes del núcleo del reactor CANDU.

APÉNDICE B

B.1 Escape de los fragmentos de fisión

Los fragmentos de fisión que se originan a una distancia R , o *rango*, de la superficie del material pueden escapar del mismo. R es el rango del fragmento dentro del material y puede encontrarse en las tablas de poder de frenamiento para iones pesados [39].

Para calcular la fracción de todos los fragmentos de fisión originados dentro de una distancia R de la superficie que escapan, consideraremos el siguiente esquema:



como cada fragmento puede eyectarse en cualquier dirección, y como el fragmento compañero se eyecta en la dirección opuesta para conservar el momento, la probabilidad que uno u otro fragmento escape de la superficie del material está dada por el cociente entre la porción del volumen de la esfera de radio R subtendida por el ángulo 2θ y el volumen total de la esfera. Considerando a la primera formada por un cono de arista R y altura x y un segmento esférico de radio R y altura $(R - x)$:

$$p(x) = \frac{\frac{1}{3} \pi (R^2 - x^2)x + \pi (R - x)^2 \left[R - \frac{R - x}{3} \right]}{\frac{4}{3} \pi R^3}$$

B.1.1

desarrollando se llega a la siguiente expresión:

$$\rho(x) = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{x}{R} \right) \quad \text{B.1.2}$$

entonces, la fracción de todos los fragmentos de fisión que se originan dentro de una distancia R de la superficie y pueden escapar es:

$$\frac{1}{R} \int_0^R \rho(x) dx = \frac{1}{4} \quad \text{B.1.3}$$

Para un espécimen rectangular de longitud l , ancho a y espesor e , se encuentra que la fracción de fragmentos que pueden escapar del mismo es,

$$\frac{R}{4} \left(\frac{1}{l} + \frac{1}{a} + \frac{1}{e} \right) \quad \text{B.1.4}$$

(despreciando los términos de orden superior en R).

Entonces, utilizando esta expresión, se puede estimar la fracción de fragmentos de fisión que se escaparon de los especímenes irradiados en los reactores CNEA-RA3 y CNEA-RA1. Para ello, en primer lugar se evalúa el número total de fragmentos de fisión que se produjeron durante las irradiaciones, en el espécimen de dimensiones 12 cm x 0,3 cm x 0,05 cm (varilla dopada con ^{235}U) mediante:

$$N_{ff} = 2 \times N(\dot{a}t^{235}\text{U}) \sigma_f \phi_t t V \quad \text{B.1.5}$$

en donde el factor 2 considera los dos fragmentos que se producen por cada evento de fisión, $N(\dot{a}t^{235}\text{U})$ es el número total de átomos de ^{235}U por unidad de volumen del espécimen (que se estima como $2,57 \times 10^{19}$ át/cm³, considerando una concentración atómica de ^{235}U del 0,06%), σ_f es la sección eficaz de fisión del ^{235}U (de *Tabla 1.5* se toma 583 barn), ϕ_t es el flujo de neutrones térmicos, t es el tiempo total de irradiación y V es el volumen total del espécimen (0,18 cm³):

Tabla B.1: Número de fragmentos de fisión producidos en ambos experimentos.

| Probeta irradiada en: | CNEA - RA3 | CNEA - RA1 |
|--|----------------------|----------------------|
| ϕ_t (n cm ⁻² s ⁻¹) | 2×10^{13} | $0,5 \times 10^{12}$ |
| t (s) | $4,365 \times 10^5$ | $2,2583 \times 10^6$ |
| N_{ff} | $4,7 \times 10^{16}$ | $6,1 \times 10^{15}$ |

Mediante la expresión **B.1.4**, se encuentra que, para las dimensiones de nuestras probetas, la fracción de fragmentos de fisión que escapan es $f = 7,9 \times 10^{-3}$, en donde se ha tomado $R = 1,35 \times 10^{-3}$ cm como un promedio entre el rango del fragmento de fisión *liviano* ($M = 95$ uma, $E = 145$ MeV, $R = 18,5 \mu\text{m}$) y el rango del fragmento *pesado* ($M = 140$ uma, $E = 55$ MeV, $R = 8,5 \mu\text{m}$) [39]. Finalmente, mediante el producto $N_f \times f$ se obtiene la cantidad de fragmentos que han escapado de las probetas irradiadas en los reactores CNEA-RA3 y CNEA-RA1 son $3,7 \times 10^{14}$ y $4,8 \times 10^{13}$, respectivamente. Considerando las masas de los fragmentos, la cantidad de material activado que pudo depositarse en la superficie de la probeta y/o contaminar la facilidad resulta $0,072 \mu\text{g}$ en la irradiada en el CNEA-RA3 y $0,01 \mu\text{g}$ en la irradiada en el CNEA-RA1.

B.2 Estimación de la actividad

La actividad producida por un isótopo producto de fisión particular que se escapa del espécimen (pudiendo contaminar la facilidad) al tiempo t de haber comenzado la irradiación se estimó utilizando la relación:

$$A(t) = \frac{A_o}{3,7 \times 10^{10}} (1 - e^{-\lambda t}) \text{ Ci} = \frac{y f \sigma N}{3,7 \times 10^{10} \lambda} (1 - e^{-\lambda t}) \text{ Ci} \quad \text{B.2.1}$$

para aquéllos isótopos que tienen un rendimiento, y , mayor que el 1% alrededor de los dos picos de la *curva de rendimiento de la fisión por neutrones térmicos del ^{235}U* , f es la fracción de fragmentos de fisión que escapan, tal como se evaluó en **B.1**, σ es la sección eficaz del proceso (n,γ) para cada uno de los isótopos considerados, N es el número de isótopos producidos en el espécimen y λ es la constante de desintegración. Se consideraron aquéllos isótopos productos de fisión con período de semidesintegración mayor de 30 días: $^{89}\text{Sr}_{38}$, $^{91}\text{Y}_{39}$, $^{95}\text{Zr}_{40}$, $^{103}\text{Ru}_{44}$, $^{106}\text{Ru}_{46}$, $^{134}\text{Cs}_{55}$, $^{137}\text{Cs}_{55}$, $^{144}\text{Ce}_{58}$ y $^{147}\text{Pr}_{59}$. En estas condiciones, se encuentra que para la probeta irradiada en CNEA-RA3 la fracción de fragmentos de fisión que escapan a la facilidad producen una actividad de $0,8$ mCi y $500 \mu\text{Ci}$, al momento de terminar el experimento y a los 30 días posteriores (loop retirada del reactor) respectivamente y en el caso de la probeta irradiada en el CNEA-RA1, $3,4$ mCi y 2 mCi, respectivamente.

APÉNDICE C

C.1 Facilidad de irradiación instalada en el CNEA-RA3 en funcionamiento

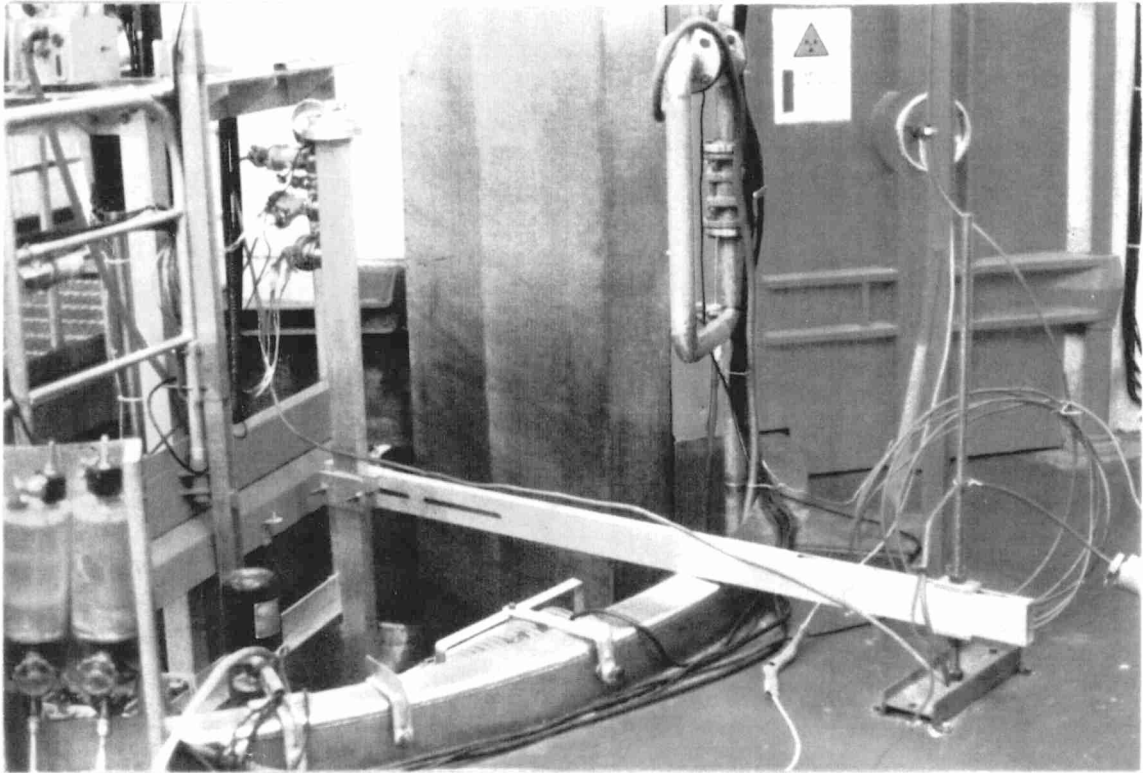


Fig. C.1.1: Parte superior de la facilidad.

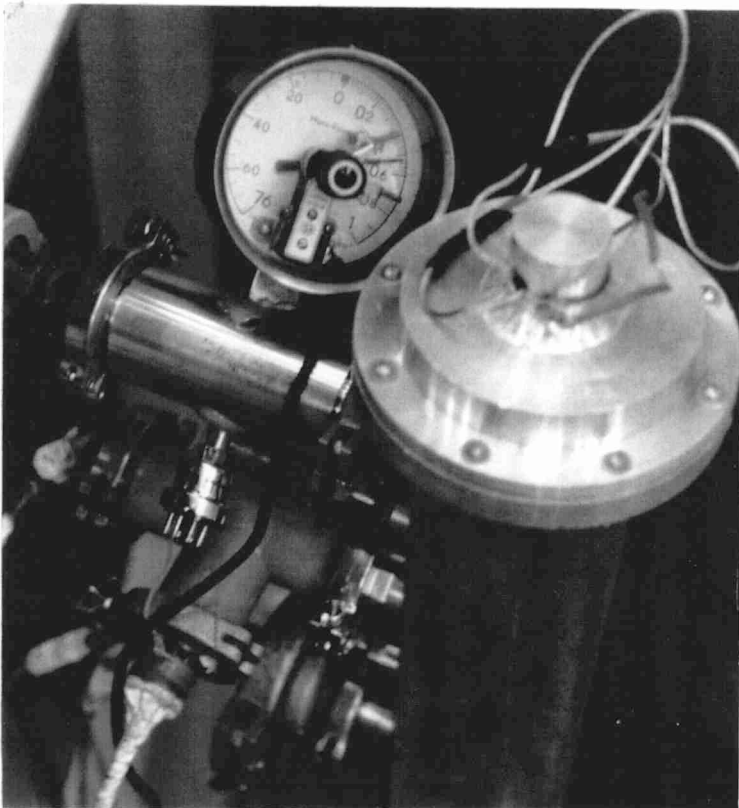


Fig. C.1.2: Extremo superior de la facilidad.



Fig. C.1.3: Panel de control.



Fig. C.1.4: Facilidad en funcionamiento en el CNEA-RA3.

C.2 Facilidad de irradiación instalada en el CNEA-RA1 en funcionamiento

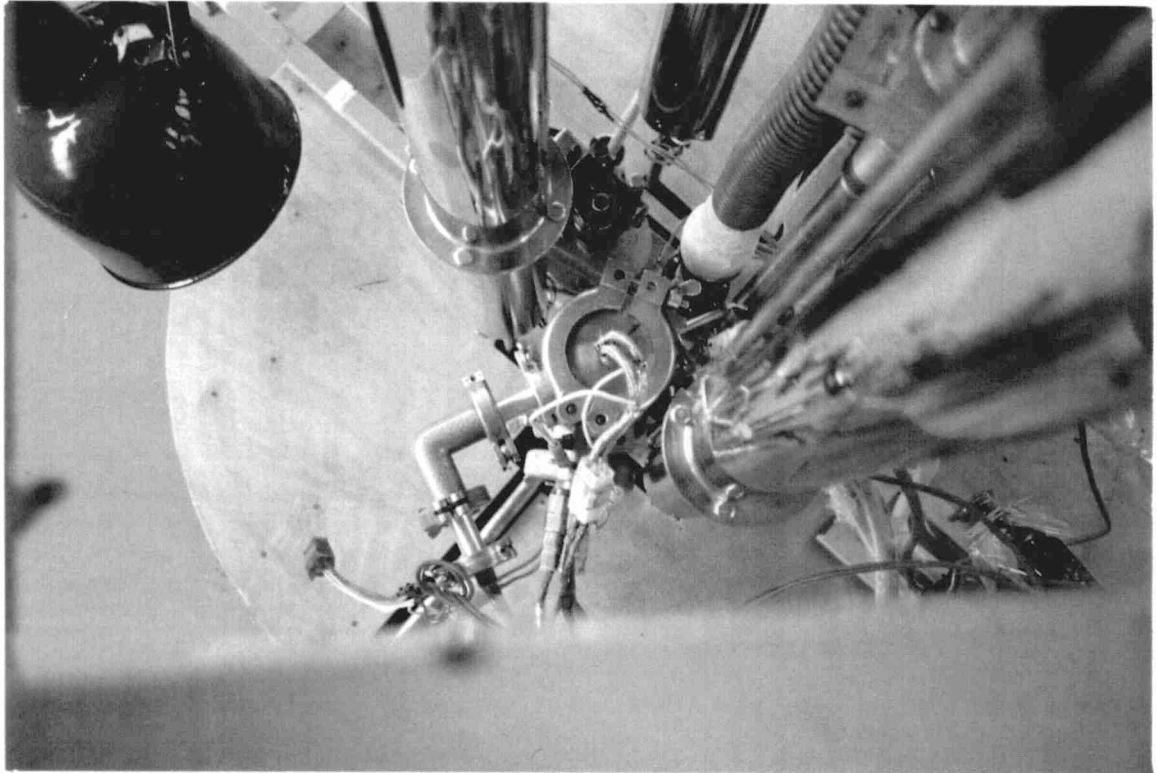


Fig. C.2.1: Vista superior de la facilidad.

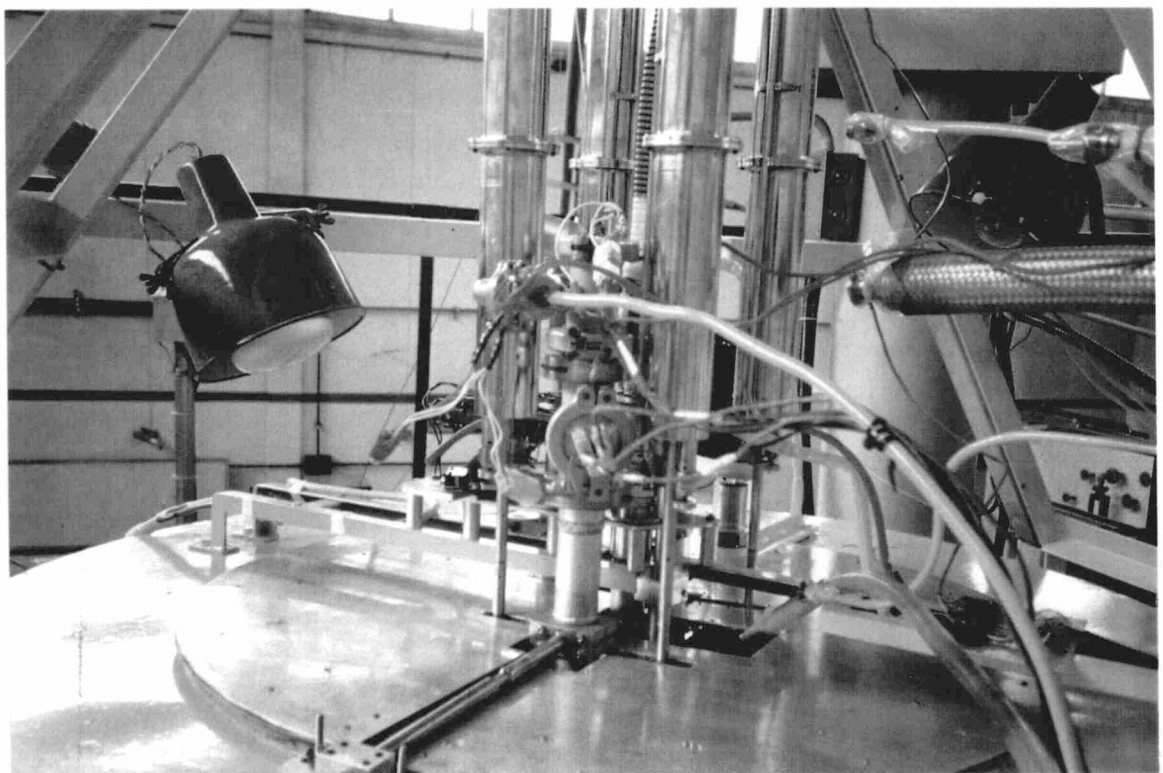


Fig. C.2.2: Vista lateral de la facilidad.

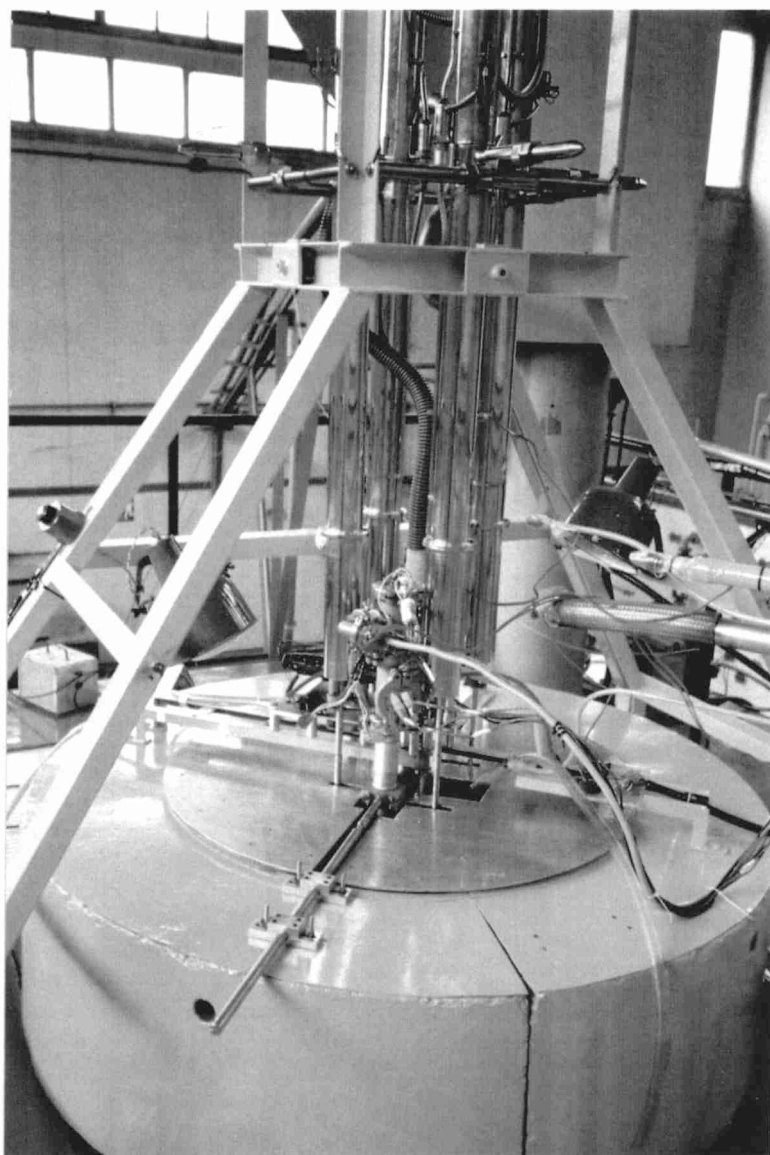


Fig. C.2.3: Vista general de la boca del CNEA-RA1 con la facilidad de irradiación en funcionamiento.