

VARIACION DE LA POTENCIA DE ATRAPE DEL BORDE DE GRANO CON LA TEMPERATURA EN Zr- α

A. Sarce

Departamento Ciencia de Materiales, Gerencia de Desarrollo, Comisión Nacional de Energía Atómica, Avda. del Libertador 8250, 1429 Buenos Aires, Argentina.

A partir de cálculos numéricos de las potencias de atrape para los defectos puntuales de cada cara del borde de un grano cúbico, se obtienen expresiones analíticas que permiten conocer la dependencia de dichas potencias con la anisotropía de la difusión de vacancias e intersticiales. Con estas expresiones, se calcula, finalmente, la variación de esas potencias de atrape para vacancias e intersticiales con la temperatura en la red del Zr- α .

I. INTRODUCCION

Cuando los materiales son irradiados con neutrones en los reactores nucleares pueden experimentar modificaciones. Por ejemplo, pueden cambiar su forma, alargándose en ciertas direcciones y acortándose en otras debido al crecimiento y cree por irradiación¹, pueden sufrir transformaciones de fase que no se observarían en los mismos materiales sin irradiar², etc. Los modelos que tratan de explicar esos fenómenos proponen que los defectos puntuales, vacancias e intersticiales, creados fuera del equilibrio térmico durante la irradiación, migran en la red por activación térmica y pueden ser atrapados por los defectos extendidos como dislocaciones³, precipitados⁴ y bordes de grano⁵. La capacidad de atrape de estos defectos extendidos es medida por el valor de la correspondiente potencia de atrape del sumidero (k^2). Esta potencia de atrape depende del tipo de defecto puntual que es atrapado, de las características del sumidero (tipo de dislocación, tamaño y forma del precipitado o del borde de grano), del material irradiado (caracterizado frente al comportamiento de los defectos puntuales por la relación $(D_c/D_a)_{v,i}$, donde, para el caso de un material hexagonal, D_c (D_a) es la difusividad de las vacancias intersticiales en la dirección paralela (perpendicular) al eje c de la celda hexagonal), del estado metalúrgico del material irradiado (densidad de dislocaciones entre la orientación cristalina del grano y la orientación de las caras del precipitado o de los bordes de grano) y de las condiciones externas, como temperatura de trabajo del material y tensiones aplicadas.

En este trabajo se presenta una expresión analítica de la potencia de atrape de las diferentes caras (paralela y perpendiculares al eje c de la celda hexagonal) (Fig. 1) del borde de grano para las vacancias e intersticiales en función de la anisotropía de la difusión, y, a partir de ella se obtiene el comportamiento de dichas potencias con la temperatura. Se analiza, en

particular, el atrape del borde de un grano cúbico con una densidad de dislocaciones, como sumideros alternativos de los defectos puntuales, de 10^{12} m^{-2} en su interior. Se considera como material Zr puro, que es descrito por un potencial de 6 cúbicas ajustado a una energía de formación de la vacancia de 1.8 eV^6 .

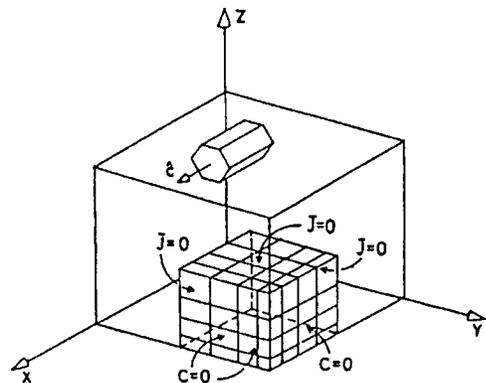


Figura 1: Esquema indicando la región reducida donde se realizan los cálculos numéricos de potencias de atrape del borde de grano, la grilla y las condiciones de contorno usadas.

II. POTENCIA DE ATRAPE DEL BORDE DE GRANO

Las potencias de atrape de las diferentes caras del borde de grano son calculadas dentro de un modelo celular, que implica considerar un grano aislado, con una densidad de sumideros alternativos de los defectos puntuales y una densidad homogénea de daño K dentro de él⁵.

En estado estacionario, y cuando un solo tipo de defecto puntual está presente en el cristal, la corriente de defectos J al borde de grano satisface la ecuación:

$$\nabla \cdot J + I_{sc} = K \quad (1)$$

donde I_{sc} es la velocidad de absorción de defectos puntuales por los sumideros alternativos que se consideran distribuidos uniformemente. Para resolver la ec.

(1), la densidad de corriente de defectos \mathbf{J} en un sitio i , localizado en la red en \mathbf{r}_i , es expresada dentro de un modelo discreto. Su dependencia con la densidad de defectos puntuales, $c(\mathbf{r})$, es una función de la simetría del cristal y del defecto⁷. Las condiciones de contorno se toman:

$$c(x_j = 0) = 0 \quad (2)$$

$$c(x_j = d_j) = 0 \quad (3)$$

donde $j=x, y, z$ y d_j es el tamaño del grano en la dirección j (Fig. 1). Estas condiciones de contorno implican considerar el borde como un sumidero ideal (todo defecto que llega a sus proximidades es atrapado por él).

Como el problema de difusión de defectos en un cristal bajo irradiación es muy complejo, es aproximado por la teoría de los procesos de reacción^{8,9}. En esta teoría se supone la existencia de un medio efectivo en el cual los sumideros de defectos (en este caso los bordes de grano) están continua y uniformemente distribuidos, y se considera que cada unidad de volumen atrapa defectos a una velocidad¹⁰:

$$I_{bg} = K_{bg}^2 \cdot \langle D_{i,v} \rangle \cdot \langle c_{i,v} \rangle \quad (4)$$

donde K_{bg}^2 es la potencia de atrape del borde de grano y $\langle D \rangle$ el valor medio de la difusividad, definido como un invariante del tensor difusividad¹¹:

$$\langle D \rangle = [D_1 D_2 D_3]^{1/3} \quad (5)$$

donde $D_j, j=1,2,3$, son los autovalores del tensor difusividad en los ejes coordenados del cristal. $\langle c \rangle$ es la concentración media de intersticiales (i) o de vacancias (v) en el medio. Considerando esta velocidad de absorción en el medio efectivo igual al flujo total de defectos hacia el borde de grano, queda definida la potencia de atrape como:

$$k_{bg}^2 = \int_A \mathbf{J} \cdot d\mathbf{A} / \langle D \rangle \cdot \langle c \rangle \cdot V \quad (6)$$

donde A es el área total del borde de grano y V el volumen del grano.

La influencia de la anisotropía del tensor de difusividad de intersticiales y vacancias sobre el atrape de los defectos, es mejor analizada en términos de las potencias de atrape parciales (potencias de atrape de cada cara del borde de grano) definidas como:

$$k_j^2 = \int_{S_j} \mathbf{J}_j \cdot d\mathbf{S}_j / \langle D \rangle \cdot \langle c \rangle \cdot V \quad (7)$$

donde \mathbf{J}_j es el flujo de defectos que llega a las caras de área S_j cuya normal es paralela a la dirección j .

De (6) y (7) resulta:

$$k_{bg}^2 = k_x^2 + k_y^2 + k_z^2 \quad (8)$$

Para obtener \mathbf{J} , la ecuación (1) debe ser resuelta numéricamente dentro de un esquema de diferencias finitas. Una grilla tridimensional (Fig. 1) es asociada con cada grano. Se supone, para simplicidad en el análisis de los resultados, que los granos son paralelepípedos, que el eje c de la celda hexagonal es paralelo a una de las aristas del grano y que éstas son, a su vez, paralelas al sistema de coordenadas x,y,z . En este caso el problema tiene simetría ortotrópica y el cálculo puede hacerse sobre 1/8 del volumen del grano, con las condiciones de contorno $c=0$ impuestas sobre las tres caras del grano y la condición $\mathbf{J} = 0$ impuesta sobre los tres planos de simetría ortotrópica que dividen el volumen V (Fig. 1).

III. RESULTADOS

Para condiciones externas fijadas y para un estado metalúrgico de un dado material, la potencia de un sumidero para el atrape de vacancias o intersticiales resulta sólo función de la anisotropía de la difusión (D_c/D_a) del correspondiente defecto puntual. La Fig. 2 muestra la dependencia de las potencias de atrape de las diferentes caras del borde de grano con la anisotropía D_c/D_a , obtenida (para los estados metalúrgicos) a partir de los respectivos cálculos numéricos⁵. Estas curvas de las potencias de atrape pueden ser ajustadas por polinomios cúbicos, cuyos coeficientes para las características del material mencionadas en la Introducción, son:

$$(k_c^2 / k_{c, is}^2) = 0.41 + 0.73 (D_c / D_a) - 0.16 (D_c / D_a)^2 + 0.02 (D_c / D_a)^3 \quad (9)$$

$$(k_a^2 + k_{a, is}^2) = 1.61 - 1.06 (D_c / D_a) + 0.55 (D_c / D_a)^2 - 0.10 (D_c / D_a)^3 \quad (10)$$

El subíndice c (a) de k^2 indica la cara cuya normal es paralela (perpendicular) al eje c de la celda hexagonal,

y el subíndice *is* indica la potencia de atrape de la correspondiente cara cuando se considera $D_c = D_a$ (caso isotrópico). El valor de k_{cis}^2 varía con el tamaño del grano. Para un grano de $2 \times 10^{-6} \text{ m}^2$, $k_{cis}^2 = k_{a is}^2 = 0.5 \times 10^{13} \text{ m}^{-2}$.

Dado que la anisotropía D_c/D_a varía con la temperatura, las expresiones anteriores permiten conocer, a través del cálculo D_c y D_a para cada defecto a distintas temperaturas, y el correspondiente cociente (Tabla 1), las potencias de atrape a cada temperatura (Fig. 3).

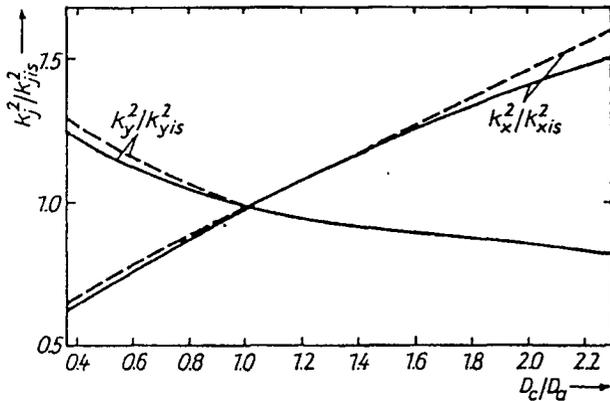


Fig. 2: Relación potencia parcial anisotrópica/isotrópica vs. factor de anisotropía (D_c/D_a). Dirección x paralela a c . Grano cúbico. --- $k^{2sc} = 10^{12} \text{ m}^{-2}$ y — 10^{14} m^{-2} .

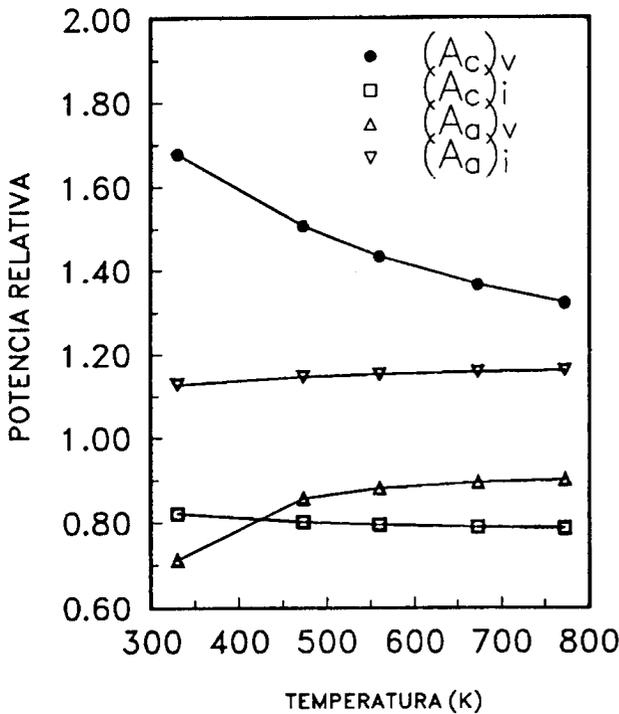


Fig. 3: Relación potencia parcial anisotrópica/isotrópica vs. temperatura, para intersticiales y vacancias migrando en $Zr-\alpha$. $(A_c)_{i,v} = (k_c^2/k_{cis}^2)$; $(A_v)_{i,v} = (k_a^2/k_{a is}^2)$.

T (K)	D_c/D_a interstic.	D_c/D_a vacancias
330	2.93	0.647
473	2.37	0.610
560	2.14	0.599
673	1.93	0.589
773	1.80	0.583

TABLA I: Anisotropías para distintas temperaturas.

IV. DISCUSION Y CONCLUSIONES

El conocimiento de los valores que toman a distintas temperaturas las potencias de los sumideros presentes en un material irradiado, es indispensable cuando se necesitan analizar a distintas temperaturas procesos térmicamente activados que se producen bajo irradiación, como los de deformación o transformaciones de fase mencionados en la Introducción. Estos procesos son simulados, en general, por códigos particulares, en los que juegan un rol importante esas potencias de atrape de los defectos extendidos. El tener expresadas dichas potencias de atrape como una función analítica de la anisotropía de la difusión de vacancias e intersticiales es de fundamental importancia, ya que permite que estas funciones sean introducidas directamente en el código, y sus valores puedan ser calculados dentro de éste, sin necesidad de recurrir a los complejos y lentos cálculos numéricos mencionados, una vez que se fija la temperatura de trabajo.

Las expresiones de k^2 de las ecuaciones (9) y (10) si bien, por un lado, son particulares dado que los coeficientes de los polinomios cúbicos dependen del material y del estado metalúrgico del mismo, son, por otro, completamente generales, ya que permiten tener en cuenta cualquier efecto que modifique la relación D_c/D_a , y, por lo tanto, las potencias de atrape. La deformación elástica de los materiales, por ejemplo, pueden sumar su efecto al de la temperatura para modificar la anisotropía de la difusión de vacancias e intersticiales³, y ese efecto puede así, indirectamente, ser introducido en los códigos mencionados.

REFERENCIAS

1. D. Fainstein-Pedraza, E. J. Savino and A. J. Pedraza, *J. Nucl. Mater* **73**, 151 (1978).
2. A. Sarce, *J. Nucl. Mater* **185**, 214 (1991).
3. N. Smetniansky-De Grande, E. J. Savino and C. N. Tomé, *Phys. Stat. Sol. (b)* **144**, 271 (1987).
4. A. Sarce, *ANALES AFA* **3**, 266 (1991).

- 5.A. Sarce and E. J. Savino, Phys. Stat. Sol. (b) **159**, 557 (1991).
- 6.A. M. Monti, A. Sarce, N. Smetniansky-De Grande, E. J. Savino and C. N. Tomé, Phil. Mag. A, **63** (5), 925 (1991).
- 7.E. J. Savino, Phil. Mag. **36** (1977) 323.
- 8.H. Wiedersich, en "*Physical Metallurgy of Reactor Fuel Elements*". Eds. J. E. Harris y E. C. Sykes. Berkeley Nuclear Laboratories (1973) 142.
- 9.A. D. Brailsford and R. Bullough, J. Nucl. Mat. **44**, 121 (1972).
- 10.C. H. Woo, J. Nucl. Mat. **159**, 237 (1988).
- 11.U. M. Goesele, Prog. Reaction Kinetics **13**, 63 (1984).