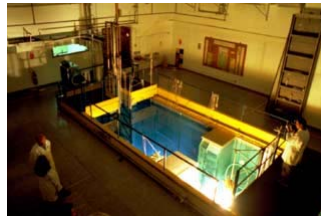


# FUNDAMENTOS DE TECNOLOGIA NUCLEAR



Materials e Ciclo do Combustível



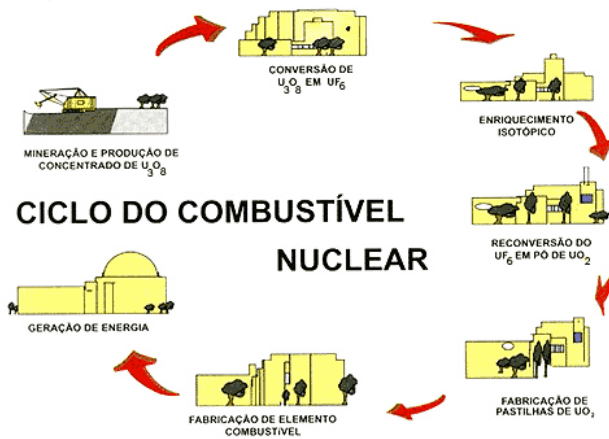
Profs.:  
Afonso Aquino e  
Arnaldo Andrade



Ipen  
2007



## O Ciclo Revisitado

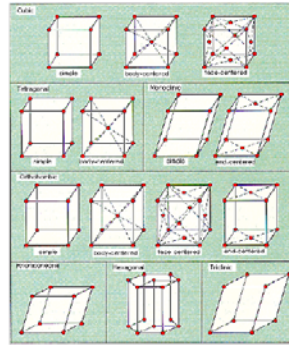


## Porque as estruturas cristalinas são importantes

- **Inchamento** (void swelling): Os aços inoxidáveis (Fe,Cr,Ni) incham, Zircalloys e aços ferríticos (Fe,Cr) apresentam inchamento limitado – devido às suas estruturas cristalinas
- **Crescimento sob irradiação**: Zr, grafite e U – devido à anisotropia da estrutura cristalina

### Célula Unitária:

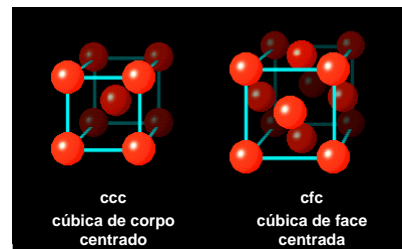
- Menor unidade translacional da “rede espacial” que reproduz um cristal macroscópico
- Para cristais elementares: 14 estruturas cristalinas únicas
- Cristais de misturas binárias: muitos tipos, mas geralmente misturas das 14 estruturas elementares
- Tipos de paralelepípedos:
  - Cúbico (todos os lados iguais); 3 variantes
  - Tetragonal (dois lados iguais); 2 variantes
  - Ortorômbico (três lados diferentes); 4 variantes
- Hexagonal



## Estruturas Cristalinas dos Elementos

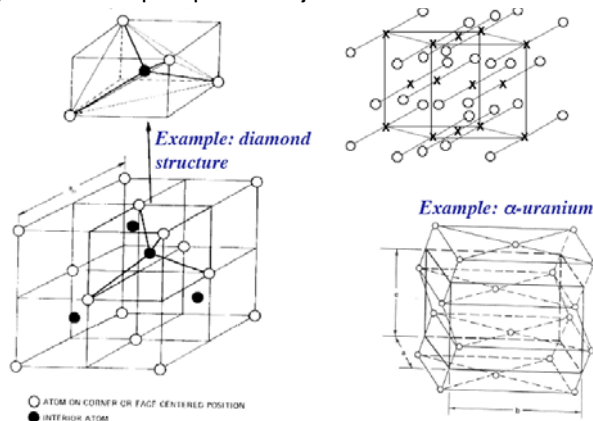
The Atomic Mac™  
 Registered to: OREGORY TETRAULT  
 For use only on a single machine

Hexagonal     Cubic face centered  
 Cubic body centered     Monoclinic  
 Rhombohedral     Orthorhombic  
 Cubic     Tetragonal



## Redes Espaciais

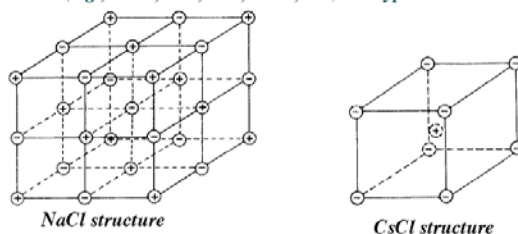
Os sítios da rede numa rede de Bravais não precisam ser ocupados por um único átomo; geralmente são ocupados por um arranjo atômico/molecular



ipen

## Sólidos Iônicos

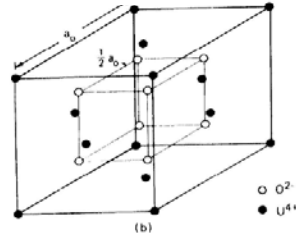
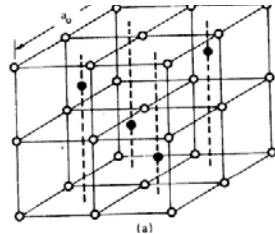
- As estruturas não-metálicas (tais como do combustível,  $UO_2$ , e do absorvedor de neutrons,  $B_4C$ ) são mais complexas
- Estes sólidos são formados de elementos eletronegativos e eletropositivos, e elétrons são transferidos completamente para formar íons positivos (cátions) e negativos (ânions)
- As sub-redes iônicas geralmente podem ser representadas como uma mistura de redes simples formadas pelos elementos
- Para os sólidos  $MX$  (p.ex.  $NaCl$ ,  $LiH$ ,  $KCl$ ,  $MnO$ ,  $UC$ ) dois tipos são comuns:



ipen

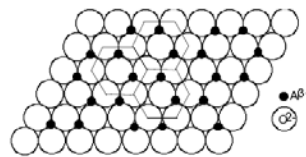
## Sólidos Iônicos

• Para sólidos do tipo  $MX_2$  (p.ex.,  $UO_2$  e fluorita  $CaF_2$ ):



Oxigênio (anions) em rede cúbica simples (parâmetro da rede =  $\frac{1}{2} a_0$ )  
Urânio (cations) em rede *cfc*

• Para sólidos do tipo  $M_2X_3$ , estrutura do corundum (p.ex.  $Fe_2O_3$ ,  $Cr_2O_3$ ,  $Al_2O_3$ ,  $La_2O_3$ ):

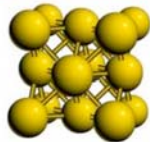


ipen

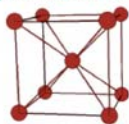
## Defeitos nos Materiais (Metais)

Metais consistem de átomos (núcleos iônicos) imersos num “mar de elétrons”, que estão localizados em *sítos da rede cristalina* bem definidos. As estruturas cristalinas típicas dos metais na natureza são cúbicas – as mais comuns são cúbica de face centrada e cúbica de corpo centrado

face centered cubic (fcc)



body centered cubic (bcc)

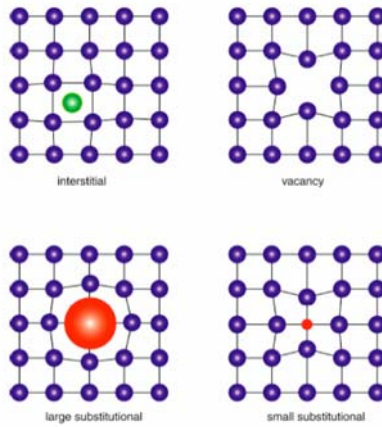


Defeitos pela dimensão:

- Dimensão Zero: defeitos puntiformes, átomos faltando ou átomos presentes onde não deveriam estar
- Dimensão Um: falhas no empilhamento de planos atômicos (discordâncias). Observe que um plano de átomos termina em uma linha
- Dimensão Dois: interfaces e contornos
- Dimensão Três: vazios, precipitados ou inclusões (fragmentos de material de segunda fase)

ipen

## Defeitos Puntiformes em Materiais (Metais)



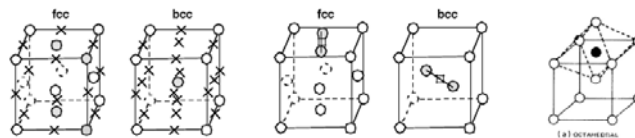
## Propriedades dos auto-intersticiais

Sob irradiação, vacâncias e átomos auto-intersticiais são formados em números iguais

Par de Frenkel: *vacância + átomo auto-intersticial*

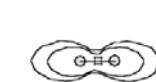


O  $\times$  marca os sítios intersticiais nas redes fcc e bcc, mas o tamanho atômico dos metais geralmente resultam em halteres (dois átomos compartilhando um sítio atômico) (*split-dumbbells*)

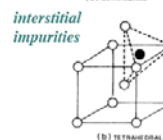


O haltere (átomos auto-intersticiais) apresentam um grande campo de tensão anisotrópico

$e_i^f =$  energia de formação do auto-intersticial

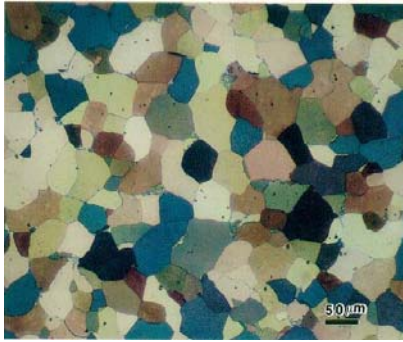


$\sim 3e_v > \sim 5 \text{ eV}$

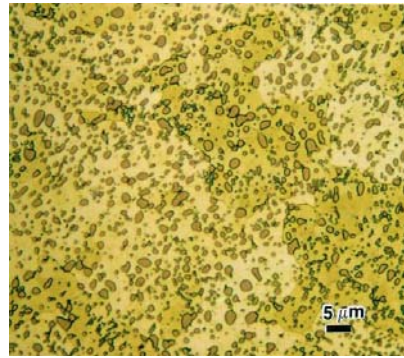


## Microestruturas dos Aços

---



Aço baixo-carbono (grãos de ferrita)



Aço ferramenta AISI W2

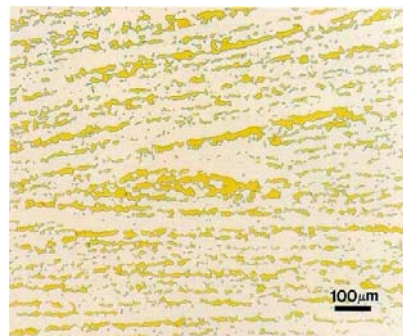


## Microestruturas de Ligas de Cobre

---



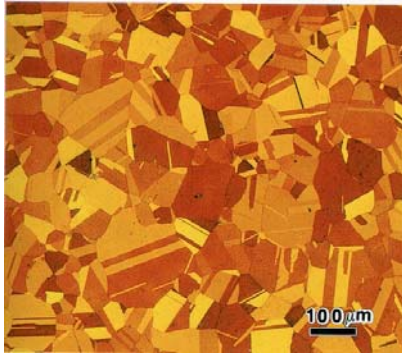
Bronze fosforoso CDA 510



Latão bifásico ( $\alpha + \beta$ )



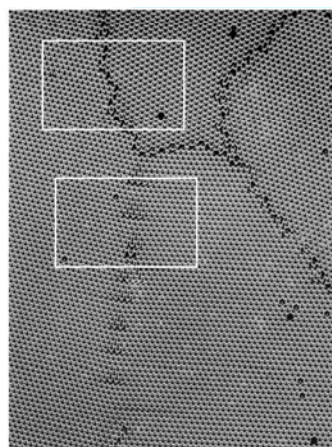
## Outras Microestruturas Metálicas



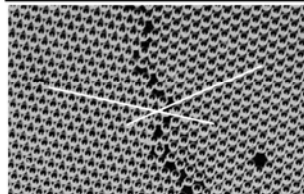
Waspaloy



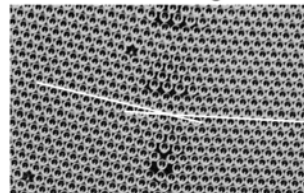
Cu-26% Zn-5% Al (memória de forma)



### **Defeitos de Superfície**



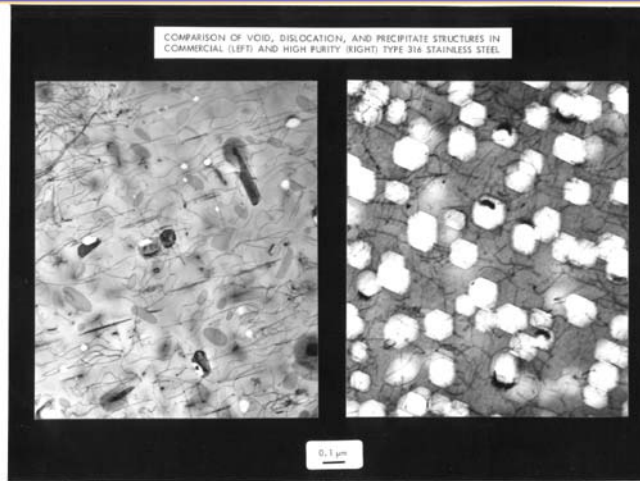
Contorno de grão



Contorno de subgrão

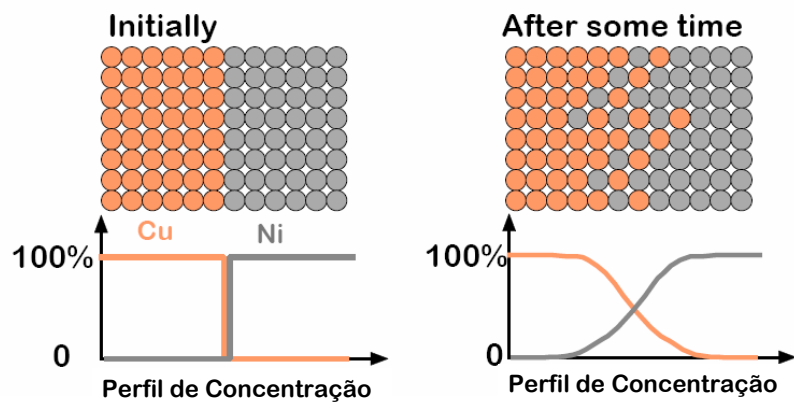


### Defeitos Tri-Dimensionais em Materiais (Metais)



### O fenômeno da Difusão

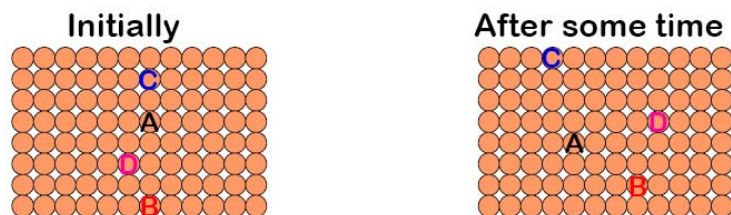
•**Interdifusão:** num sólido com mais do que um tipo de elemento (uma liga), átomos tendem a migrar a partir de regiões de concentração elevada.



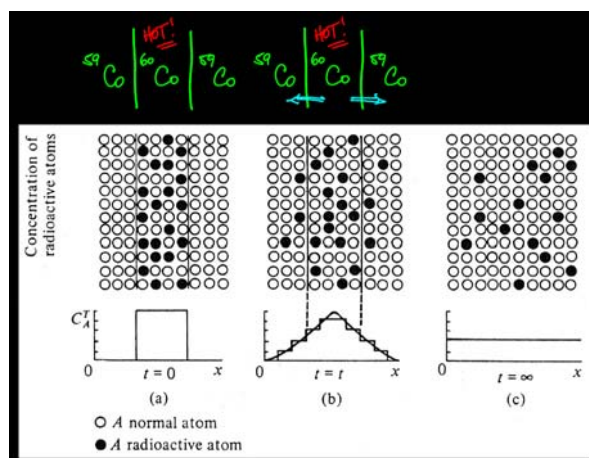


## Auto-Difusão

•Auto-difusão: num sólido elementar, os átomos também migram

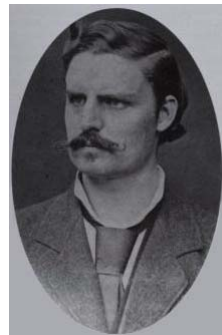
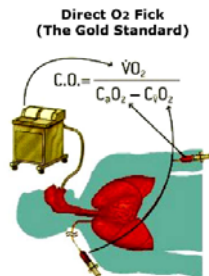


## Auto-Difusão com Traçadores Radioativos



## The Fick Principle

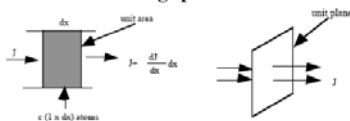
Adolf Fick em 1870 descreveu a primeira técnica conhecida para medir a saída cardíaca nos humanos, mas nunca realmente fez ele mesmo esta medida. Fick postulou que a quantidade de oxigênio capturada pelo sangue quando passa através dos pulmões deve ser igual a quantidade de oxigênio inspirada pelos pulmões do paciente durante a respiração. Se alguém pode medir a quantidade de oxigênio tomada pelo corpo durante a respiração e a diferença em concentração de oxigênio entre o sangue arterial e o venoso, então a quantidade de sangue bombeada através dos pulmões pode ser calculada e é igual à saída cardíaca. A quantidade de oxigênio inspirada pode ser medida não invasivamente pela boca, enquanto que a concentração de sangue pode ser medida a partir de retiradas sanguíneas venosa e arterial periférica misturada. O princípio de Fick pode também ser aplicada com CO<sub>2</sub> ao invés de oxigênio, e é algumas vezes usado uma vez que é mais fácil de medir precisamente a eliminação de CO<sub>2</sub> do que a tomada de O<sub>2</sub>.



## Visão macroscópica da difusão: as leis de Fick

- Considere as espécies em difusão:  
 $c$  = concentração de uma espécie numa mistura (átomos/cm<sup>3</sup>)  
 $J$  = fluxo das espécies em difusão (átomos/cm<sup>2</sup>-s)

conservation of mass of diffusing species:



A taxa de mudança temporal de átomos de uma espécie em  $dx$  = entrada líquida de espécies + criação de espécies em  $dx$  por uma fonte

$$\frac{\partial}{\partial t} (c dx) = J - (J + \frac{\partial J}{\partial x} dx) + Q dx$$

$$\text{or, } \frac{\partial c}{\partial t} = - \frac{\partial J}{\partial x} + Q \quad (5.1)$$

$Q$  = volumetric source term of diffusing species

### Visão macroscópica da difusão: as leis de Fick

A eq. (5.1) é uma equação de conservação de massa; ela é válida se a força motriz para o fluxo é:

- Gradiente de concentração – difusão molecular / atômica convencional
- gradiente de temperatura – difusão térmica (transferência de calor)
- campo elétrico – transporte iônico
- fluxo volumétrico de fluido – transporte convectivo

when J is due to ordinary diffusion: *Fick's First Law* [defines D (cm<sup>2</sup>/s)]

$$J = -D \frac{\partial c}{\partial x} \quad (5.2)$$

substituting Eq. (5.2) into (5.1) gives *Fick's Second Law*

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + Q \quad (5.3)$$

generalization of Fick's Second Law to multiple dimensions and other coordinates:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \nabla^2 c + Q \quad (5.4)$$

$\nabla^2$  = Laplacian operator



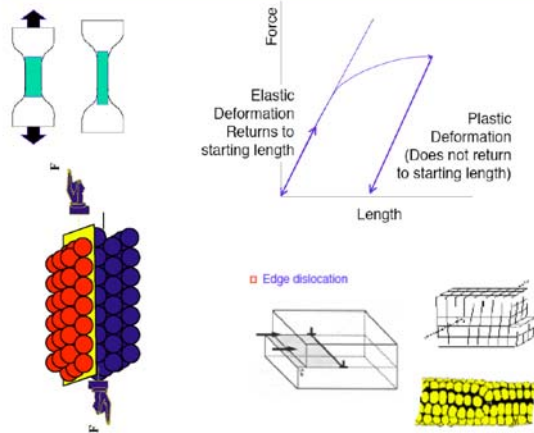
### Processos de Difusão no Estado Sólido nos Materiais Nucleares

- A difusão de soluto e impurezas nos materiais nucleares controla o desempenho do material em ambientes nucleares

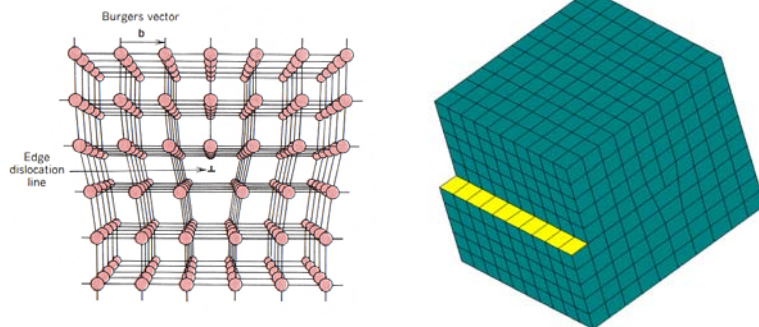
Process	Diffusing species	Matrix solid
Corrosão do revestimento pela Água (vapor)	O <sup>2-</sup> (O)	ZrO <sub>2</sub> (Zr (metal))
Liberção de gases de fissão do Combustível	Xe, Kr	UO <sub>2</sub>
Sinterização e fluência do combustível	U <sup>4+</sup>	UO <sub>2</sub>
Inchaço de metais pela irradiação	v (vacancy) i (interstitial)	Fe-Cr Fe-Ni-Cr
Hidretação do revestimento	H	Zr
Precipitação de cobre do aço do vaso de pressão do reator (fragilização do VPR)	Cu	Fe



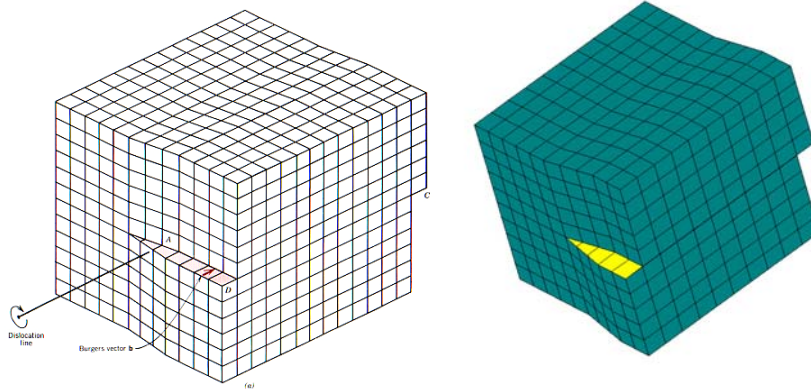
## Defeitos de Linha em Materiais (Metais) & Deformação



## Discordância em Cunha



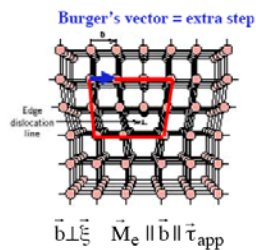
## Discordância em Hélice



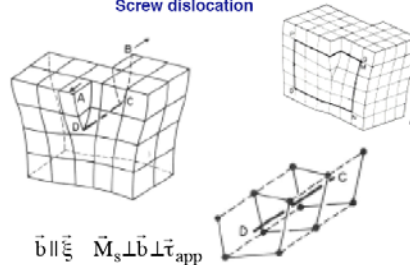
## Propriedades das Discordâncias

- Discordâncias são linhas que marcam a fronteira entre regiões deslizadas e não deslizadas, caracterizadas por um vetor de linha.
- O vetor de Burger de uma discordância define a falha de fechamento (p.ex. fazendo um circuito no sentido anti-horário no material em torno da linha da discordância, o circuito se fecharia num cristal "perfeito", mas a falta de conexão do ponto inicial ao final define o vetor de Burger).
- Discordâncias perfeitas estão relacionadas ao deslizamento de um espaçamento atômico completo (vetor de translação da rede)
- Os tipos-limites de discordâncias perfeitas são cunha (*edge*) e hélice (*screw*)

### Edge dislocation



### Screw dislocation

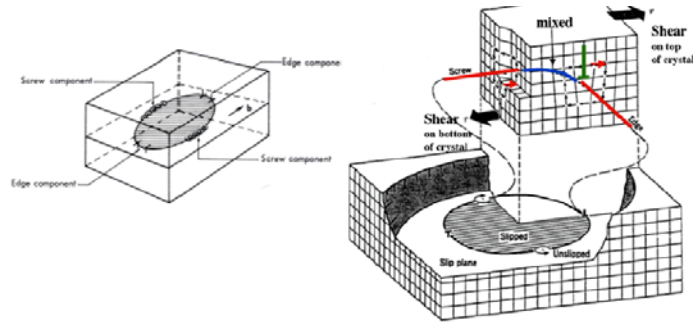


\* D. Hull and D.J. Bacon, [Introduction to Dislocations](#), 4th Edition, Pergamon Press (2001)

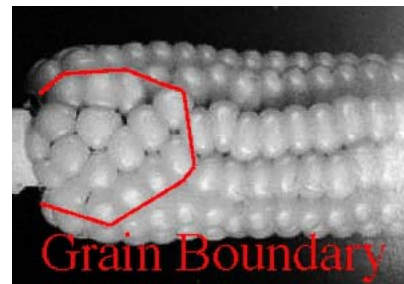
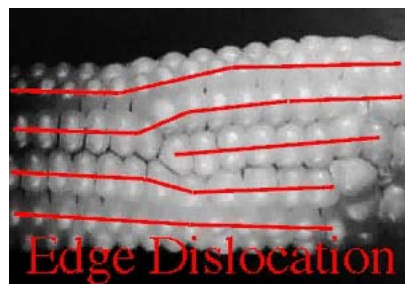
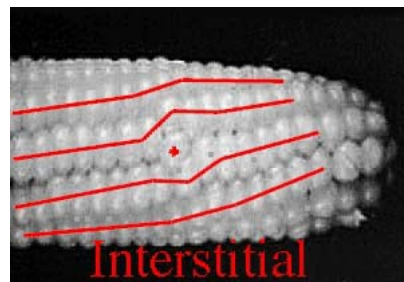
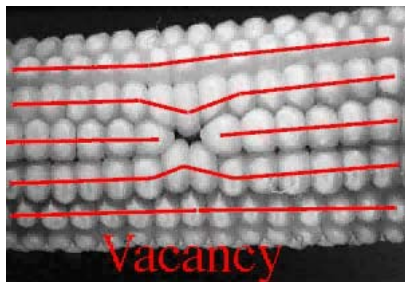
## Propriedades das Discordâncias

•Discordâncias cujo vetor de Burger não é nem perpendicular nem paralelo à direção de sua linha são conhecidas como discordâncias mistas

•Os anéis de discordâncias (loops) podem exibir características das discordâncias em cunha, em hélice e mistas no mesmo anel



\* D. Hull and D.J. Bacon, *Introduction to Dislocations*, 4th Edition, Pergamon Press (2001)



## Corpos-de-Prova e Equipamento de um Teste de Tração

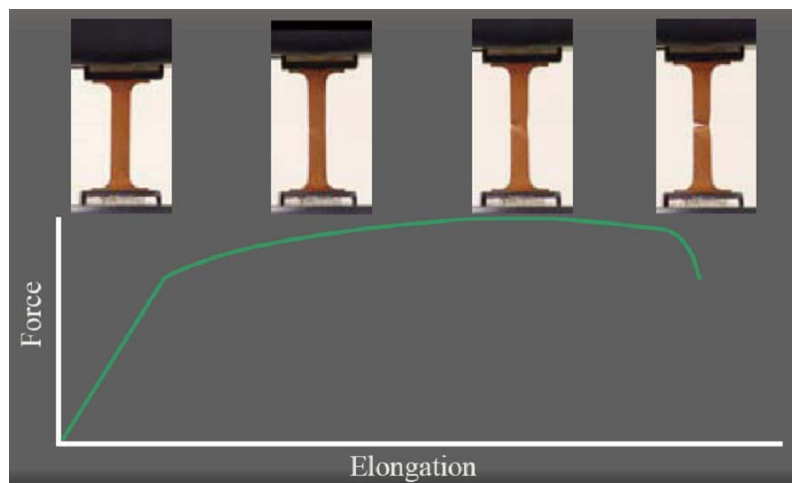
---



ipen

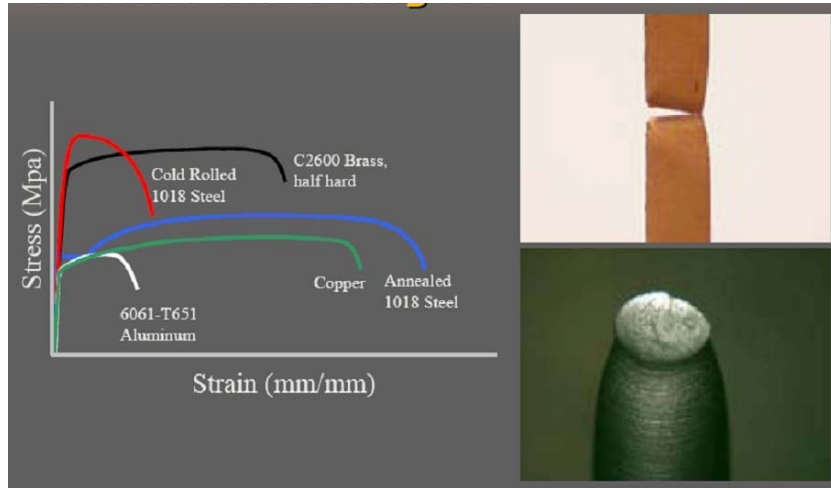
## Durante o ensaio de tração ...

---



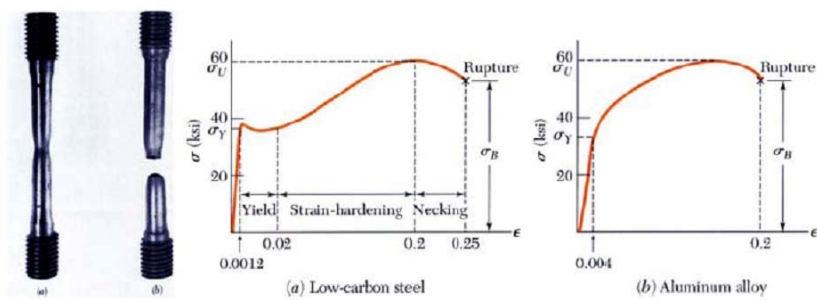
ipen

## Resultados e Análise



ipen

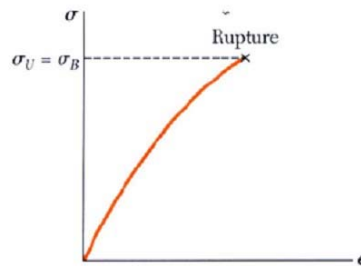
## Diagramas Tensão-Deformação: Materiais Dúcteis



ipen

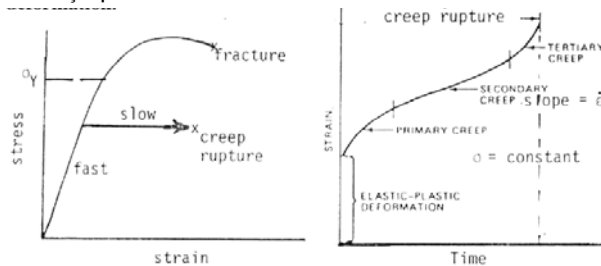


## Diagramas Tensão-Deformação: Material Frágil



## Sobre a Fluência (creep)

- A fluência é a deformação mecânica dos sólidos, dependente do tempo (e também da tensão e temperatura) que ocorre lentamente em tensões abaixo do limite de resistência. A dependência temporal diferencia a fluência da deformação plástica.



- Fluência (sob tensão constante) ocorre geralmente em três estágios – a fluência secundária steady-state creep is the most important:  $\dot{\epsilon}_x = d\epsilon_x / dt = \text{constant}$  (function of  $\sigma$  and  $T$ )

- A falha por fluência ocorre por ruptura em:  $\epsilon_F = \text{rupture strain}; t_R = \text{rupture time}$

## **Danos da Radiação**

*Nunca reclame do seu companheiro de sala !*



 ipen

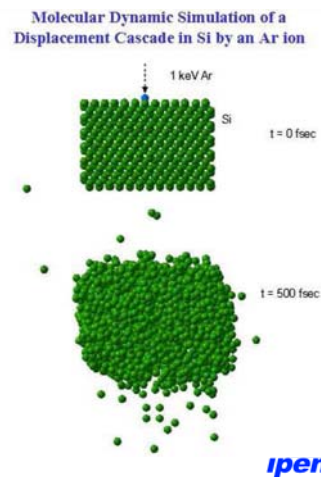
## **Efeitos da Radiação nos Materiais**

- O ambiente do reator nuclear é caracterizado pela presença de radiação intensa e temperaturas elevadas no núcleo
- O bombardeamento com partículas energéticas altera (danifica) tanto as propriedades gerais como as específicas de um modo complexo
- As mudanças nestas propriedades são atribuídas a:
  - Defeitos Puntiformes (vacâncias e intersticiais)
  - Discordâncias
  - Alterações físico-químicas nos contornos de grão
- Os defeitos cristalinos produzidos pela radiação dependem:
  - do fluxo de nêutrons, do seu espectro de energia, do tempo e da temperatura de irradiação, da estruturas cristalina, dos átomos de impureza e elementos de liga do material

 ipen

## Danos e Efeitos da Radiação

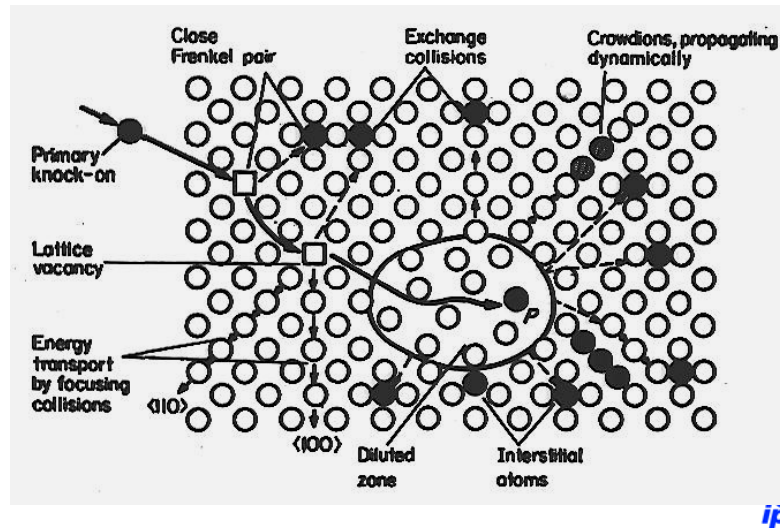
- Choque e propagação das partículas primárias
- Geração de produtos de fissão
- Efeitos da Radiação Neutrônica
  - Ionização (efeito temporário)
  - Deslocamento atômico (efeito permanente)



## Efeitos produzidos pela Radiação Neutrônica

- Vacâncias: pelo deslocamento de átomos de suas posições regulares na rede cristalina
- Intersticiais: átomos deslocados para posições intersticiais ou irregulares
- Átomos de impurezas ou elementos de liga: pela transmutação nuclear (p.ex.: produtos de fissão como o Mo, Zr e Ru)
- Ionização e excitação eletrônica
- *Spike* térmico (aumento da vibração de um pequeno número de átomos)
- *Spike* de deslocamento (deslocamento concentrado de vários átomos por colisões ou aumento da energia vibracional)
- Colisões de reposição: átomos deslocados colidem com outros átomos (estacionários ou em movimento e passam a ocupar uma vacância)

## Efeito do bombardeamento neutrônico



## Por que se preocupar com os efeitos da radiação ?

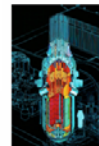
•É a principal questão para o envelhecimento e degradação dos materiais estruturais usados nos ambientes neutrônicos intensos dos sistemas baseados na fissão e fusão nucleares

•Os efeitos da radiação nas “propriedades” são controlados pela **combinação** de muitas variáveis dos materiais e da irradiação – uma complexidade combinatorial que exclui abordagens puramente empíricas (também precisa ser extrapolada para comportamento a longo prazo)

As questões e detalhes variam – mas a física básica está presente em todos eles

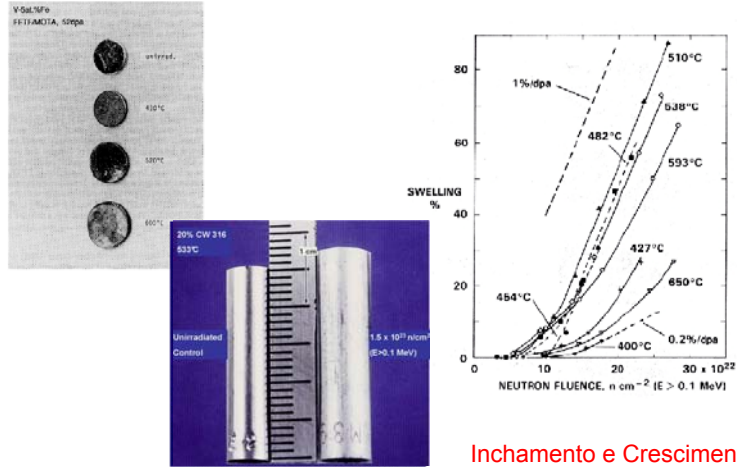
•Objetivo é prever o desempenho e tempo de vida dos materiais em serviço em ambientes com neutrons e de desenvolver novos materiais de maior desempenho e mais duradouros.

•Muito complexo e requer uma integração íntima entre teoria, modelagem, experimentos e a formação de banco de dados



## Efeitos da radiação: Consequências

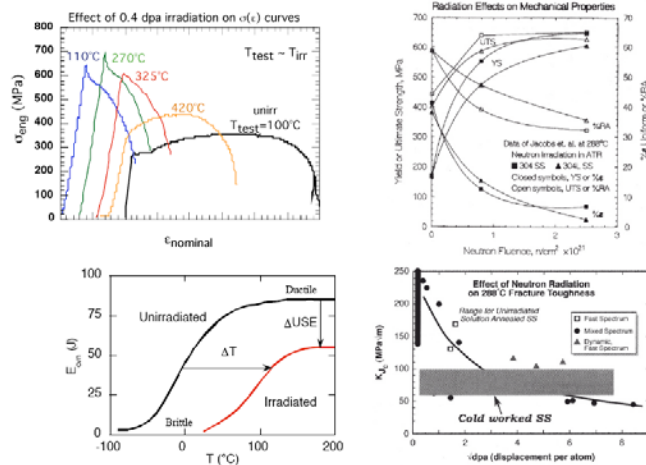
- Dimensional instability: swelling & growth



Inchamento e Crescimento

## Efeitos da radiação: Consequências

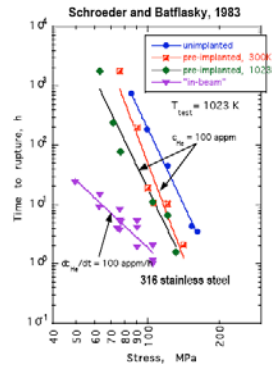
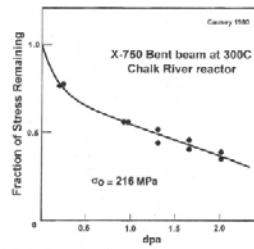
- Consequences: hardening, loss of ductility (uniform elongation), embrittlement



Endurecimento, Perda de Ductilidade, Fragilização

## Efeitos da radiação: Conseqüências

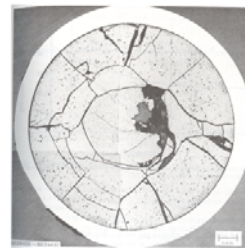
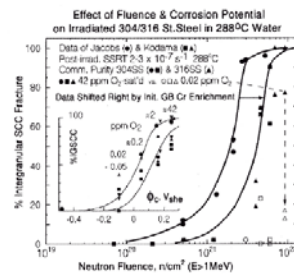
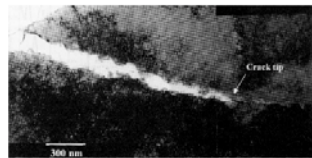
- Consequences: creep (stress relaxation) and creep rupture



Fluência e Ruptura por Fluência

## Efeitos da radiação: Conseqüências

- Consequences: environmentally (stress, corrosion, thermal) assisted cracking

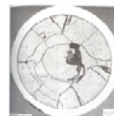


Fragilização auxiliada pelo Ambiente

## Consequências e Causas dos Efeitos da Radiação

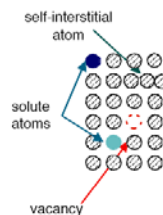
### Consequências:

- Instabilidade dimensional (inchaço, crescimento)
- Endurecimento pela irradiação e perda de ductilidade
- Deformação e ruptura por fluência térmica e irradiação
- Trincamento prematuro e falha



### Causas:

- Produção de defeitos puntiformes intrínsecos (vacâncias) e seus aglomerados em cascatas de deslocamento, junto com gases de fissão e transmutados

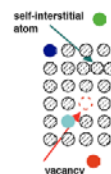
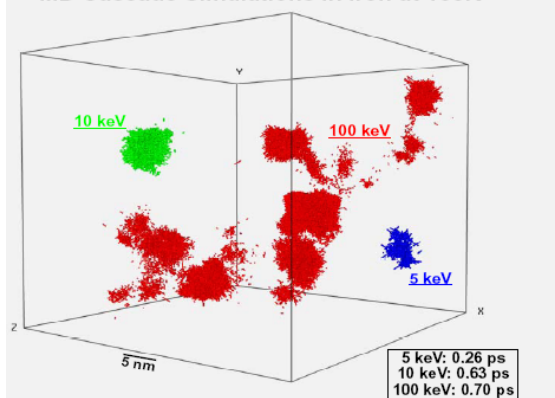


As consequências da irradiação nos materiais são ultimamente determinadas pelo *destino* dos defeitos de deslocamento e impurezas criadas pelo ambiente da irradiação

## Efeitos da radiação: Causas

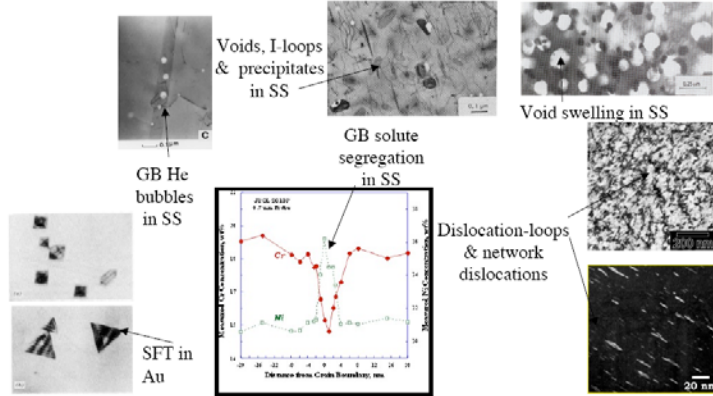
- Cause: displacement (dpa), fission product and transmutation damage (especially He and H) coupled with thermal, stress and chemically driven processes that occur even without irradiation

### MD Cascade Simulations in Iron at 100K



### Efeitos da radiação: Causas

- Cause: long-range diffusion and clustering of displacement damage (defects) produces microstructural changes in the form of dislocation loops, stacking fault tetrahedra, precipitates, bubbles, voids and solute segregation



### O dano de radiação é um fenômeno de escala múltipla

