

MÉTODO MAGNÉTICO DE MONITOREO DE COMPONENTES NUCLEARES MINIMIZANDO LA EXPOSICIÓN

Kempf, R., Sacanell J., Di Luch, A. y Fortis A.M.¹

Comisión Nacional de Energía Atómica

RESUMEN

La radiación neutrónica provoca la fragilización de componentes estructurales de los reactores nucleares; entre ellos, el recipiente a presión (RPR) de acero. Bajo ciertas condiciones accidentales, se puede producir su rotura catastrófica cuya consecuencia es el fin de la planta y el inconmensurable impacto ambiental por la eventual dispersión de material radiactivo. Por eso en las plantas se realizan programas de vigilancia colocando muestras del acero en zonas críticas que se retiran cada cierto tiempo para ensayarlas mecánicamente. Estas muestras son masivas y deben trasladarse a las celdas de ensayo en forma cuidadosa dada su alta actividad, por lo que existen tendencias internacionales para minimizar la cantidad de material puesta en juego. Siendo el material del RPR ferromagnético es posible monitorear su evolución con la radiación midiendo sus propiedades magnéticas. Especímenes de un acero usado en las vasijas de los reactores nucleares argentinos fueron irradiados en el reactor experimental RA1 a distintas tasas de dosis a 275°C, luego ensayados mecánicamente y analizada la microestructura en cada caso. Las propiedades magnéticas fueron estudiadas por magnetometría y por resonancia ferromagnética. Los resultados muestran que el campo coercitivo y la distribución magnética espacial es sensible a la tasa de dosis, es decir a la microestructura del acero, al igual que las propiedades mecánicas. La correlación de estos resultados con los de los ensayos mecánicos convencionales daría relevancia al uso de las técnicas magnéticas para controlar la fragilización de los RPR porque se lograría reducir en más de tres órdenes de magnitud el material necesario para el monitoreo de los RPR y podrían ser aplicadas in situ, reduciendo notablemente la exposición del personal sin necesidad de trasladar material altamente irradiado.

1. INTRODUCCIÓN

Desde el punto de vista de la tecnología nuclear, la importancia fundamental del fenómeno de fragilización por radiación de un recipiente a presión (RPR) radica en que, al ser un componente no redundante ni reemplazable del sistema primario de una central nuclear, la vida efectiva de utilización de la planta se ve limitada a un período en el que las propiedades del recipiente sean confiables. La cuestión clave es la probabilidad de su fractura inestable.

La fragilización de los aceros de bajo carbono y de baja aleación utilizados para construir recipientes a presión proviene principalmente del endurecimiento por irradiación. Una de las primeras explicaciones fue que el endurecimiento se debía a obstáculos dispersos generados por el impacto de los neutrones que aumentaban la tensión a través del mecanismo de endurecimiento por fricción [1].

Una forma de medir el estado de fragilidad es a través de un ensayo de impacto Charpy. Este

¹ fortis@cnea.gov.ar

ensayo mide la energía absorbida por una muestra durante el impacto de una masa [2]. A bajas temperaturas el material absorbe poca energía y su rotura suele ser frágil, en cambio, a altas temperaturas aumenta la energía absorbida y el comportamiento es dúctil. Por convención una energía absorbida de 41 Joules se toma como referencia para definir la temperatura de transición dúctil-frágil (DBTT, ductile-brittle transition temperature).

Al irradiar con neutrones una muestra de acero ferrítico se produce un corrimiento de la DBTT del material a valores mayores. En caso de accidentes como la rotura de una cañería de refrigeración es necesario bajar la temperatura del núcleo del reactor, lo que se realiza en forma súbita arrojando agua a temperatura ambiente. Puede suceder entonces que el material de la vasija se encuentre en la zona frágil, pudiéndose propagar fisuras en forma catastrófica, y romperse el RPV con la posibilidad de exponer material radiactivo al medio.

Para comprender la causa del aumento de la fragilidad con la radiación se realizan numerosos estudios para comprender las causas del fenómeno y lograr minimizar los riesgos de rotura. Los modelos físicos basados en termodinámica, cinética y micromecánica del proceso de daño de materiales por irradiación neutrónica [3] [4] y los nuevos métodos de simulación computacional que permiten seguir la evolución de la microestructura durante la irradiación [5] [6], dieron lugar a un gran avance en la comprensión de los mecanismos que conducen a la fragilización de los RPV.

Estos estudios permitieron identificar dos mecanismos de fragilización:

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

Ambos procesos se traducen en un incremento del número de obstáculos para el movimiento de las dislocaciones y un incremento del endurecimiento, lo que en última instancia causa la fragilización. También está experimentalmente comprobado que existe un efecto fragilizante debido al contenido de P en la aleación de acero pero que no produce endurecimiento.

Estas dos componentes, daño en la matriz (SMD) y daño por precipitados ricos en cobre (CRP) dependen fundamentalmente de la estructura de defectos en equilibrio dinámico para cada condición de irradiación.

Si la tasa de dosis neutrónica es muy alta, la concentración de daño en la matriz (aglomerados de defectos puntuales, lazos de dislocaciones, etc.) es preponderante y, en caso contrario, para la misma dosis o fluencia total, una tasa de dosis baja implica tiempos mayores de irradiación en donde los fenómenos difusivos tienen lugar y se incrementa la influencia de los CRP. Este último caso es la condición de irradiación preponderante a la que es sometido el RPV.

La fragilización es entonces consecuencia de la acumulación del daño y de la evolución de su naturaleza con el tiempo. Es de notar que el RPR no se encuentra en el núcleo del reactor, el flujo neutrónico es relativamente más bajo y el espectro de energías neutrónicas es diferente, por lo que la evolución del daño se produce a lo largo de la vida del mismo que, por diseño, es de decenas de años. Una manera de obtener distinta estructura de defectos sin necesidad de esperar años para seguir la evolución de la microestructura es realizar irradiaciones a diferentes tasas de dosis y, para cada microestructura desarrollada, analizar su efecto en las propiedades.

En el Grupo de Daño por Radiación del Departamento Estructura y Comportamiento de la Gerencia Materiales de CNEA se están aplicando diversas técnicas de análisis para relacionar los resultados de irradiaciones con distintas tasas de dosis. Un método de estudio de la evolución del daño que requiere poco material irradiado, con lo que se garantiza además la posibilidad del manipuleo del mismo sin riesgos para los investigadores, es el de la determinación de la variación de las propiedades magnéticas con la microestructura.

En este trabajo se describirán las técnicas usadas, los resultados obtenidos y se mostrará la factibilidad de usar técnicas magnéticas en los programas de vigilancia de los RPR.

2. TÉCNICAS EXPERIMENTALES

2.1. Irradiación del material

El flujo neutrónico en los recipientes a presión de centrales de potencia como Atucha-1 y Atucha II es bastante inferior al que se puede obtener en el núcleo de cualquier reactor de investigación, cualquiera sea el grupo de energía que se considere; por eso, estos reactores son óptimos para estimar la integridad de los RPR.

Para obtener diferentes tasas de dosis se necesita irradiar en un reactor experimental a diferentes potencias hasta una dosis determinada (dependiente de la propiedad a medir). Para las potencias menores el tiempo de irradiación es más largo pero la dosis neutrónica (fluencia) y la temperatura son idénticas. Un reactor con la disponibilidad para funcionar a diferentes potencias es el Reactor RA1 que se encuentra en el Centro Atómico Constituyentes de CNEA. El reactor posee 40 kW de potencia térmica máxima; es del tipo tanque abierto, con núcleo de uranio enriquecido al 20% con ^{235}U , reflejado por grafito y su moderador y refrigerante es agua liviana desmineralizada.

Para conseguir una temperatura similar a la de los reactores de potencia se utiliza una facilidad construida ad-hoc en donde un horno joule provee el calentamiento necesario. En la facilidad, ubicada en un canal de irradiación del reactor, se reproduce en forma controlada mediante su horno y varias termocuplas, las condiciones de temperatura (alrededor de los 280°C) en la pared interna del recipiente a presión. En el interior se colocan cápsulas conteniendo cada una 8 probetas Charpy del acero de los RPR. En el informe del Japan Steel Works SA Muroran Plant se lo especifica según el código ASME como un acero forjado SA-508 clase 3. En la Tabla 1 se especifica la composición química.

Las probetas Charpy son prismas de 10x10x55mm con una entalla central en donde se aplica el impacto de una masa pendular.

Tabla 1. Composición del acero en estudio (%peso)

C	Mn	P	S	Si	Ni	Cr	Mo	V	Cu	Al	Ta	Fe
0.25	1.40	0.012	0.015	0.15	0.74	0.20	0.53	0.03	0.10	0.05.	0.03.	resto

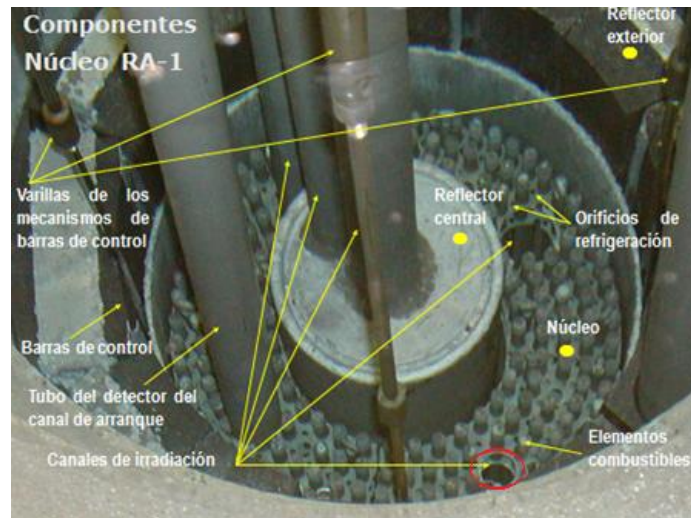


Figura 1. Con un círculo se señala el canal en donde se ubicó la facilidad para irradiar en el reactor RA1

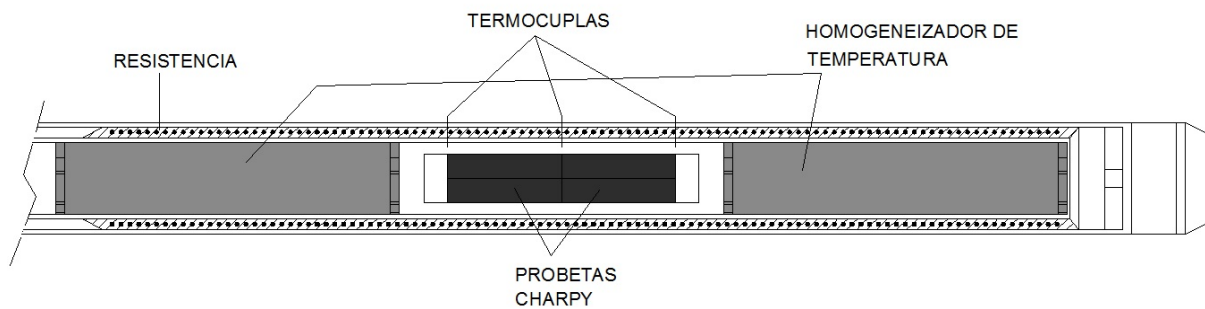


Figura 2. Parte inferior de la facilidad en donde se ubica la cápsula con las probetas

Tabla 2. Espectro neutrónico en el canal de irradiación

Energía neutrónica [MeV]	Flujo neutrónico [$n\ m^{-2}\ s^{-1}$]
0 – 0.1	2.25×10^{16}
0.1 - 1	3.318×10^{15}
1 – 17.33	3.715×10^{15}

Se realizaron dos campañas de irradiación en donde dos juegos de probetas se irradiaron, una a plena potencia y otra a la potencia mitad del reactor RA1, llegando ambos conjuntos a la misma fluencia equivalente a 1/3 de la vida de diseño de las plantas de potencia. En la Tabla 2 se muestra el espectro neutrónico en el canal de irradiación. En la Tabla 3 se especifican datos de las irradiaciones. El factor de avance indica cuántas veces se acelera la irradiación

con respecto al valor en la pared interna de un RPR. En las normas internacionales se especifica que los factores de avance de los programas de vigilancia deben ser menores a 3 para considerar representativos los resultados. En este trabajo se busca comparar los ensayos mecánicos con los magnéticos según la microestructura desarrollada en cada caso; para este fin se eligieron dos potencias del reactor de modo que los factores de avance sean mayores y así obtener resultados en tiempos razonables de irradiación.

Tabla 3. Irradiaciones realizadas en el reactor RA1

	Flujo [n/m ² s] [E> 1 MeV]	Potencia [kW]	Factor de avance (FA)	Fluencia [n/m ²]	Duración [horas]	Temperatura [°C]
Primer juego	3,7X10 ¹⁵	40	186	6,58X10 ²¹	492	275
Segundo juego	1,86 X10 ¹⁵	20	93	6,58X10 ²¹	984	275

2.2. Análisis de la microestructura

En las micrográficas de la Figura 3 se muestran imágenes por microscopía electrónica de transmisión de la microestructura del material sin irradiar y el irradiado a diferentes tasas de dosis.

Los precipitados en el material irradiado muestran un aumento de tamaño para tiempos mayores de irradiación, aunque el número total de neutrones que alcanzaron las muestras fueron iguales (igual dosis o fluencia). Es evidente que los fenómenos difusivos, dependientes del tiempo, provocan el aumento del tamaño promedio de precipitados. Las propiedades mecánicas son sensibles a esta distribución.

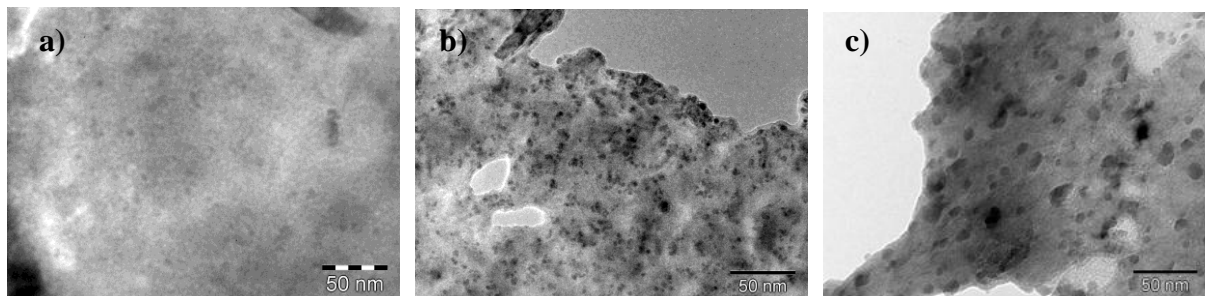


Figura 3. Microestructura del acero: a) sin irradiar, b) irradiado a 40 kW, FA 186 y c) irradiado a 20 kW, FA 93

2.3. Estudios por magnetometría

Las mediciones de magnetometría (VSM) consistieron en la realización de curvas de histéresis con el objetivo de observar el cambio de forma de dichas curvas y obtener cuantitativamente el campo coercitivo H_c y la magnetización de saturación M_s para el material irradiado. Los cambios de dichos parámetros con la radiación neutrónica están relacionados con la generación de aglomerados de defectos y por la creación de nanoprecipitados [7]. Para obtener los ciclos de histéresis se utilizó un magnetómetro de muestra vibrante marca Versalab Quantum Design; el mismo permite medir la magnetización en función de la temperatura entre 50 y 400 K bajo la aplicación de un campo magnético de hasta 3 Tesla.

Las magnetometrías se llevaron a cabo en láminas delgadas y en polvos obtenidos de las probetas Charpy luego de ser ensayadas mecánicamente. El campo coercitivo (H_c) es la propiedad más sensible que caracteriza a los materiales ferromagnéticos. El campo coercitivo aumenta cuanto mayor es el contenido de defectos y también cuando aumentan las tensiones internas. El campo coercitivo está relacionado con la tortuosidad de la trayectoria de las paredes de dominio [8].

La resonancia ferromagnética es una técnica espectroscópica que censa excitaciones de momentos magnéticos electrónicos. Las mediciones de este trabajo fueron realizadas en banda X ($\nu \sim 9,44$ GHz) en un espectrómetro Bruker ESP 300. Se trabajó con un campo magnético aplicado hasta 1,8 Tesla. Se realizaron barridos angulares a temperatura ambiente desde la configuración en el plano a la fuera del plano de las láminas delgadas. Para un ángulo determinado se obtiene un pico de resonancia, cuyo ancho está relacionado con las inhomogeneidades que se detectan en las muestras, es decir con la presencia de fases y discontinuidades. Para obtener estos resultados se trabajó con films de 3 mm de diámetro y 200 μm de espesor, similares a los usados en los estudios por TEM.

Hay que destacar que para un ensayo de impacto se utilizan de 8 a 10 probetas con una masa total de $\sim 400\text{g}$. Para ambos estudios magnéticos se utilizaron hojuelas con masas del orden del miligramo.

3. RESULTADOS

3.1. Ensayos de impacto

Los ensayos de impacto Charpy V fueron realizados en las celdas calientes del laboratorio de ensayos post irradiación LAPEP en el centro Atómico Ezeiza. Se realizaron en el acero SA 508 clase 3 en un amplio rango de temperaturas (-30 °C a 55 °C) a tres juegos de muestras, uno no irradiado y dos irradiados con dos factores de avance 93 y 186. Los resultados se muestran en la Figura 4.

Realizar este ensayo implicó el traslado de las muestras desde el reactor RA1 en el Centro Atómico Constituyentes hacia las celdas calientes del Centro Atómico Ezeiza. Para tal fin se utilizó un contenedor blindado de Pb de 35 cm de diámetro y 60 cm de alto. Al ser retiradas del reactor la actividad total del conjunto de probetas y cápsula resultó ser de 0.18 GBq, siendo el Co60 el principal radionucleído presente.

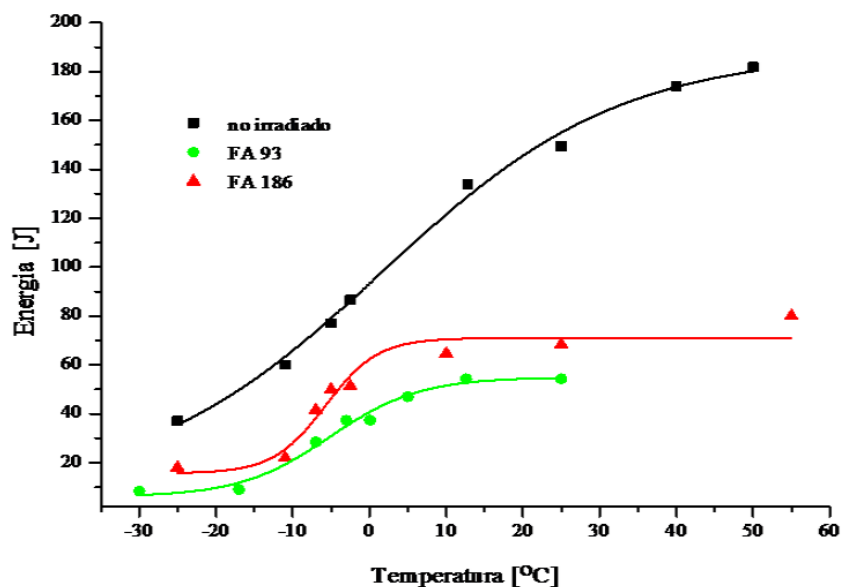


Figura 4. Corrimiento de la curva de absorción de energía para distintos factores de avance

Dentro del contenedor blindado se identificó que la medida de la contaminación superficial externa resultó menor a los 0.4 Bq/cm^2 , siendo su tasa de exposición en contacto menor a 0.1 mSv/h . Estos valores fueron similares en ambos conjuntos irradiados.

3.2. Resultados de los estudios magnéticos

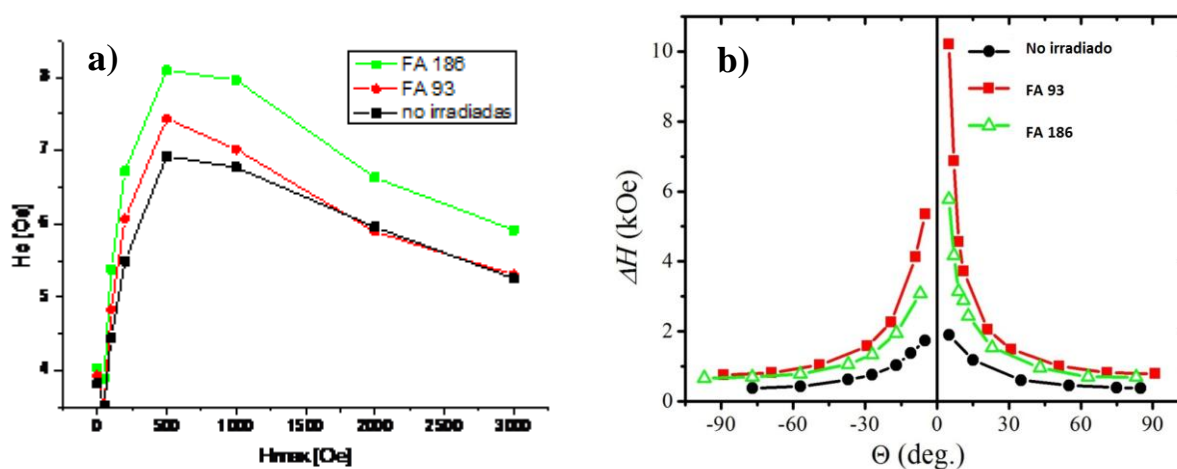


Figura 5. Comportamiento magnético en láminas delgadas. a) campo coercitivo H_c , b) curvas de resonancia ferromagnética

En la Figura 5 se muestran los resultados de los análisis magnéticos. El hecho de que el valor del campo coercitivo H_c para la muestra con FA = 93 es menor que la correspondiente a la muestra con FA = 186 (Figura 5 a) se puede explicar mediante la comparación de los resultados con las imágenes de TEM de la Figura 3. En el caso de FA = 93, la presencia de grandes precipitados separados por una distancia relativamente larga entre ellos deja espacio suficiente para el paso de las paredes de dominio, mientras que la distancia es más pequeña para los precipitados correspondientes al FA = 186, que están más cerca uno del otro, formando una barrera casi continua que impide el movimiento de la pared de dominio.

En cuanto a las mediciones de resonancia magnética (Figura 5 b) las tres muestras presentan el mismo comportamiento en función del ángulo polar. Sin embargo, el ancho de línea es diferente para las tres muestras. El ancho de línea surge principalmente por las inhomogeneidades que induce la variación local de la magnetización a lo largo de la muestra.

Dentro de este contexto, los resultados para la muestra no irradiada son consistentes con el hecho de que su estructura es más homogénea que la de los irradiados. También, para el FA menor, el efecto de las inhomogeneidades parece aumentar, situación que acuerda con las imágenes de TEM de la Figura 3. En este sentido, se puede argumentar que la irradiación neutrónica provoca cambios locales en la magnetización a lo largo de la muestra, que se relacionan con las variaciones microestructurales. Los precipitados de mayor tamaño pueden conducir a un comportamiento más inhomogéneo y mayores cambios de magnetización en el orden local. La ausencia de precipitados visibles en la muestra no irradiada implica que la magnetización es homogénea y, como es de esperar, el ancho de línea RFM es el más pequeño de todas las muestras. Cuando el proceso de irradiación se establece, los precipitados crean áreas locales en las que cambia la magnetización [9].

Se ve entonces que los análisis magnéticos coinciden con lo observado por TEM. Tanto las variaciones en el campo coercitivo como los resultados de ancho de línea en los ensayos de RFM, muestran la diferencia de los estados metalúrgicos del acero para las distintas velocidades de irradiación, o sea para las diferentes estructuras de precipitados.

Además las diferencias observadas en los ensayos de impacto tienen su correlación en los ensayos magnéticos. La cuantificación de estas variaciones y su importancia relativa dan idea del estado metalúrgico, es decir permiten determinar el estado de fragilización [10]. En los programas de vigilancia contenedores con gran cantidad de probetas de alta actividad deben trasladarse desde las centrales de potencia hacia las celdas calientes. Una completa correlación daría una herramienta poderosa para el seguimiento de la integridad del RPV, ya que podría hacerse in situ y estarían involucradas masas ínfimas con lo que la exposición a la radiación sería mínima.

4. CONCLUSIONES

Los resultados muestran que las técnicas magnéticas son altamente sensibles a la distribución espacial de los precipitados; son necesarios más ensayos para una completa correlación con los resultados de impacto tradicionales.

Aplicadas convenientemente, estas técnicas reducen en más de tres órdenes de magnitud la masa de material activo necesario para determinar la fragilidad del RPV, y podrían implementarse in situ sin necesidad de trasladar el material a celdas calientes.

5. REFERENCIAS

1. Singh B.N., Foreman A.J.E., Trinkaus H., “Radiation Hardening Revisited: Role of Intracascade Clustering”, *Journal of Nuclear Materials* **249**, pp.103-115 (1997)
2. Norma de la *American Society for Testing and Materials*, ASTM E-23
3. Odette G.R., “Modelling Irradiation Embrittlement in Reactor Pressure Vessel Steels”, *IAEA TRS* (2002).
4. Wirth B.D., Odette G.R., Maroudas D., and Lucas G.E., “Energetics of Formation and Migration of Self Interstitials Clusters in α Iron”, *Journal of Nuclear Materials*. **244**, pp.185-198 (1997).
5. Stoller R.E., Odette G.R. and Wirth B.D., “Primary Damage Formation in BCC Iron”. *J.Nucl. Mater.* **251**, pp.49-55 (1997).
6. Wirth B.D, “On the Character of Nano-Scale Features in Reactor Pressure Vessel Steels Under Neutrons Irradiation”, *PHD Thesis, Department of Materials, UC Santa Barbara*, (1998).
7. Kronmuller H. and Fahnle M., *Micromagnetism and Microstructure of Ferromagnetic Solids*, Cambridge University Press, Cambridge, (2003).
8. Kobayashi S., Kikuchi H., Takahashi S., Chiba K., Kamada Y. and Ara K. “Neutron Irradiation Effects in Fe-Cu-Ni-Mn Model Alloys Studied by Measurements of Magnetic Minor Hysteresis Loops” *Philosophical Magazine* **87**, n°26, pp.4047-4058 (2007).
9. Kobayashi S., Kikuchi H., Takahashi S., Kamada Y., Ara K., Yamamoto T., Klingensmith D., Odette G.R., “The Effect of Copper and Manganese on Magnetic Minor Hysteresis Loops in Neutron Irradiated Fe Model Alloys”, *Journal of Nuclear Materials* **384**, pp.109-114 (2009).
10. Kempf R.A., Sacanell J., Milano J., Guerra Méndez N., Winkler E., Butera A., Troiani H., Saleta M.E., Fortis A.M., “Correlation Between Radiation Damage and Magnetic Properties in Reactor Vessel Steels”, *Journal of Nuclear Materials* **445** pp.57–62 (2014).