

22 a 27 de abril de 1990

ANAI S - PROCEEDINGS

**ESTUDO DO COMPORTAMENTO DE AÇOS INOXIDÁVEIS  
AUSTENÍTICOS SOB IRRADIAÇÃO DE NÊUTRONS**

Atsuo Yoshimoto

Comissão Nacional de Energia Nuclear  
Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares  
Departamento de Tecnologia de Reatores  
Divisão de Engenharia do Núcleo

**SUMÁRIO**

Sob irradiação de nêutrons, aços inox austeníticos apresentam alterações microestruturais, que alteram as suas propriedades. Apresentam também variações dimensionais como inchamento e fluência induzida pela irradiação.

**ABSTRACT**

Under neutron irradiation stainless steel exhibit microstructural changes, which alter their properties. These kind of materials also show dimensional variations as a result of swelling and creep caused by irradiation.

## 1. INTRODUÇÃO

Pelo fato dos reatores nucleares necessitarem de altos requisitos de segurança e performance, não sendo permitidas falhas nas condições normais de operação, a escolha dos materiais a serem utilizados dentro de núcleo de reatores obedecem a critérios rigorosos, que garantam um mínimo de falha. A escolha depende de vários fatores como os relacionados a: i) fatores neutrônicos; ii) comportamento dos materiais no meio de trabalho; iii) fatores econômicos e disponibilidade e iv) fatores de segurança.

Aços inoxidáveis austeníticos são utilizados como materiais estruturais em reatores nucleares devido apresentarem boas propriedades mecânicas até altas temperaturas e excelente resistência à corrosão em meio aquoso. Para revestimento dos combustíveis nucleares, utilizados em reatores de potência, são mais empregadas ligas a base de zircônio e aços inoxidáveis austeníticos, sendo mais utilizado o primeiro (PWR e BWR).

Os revestimentos dos combustíveis nucleares não devem apresentar falhas durante operação do reator, para evitar que produtos de fissão sejam liberados, e também evitar o contato da água de refrigeração com o combustível físsil. Então o comportamento dos materiais utilizados como revestimento dos combustíveis nucleares devem ser conhecidos, e as variações das propriedades devido interação com partículas energéticas necessitam serem quantificadas, e levadas em consideração em projetos de reatores. Neste trabalho são resumidas algumas propriedades de aços inoxidáveis austeníticos, encontradas na literatura, quando sob irradiação de nêutrons de alta energia.

## 2. ASPECTOS MICROESTRUTURAIS RELACIONADOS COM A IRRADIAÇÃO

Em metais, durante irradiação de nêutrons de alta energia, são formados defeitos puntiformes, devido deslocamento dos átomos de suas posições da rede cristalina pelos nêutrons incidentes /1, 2/. Uma representação esquemática da interação de um nêutron incidente com um material de estrutura CFC é mostrado na figura 1. Resultante desta interação são formados defeitos puntiformes e região com menor densidade de átomos, denominada de zona rarefeita.

A formação de defeitos em aços inoxidáveis austeníticos durante irradiação de nêutrons é dependente da temperatura de irradiação. Este fato pode visto quando é determinada as propriedades mecânicas após irradiação. Um exemplo é dado na figura 2, onde é fornecida a ductilidade, obtida em testes realizados à temperatura de 50°C, para um aço inox austenítico 316 recozido, que foi irradiado até fluência neutrônica de  $3 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$  ( $E > 0,1 \text{ Mev}$ ) /1, 3/. A baixa ductilidade obtida com temperatura de irradiação menores que 480°C é relacionado com a alta concentração de defeitos na microestrutura. A mais altas temperaturas a concentração de defeitos diminui, levando a aumento na ductilidade. Em torno de 550°C átomos de hélio, formados de reações de transmutação, começam a apresentar mobilidade e formar bolhas, levando à fragilização, que é significativa a altas temperaturas como 750°C. Este efeito

é dependente do teor de hélio, e para  $-1 \times 10^{22} \text{n/cm}^2 (E > 0,1 \text{Mev})$  são formados alguns ppm atômico.

### 3. ESTABILIDADE DAS FASES

Durante irradiação de nêutrons, aços inox austeníticos podem apresentar transformações de fase devido alterações químicas em microrregiões. Estas alterações ocorrem devido migração de soluto para precipitados e/ou vazios /5/. Pode haver formação de fases como  $\gamma'$  (nominalmente  $\text{Ni}_3\text{Si}$ ) que não é observado nas mesmas condições fora do reator. Esta fase é instável na ausência de irradiação /4/. Em aços inox 316 com 20 % de deformação a frio foi encontrada fração volumétrica de -1,5%, quando irradiados a  $-5 \times 10^{22} \text{n/cm}^2 (E > 0,1 \text{Mev})$  e temperaturas entre  $350^\circ\text{C}$  e  $500^\circ\text{C}$  /4/.

Precipitados que são normalmente encontrados após tratamentos térmicos de envelhecimento podem ter a cinética de precipitação acentuada e/ou composição química alterada. A segregação de solutos para precipitados e vazios está relacionado com um mecanismo de transporte envolvendo troca de posições entre solutos e lacunas, levando a um fluxo livre de solutos para os precipitados e outros absorvedouros /5/.

### 4. EFEITOS DE ELEMENTOS DE LIGA NAS ALTERAÇÕES MICROESTRUTURAIS

As alterações microestruturais que ocorrem durante a irradiação são influenciadas pela presença de elementos de liga. Nos aços inox austeníticos, solutos como C, Ni e Si em determinados teores reduzem o inchamento. O efeito do níquel em liga Fe-Ni-15Cr é mostrado na figura 3, onde é dado o inchamento em função da fluência neutrônica.

Quando em solução silício aumenta o tempo de incubação para a nucleação de vazios, levando à diminuição no inchamento. Em aço inox AISI 316 com 20% de deformação a frio, teores de silício entre -0,4-0,5% em peso leva a menor inchamento /7/. Com aumento de teor de carbono (0,01 para 0,05% em peso), há também diminuição no inchamento /6/. O efeito dos solutos no inchamento dos aços inox austeníticos são sinérgicos, e parece que está relacionado com a formação de fases durante a irradiação ou a migração destes solutos para precipitados e vazios /6,8/. Em aço inox 316 com 20-25% d.f., presença de titânio aumenta significativamente a resistência ao inchamento /9/.

### 5. PROPRIEDADES MECÂNICAS

As alterações microestruturais que ocorrem durante irradiação de nêutrons afetam significativamente as propriedades mecânicas. Ocorre significativo aumento na resistência mecânica e diminuição na ductilidade. Estas alterações são dependentes da temperatura de irradiação, fluência neutrônica e temperatura de teste. Composição química e microestrutura inicial afetam também as propriedades mecânicas finais. Na figura 4 são fornecidos dados de propriedades mecânicas de tração em função da temperatura de teste, para aço

inox do tipo 304 /10 a 12/, quando irradiados a várias fluências neutrônicas e várias temperaturas. Com testes realizados acima de 450-500° C, as propriedades mecânicas diminuíram significativamente indicando que recuperação dos danos de irradiação é acentuado, mas a ductilidade não é recuperada. Este fato está relacionado com a fratura prematura, causada pela formação de bolhas de hélio. Na figura 5 são resumidos alguns dados de tração para aços inox 316 /19/ e na figura 6 para aço inox 348 /15 a 18/.

## 6. INCHAMENTO

Ocorre inchamento em aços inox austeníticos devido aglomeração de defeitos puntiformes formados durante irradiação. Lacunas podem-se aglomerar e formar vazios, e intersticiais podem formar anéis de discordâncias. A formação destes aglomerados e vazios dependem das condições de irradiação /1,19/.

São formados vazios devido a existência de interações preferenciais entre intersticiais e discordâncias, e entre vazios e lacunas/1,19/. Isto parece ser devido discordâncias apresentarem um raio de captura para intersticiais maior do que para lacunas, pelo fato de existir uma interação maior entre o campo de tensão existente ao redor de uma discordância com o campo de tensão estabelecido por um átomo intersticial. No caso de lacunas o campo de tensão é muito menor. Com isso existe um fluxo de lacunas para vazios e um fluxo de intersticiais para discordâncias /1/.

O inchamento dos aços inox austeníticos dependem das condições de irradiação, dos fatores microestruturais e da composição química. Todos estes fatores parece que afetam a concentração de defeitos puntiformes e na migração destes defeitos.

Deformação a frio em aços do tipo 316 leva a aumento na resistência ao inchamento, mas em aço 304 em alguns casos há aumento no inchamento. Na figura 7 é mostrado o inchamento de um aço 304 em função da temperatura /9,10,24a27/. E inchamento em função da fluência neutrônica são fornecidos nas figuras 8 a 10, para aços 304, 316 e 348 respectivamente.

## 7. FLUÊNCIA INDUZIDA PELA IRRADIAÇÃO

Em temperaturas onde normalmente a fluência térmica é desprezível, pode ocorrer deformação quando aços inox austeníticos são irradiados sob ação de tensão. Estas temperaturas situam-se normalmente abaixo de 500-600°C. A mais altas temperaturas, fluência térmica começa a ser significativa.

Existem várias teorias que tentam explicar o mecanismo de fluência induzida pela irradiação, sendo que a maioria levam em consideração a formação de anéis de lacunas e de intersticiais, o deslizamento de discordâncias ou absorção preferencial de lacunas e intersticiais sob ação de uma tensão /1,29a33/. Mas ainda existem muitas suposições sobre o mecanismo ou mecanismos atuantes.

Entre os mecanismos propostos estão: i) nucleação preferencial de anéis de intersticiais; ii) absorção preferencial de defeitos puntiformes pelas discordâncias orientadas favoravelmente a uma tensão aplicada; iii) escalagem e escorregamento de discordâncias e iv) deformação orientada pela tensão produzida por crescimento durante irradiação.

A escalagem de discordâncias pode ocorrer com a absorção preferencial de defeitos puntiformes gerados durante a irradiação de nêutrons, e após escalagem, sob ação de uma tensão, pode ocorrer escorregamento, levando a uma deformação. Isto ocorre devido interação entre os campos de tensão gerados pelos defeitos e o gerado pela discordância, que é alterada pela ação de uma tensão. Anéis de lacunas podem também serem formados em maior quantidade em planos perpendiculares a uma tensão aplicada /1/.

A formação de anéis de intersticiais podem ser orientadas pela tensão, que são formados em planos aproximadamente perpendiculares a uma tensão de tração. Este favorecimento está relacionado com a diminuição da energia necessária à nucleação dos anéis de intersticiais. Dos vários mecanismos propostos, é possível que mais de um destes atuem simultaneamente, dependendo da temperatura, fluência neutrônica e da tensão aplicada. Fluência induzida pela irradiação, para aços 304 e 348 são fornecidas nas figuras 11 e 12. As amostras de aço 304 foram irradiadas a 380°C /33/ e as de aço 348 a 385°C /15 e 18/.

## 8. CONCLUSÃO

Sob irradiação de nêutrons, aços inox apresentam alterações na microestrutura. São formados defeitos puntiformes, de linha e tridimensionais, que afetam as propriedades destes aços. Pode ocorrer transformações de fase ou formações de novas fases; e precipitados que normalmente são formados em tratamentos térmicos de precipitação podem ter sua composição química alterada e/ou acentuada pela irradiação.

A resistência mecânica aumenta significativamente com irradiação a fluências acima de  $-5 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$  ( $E > 0,1 \text{ Mev}$ ), e temperatura entre  $-350-500^\circ\text{C}$ . A altas fluências como  $2 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$  ( $E > 0,1 \text{ Mev}$ ), a ductilidade cai para  $-1\%$ .

Ocorre aumento de volume devido formação de vazios tridimensionais, e também deformação induzida pela irradiação, que podem ser significantes quando atingidas fluências neutrônicas acima de  $1 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$  ( $E > 0,1 \text{ Mev}$ ).

As alterações nas propriedades mecânicas e variações dimensionais podem afetar a performance de um reator nuclear. No caso de varetas combustíveis, interação entre pastilha e revestimento pode levar à ruptura do revestimento se este não apresentar deformação plástica, que permite o alívio das tensões atuantes.

## 9. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. OLANDER, D.R. - Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements. Published by Technical Information Center Energy Research and Development Administration USA, 1976. Pág 499-514.
2. BUSH, S.H. - Irradiation Effects in Cladding and Structural Materials. Rowman and Littlefield, Inc., New York-ASM, 1965.
3. FISH, R.L. & HOLMES, J.J. Tensile properties of annealed type 316 ss after EBR II irradiation. J. Nucl. Mater., 46:113-120, 1973.
4. BRAGER, H.R. & GARNER, F.A. Swelling as a consequence of gamma prime and M (C,Si) formation in neutron irradiated 316 ss. J. Nucl. Mater., 73:9-19, 1978.
5. PORTER, D.L. & WOOD, E.L. In reactor precipitation and ferritic transformation in neutron irradiated ss. J. Nucl. Mater., 83:90-97, 1978.
6. GARNER, F.A. The microchemical evolution of irradiated ss. In Phase Stability During Irradiation. Edited by J.R. Holland, L.K. Mansur & D.I. Potter. A Publication of the Metallurgical Society of AIME, 1980. Página 165-189.
7. STRAALSUND, J.L. e outros. An overview of neutron irradiation effects in LMFBR materials. J. Nucl. Mater., 108/109:299-305, 1982.
8. GARNER, F.A. & BATES, H.R. The influence of Mo, Si, P, C, Ti, Cr, Zr and various trace elements on the neutron induced swelling of AISI 316 ss. J. Nucl. Mater., 155/157:833-837, 1988.
9. MAZIASZ, P.J. Swelling and swelling resistance possibilities of austenitic steel fusion reactors. J. Nucl. Mater., 122/123: 472-486, 1984.
10. FISH, R.L. & HUNTER, C.W. Tensile properties of fast reactor irradiated type 304 ss. ASTM STP 611, 1966. Página 119-138.
11. BLOOM, E.E. & WEIR, J.R. Effect of neutron irradiation on the ductility of austenitic ss. Nucl. Technol., 16:45-54, 1972.
12. CLAUDSON, T.T. e outros. The effects of fast flux irradiation on the mechanical properties and dimensional stability of ss. Nucl. Appl. & Technol., 9(7):10-23, 1970.
13. DUFRESNE, J. e outros. Fracture toughness of irradiated AISI 304 and 316 ss. ASTM STP 683, 1979. Página 511-528.
14. HOLMES, J.J. e outros. Ductility of irradiated type 316 ss. ASTM STP 529, 1973. Página 383-398.
15. FISHER, R.L. The Effect of neutron irradiation on the mechanical properties of type 348 ss in pile pressure tubes. WADP-TM-1489, 1981.
16. KUPOWICZ, J.J. Evaluation of the mechanical properties of an irradiated type 347 ss, in pile tube with a peak fluence of  $4 \times 10^{22}$  n/cm<sup>2</sup> (E > 1mev). WAPD-TM-1425, 1979.
17. KANGILASKI, M. e outros. Influence of irradiation temperature on the tensile properties of ss. ASTM STP 484, 1970.
18. BEESTON, J.M. Mechanical and physical properties of irradiated type 348 ss. ASTM STP 725, 1981. Página 303-325.
19. MANSUR, L.K. & BLOOM, E.E. Radiation effects in reactor structural alloys. Journal of Metals, 10:23-31, 1982.
20. KENFIELD, T.A. e outros. Stress-free swelling in type 304 ss at high fluences. Nucl. Technol., 36(12):347-352, 1977.

21. SANDUSK, D.W. & SPALARIS, C.N. Irradiation temperature dependence of void formation in type 304 ss. J. Nucl. Mat., 42:133-141, 1972.
22. FOSTER, J.P. & STRAIN, R.V. Empirical swelling equations for solution annealed type 304 ss. Nucl. Technol., 24:93-97, 1974.
23. FOSTER, J.P. & FLINN, J.E. Residual stress behaviour in fast neutron irradiated SA AISI 304 ss cylindrical tubing. J. Nucl. Mat., 89:99-112, 1980.
24. BATES, J.F. & STRALSUND, J.L. An empirical representation of irradiation induced swelling of solution treated type 304 ss. Nucl. Technol., 14(6):292-298, 1972.
25. BATES, J.F. & GILBERT, E.R. Effects of stress on swelling in 316 ss. J. Nucl. Mat., 71:286-291, 1978.
26. KENFIELD, T.A. e outros. Swelling of type 316 ss at high fluences in EBR II. J. Nucl. Mat., 75: 85-97, 1978.
27. MAKENAS, B.J. The swelling behaviour of 20% cw 316 ss cladding irradiated with and without adjacent fuel. ASTM STP 782, 1982. Páginas 17-29.
28. SERAN, J.L. & DUPOY, J.M. The swelling of solution annealed 316 cladding in Rapsodie and Phenix. ASTM STP 782, 1982. Pág 5-16.
29. GARNER, F.A. Recent insights on the swelling and creep of irradiated austenitic alloys. J. Nucl. Mat., 122/123: 459-471, 1984.
30. HARRIES, D.R. Irradiation creep in non fissile metals and alloys. J. Nucl. Mat., 65: 157-173, 1977.
31. LEWTHWAITE, G.W. Irradiation creep during void production. J. Nucl. Mat., 46:324-328, 1973.
32. BULLOUGH, R. & HAYNS, M.R. Irradiation creep due to point defect absorption. J. Nucl. Mat., 57: 348352, 1975.
33. WALTER, L.C. e outros. The in-reactor creep of helium pressurized 304L ss tube. J. Nucl. Mat., 43: 133-142, 1972.

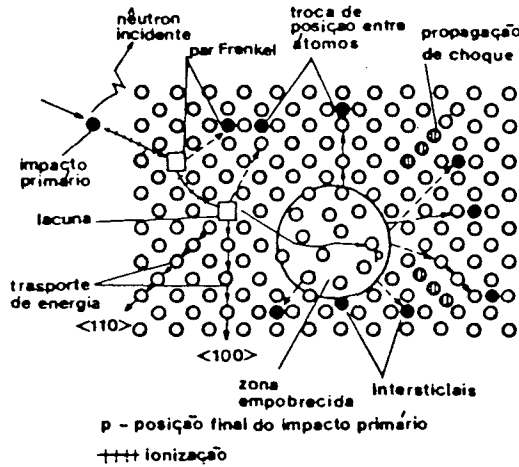


FIG 1. Representação esquemática da interação de um nêutron com material de estrutura cristalina CFC. Ref. 2.

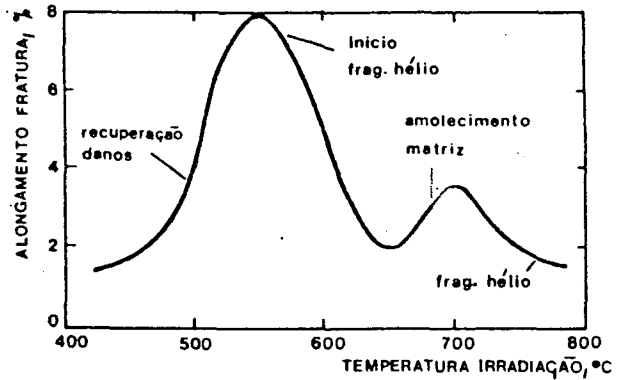


FIG 2. Efeito da temperatura sobre a ductilidade de um aço inox 316. Fluência neutrônica de  $3 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$  ( $E > 0,1 \text{ Mev}$ ) e temperatura de teste de  $50^\circ \text{C}$ . Adaptado da ref. 1 e 3.

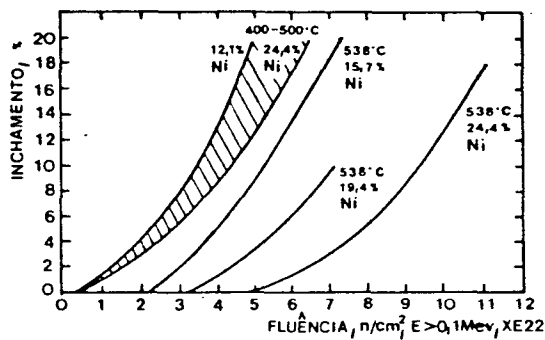


FIG.3. Influência do teor de Ni na resistência ao inchamento de liga Fe-Ni-15Cr. Temperatura de irradiação entre  $400-538^\circ \text{C}$ . Adaptado da ref. 6.

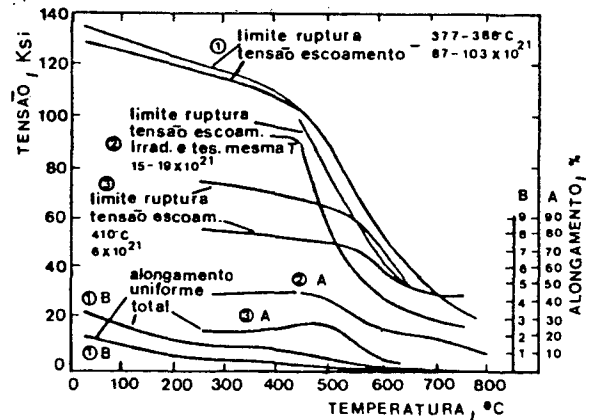


FIG.4. Propriedades mecânicas de tração de aço inox 304 irradiados a várias fluências neutrônicas, e testadas na faixa de  $25$  a  $800^\circ \text{C}$ . Adaptado das ref. 10-12.

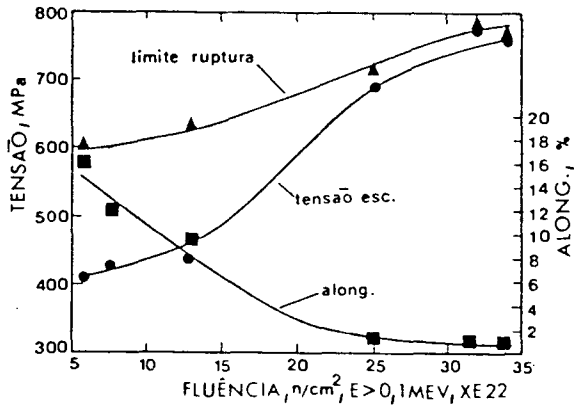


FIG.5. Propriedades mecânicas de tração de aço inox 316 recozido, irradiados entre 400-600°C, e testados a 430°C. Adaptado da ref. 14.

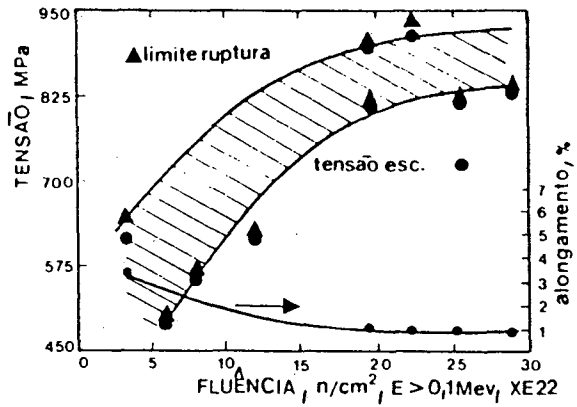


FIG 6. Propriedades mecânicas de tração de aço inox 348. Amostras irradiadas entre 330-400°C, e testadas na faixa de temperatura de 310-430°C. Adaptado das ref. 15 a 18.

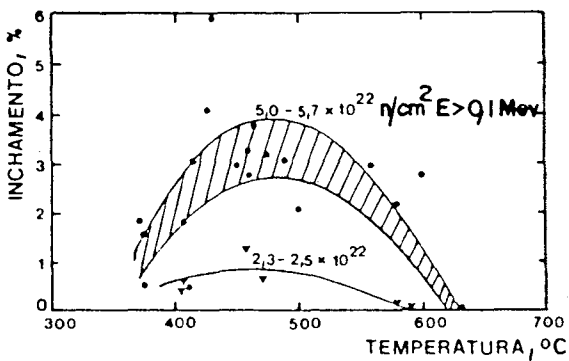


FIG.7. Inchamento de aço inox.304 recozido. Adaptado das ref. 12 e 20 a 24.

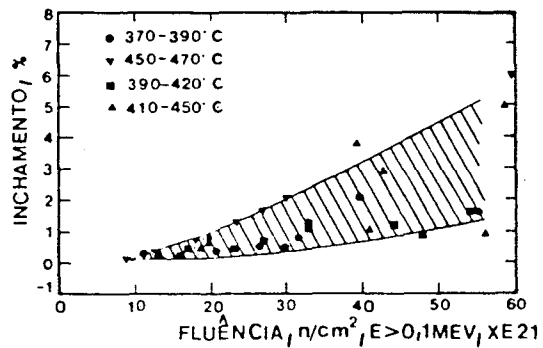


FIG 8. Inchamento de aço inox 304 recozido. Adaptado das ref.22,23 e 24.

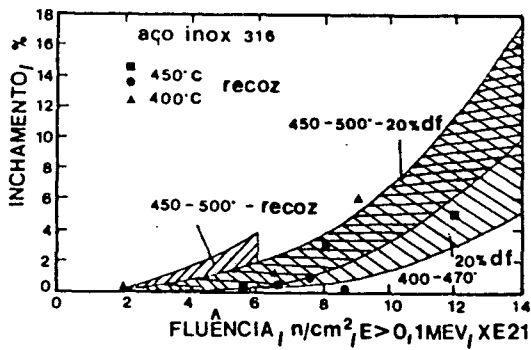


FIG 9. Inchamento de aço 316 recozido e com 20% d. f.. Adaptado das ref. 25 a 28.

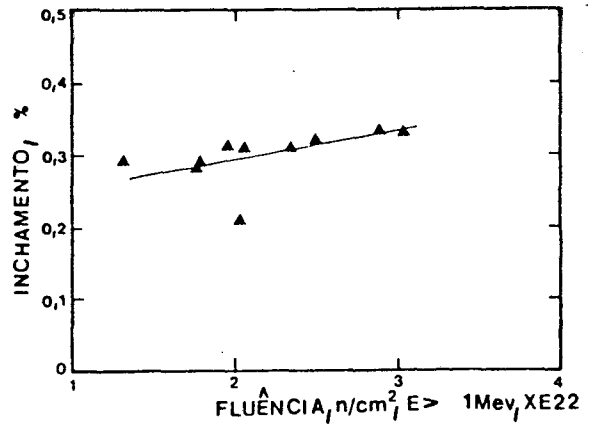


FIG 10. Inchamento de aço inox 347/348 recozidos, irradiados a temperaturas entre 330-390°C. Adaptado das ref 15,18 e 30.

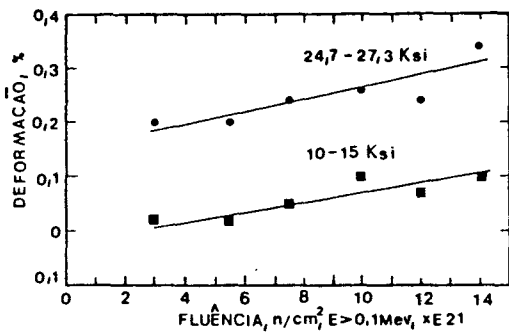


FIG 11. Fluência induzida pela irradiação em aço inox 304L. Amostras irradiadas a 380°C. Adaptado da ref. 33.

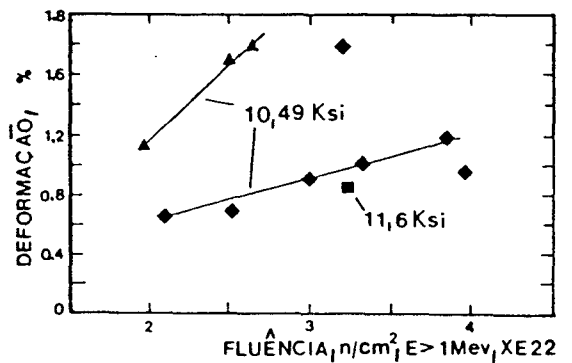


FIG 12. Fluência induzida pela irradiação em aço inox 347/348. Adaptado das ref. 15 e 18.