



22 a 27 de abril de 1990

ANAIS - PROCEEDINGS

INFLUÊNCIA DO HÉLIO NA FRAGILIZAÇÃO DE AÇOS INOXIDÁVEIS

Georgi Lucki
Deise A.C. Corrêa
Valdir Sciani

Comissão Nacional de Energia Nuclear - SP
Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares
Caixa Postal 11.049 - Pinheiros
05499 - São Paulo - Brasil

SUMÁRIO

Reações nucleares de transmutação produzem impurezas sólidas e gasosas em materiais estruturais e de revestimento de reatores nucleares, originárias de: 1) Formação de He a partir da reação (n, α) e do H pela reação (n, p) , em todos os tipos de reatores. 2) Desintegração do Trítio em He dentro da estrutura do material. Neste trabalho é feita uma revisão sobre: a) propriedades dos átomos de He e seus aglomerados, b) formação de bôlhas e c) alteração de propriedades devidas ao He, com ênfase à fragilização medida por meio da fluência. São analisados estudos da microestrutura do aço inoxidável 316 antes e depois da irradiação no reator.

ABSTRACT

Nuclear reactions produce solid and gaseous impurities in structural and cladding materials of nuclear reactors generated by: 1) He and H production from (n, α) and (n, p) nuclear reactions, respectively, in all reactor types. 2) Tritium to He decay in materials structure. A review is made of He effects on: a) properties of He atoms and its clusters, b) formation of He bubbles, and c) property changes due to He, emphasizing the embrittlement evaluated by means of creep measurements. An analysis is made on the microstructure of stainless steel 316 before and after reactor irradiation.

INTRODUÇÃO

A presença de gases em metais e ligas, mesmo em pequenas quantidades (alguns ppma), altera as suas propriedades elétricas, magnéticas e mecânicas, motivo pelo qual o estudo de gases em metais tem importância tecnológica. Esta importância cresceu com o desenvolvimento da tecnologia nuclear, onde a interação de neutrons com materiais do combustível, do revestimento e estruturais, ocasiona deslocamentos atômicos e produz elementos diferentes aos da matriz em consequência de reações de transmutação nuclear /1/. Entre as reações de transmutação, as mais importantes são as geradoras de gases, como (n, α) , (n, p) , (n, d) , destacando-se a criação de Hidrogênio e Hélio que podem causar drásticas mudanças de propriedades físicas. Barnes /2/ em 1965, deu um importante estímulo ao estudo do He em metais e seus efeitos sobre as propriedades macroscópicas ao evidenciar que a fragilização que ocorria em altas temperaturas em aços inoxidáveis era devida a bôlhas de He localizadas nos contornos de grão. Uma década depois, ficou evidente que os grandes fluxos de neutrons de fusão levariam a taxas de produção de He mais de uma ordem de grandeza acima dos neutrons rápidos de fissão (tabela 1).

TABELA 1

Taxas típicas de produção de He na Tecnologia Nuclear /2/

TAXA	ORIGEM	REAÇÃO
~15 ppma/ano	reatores rápidos	(n, α)
~300 "	dispositivos de fusão	(n, α)
~100 "	armazenamento de Trítio	(t, He^3)
~100 "	fonte intensa de neutrons	(p, α)
alguns%/hora	implantação de partículas alfa	α

Como os átomos de He possuem uma mobilidade extremamente baixa em metais /3/, existe uma forte tendência à sua precipitação em bôlhas, principalmente nos contornos de grão /4/, o que leva a efeitos macroscopicamente observáveis, como a fratura intergranular prematura, consequência da fragilização por He em altas temperaturas. O inchaço (aumento de volume devido à formação de cavidades) é um dos efeitos de radiação mais críticos em materiais nucleares. As cavidades são agregados tridimensionais de lacunas, cuja nucleação se dá preferencialmente sob a ação de impurezas gasosas, principalmente He, e crescem devido à supersaturação de lacunas causada pela forte atração de átomos intersticiais para as discordâncias. Os gases são essenciais para a formação de cavidades, sendo o He o mais atuante na nucleação: a introdução de 10 ppma aumenta a concentração de cavidades cerca de 10 vezes, apesar de quantidades maiores de outros gases /5/.

Em reatores de fusão, He e H serão produzidos e difundidos na estrutura em quantidades significativas. Em materiais não danificados pela irradiação e que não reagem quimicamente com H, o problema de solubilidade é desprezível. Entretanto, a concentração de H em materiais sob irradiação deve ser considerada, já que poderia levar a grandes concentrações de Trítio e conseqüentemente a uma significativa produção de He a partir da desintegração do Trítio. Os resultados da dessorção térmica mostram que o H produzido além do limite de solubilidade será liberado em temperaturas relativamente bai-

xas, mesmo em materiais danificados pela irradiação. A situação com He é completamente diferente; estudos de dessorção térmica mostram que He pode permanecer em metais até a temperatura de fusão /6/. A produção de He no revestimento gerador (breeding) onde o efeito predominante é a produção de He a partir da reação do Trítio em Lítio - uma ordem de grandeza maior que pela reação (n, α) - indicam que o efeito de altas concentrações de He em materiais estruturais e de geração deve ser estudado quanto à sua estabilidade mecânica.

PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

Foram estudadas amostras do aço inoxidável 316, com 100 μm de espessura, 2 mm de largura e comprimento útil de 11 mm, com a seguinte composição nominal em % de peso: Ni=11,43 - Cr=17,35 - Mo=2,24 - Mn=0,89 - Si=0,54 - C=0,048 - S=0,019 - P=0,031 e Fe=balanço. O tratamento termomecânico consistiu em: corte de chapas de 200 μm e recozimento a 1.050°C durante uma hora em vácuo melhor que 10^{-5} Torr seguido de laminação até a espessura de 100 μm e corte por eletroerosão até as dimensões acima citadas. Foram preparados tres lotes de amostras: a) amostras não irradiadas de referência, b) amostras irradiadas no reator IEA-R1 até um fluxo integrado de $8,7 \cdot 10^{17}$ n/cm², com neutrons rápidos ($E=1$ MeV), c) amostras implantadas com partículas alfa no cíclotron com 5 e 26 ppma. As irradiações no reator e no cíclotron foram feitas em dispositivos apropriados descritos em /7/. Durante os testes de fluência as tensões eram aplicadas por meio de um sistema com mola calibrada e nônio, e as deformações eram monitoradas por meio de um sensor de deslocamento LVDT, permitindo medições de deslocamentos da ordem de micrômetros. Todos os testes de fluência foram realizados em vácuo de 10^{-5} Torr. Os aquecimentos foram lineares até a temperatura do experimento, que era mantida por 20 minutos para garantir a estabilização térmica do conjunto experimental, antes da aplicação da carga. A temperatura era regulada por um termopar Ni-Cr=Ni em contato térmico com o forno e monitorada por um termopar igual, próximo à amostra. A temperatura e a deformação da amostra eram acompanhadas num registrador de 2 canais. O delineamento dos grãos para as observações metalográficas foi feito com uma solução de 60% de HNO₃ e 40% de água destilada, com tensão de 2V e corrente de 4A, durante 27 segundos. As amostras para a microscopia eletrônica de transmissão foram submetidas ao polimento eletrolítico a jato com uma solução de 80% de ácido perclórico e 20% de metanol, com tensão de 15V e corrente de 200 mA a uma temperatura próxima a 0°C.

RESULTADOS E DISCUSSÃO

Observações metalográficas ao microscópio óptico, realizadas ao longo da espessura das amostras (100 μm), mostram grãos alongados na direção da laminação, evidenciando a morfologia de um material com alto grau de deformação plástica (Fig.1). A espessura tem em média 12 grãos, equivalendo a uma largura média de 8,3 μm para cada grão.

A caracterização do material de referência (amostras não irradiadas) foi realizada no microscópio eletrônico de transmissão de 200 KV. Na Fig.2 são observados grãos bem definidos, com áreas de grande contraste devido ao processo de laminação, com discordâncias, possíveis anéis de discordâncias e alguns precipitados, não sendo observados precipitados nos contornos de grãos. A micrografia do material irradiado com neutrons rápidos, não deformado (Fig.3), mostra basicamente uma microestrutura semelhante à do material não irradiado, com grãos alongados e zonas de grande contraste. O efeito da irradiação manifesta-se por um aumento da densidade de anéis de

discordâncias e precipitados.

Em amostras testadas sob fluência (deformadas), com tensão de 200 MPa e diferentes temperaturas, as observações microscópicas foram feitas na proximidade das zonas de fratura. A microestrutura de amostras não irradiadas e testadas a 650°C é evidenciada na Fig.4, onde se observa a presença de precipitados no contorno de grão, zonas de grande deformação e formação de estruturas celulares; observam-se, ainda, precipitados e discordâncias ancorados dentro do subgrão. A 675°C, e nas mesmas condições da amostra acima, a Fig.5 revela uma rede de discordâncias no interior do subgrão, com áreas em restauração e uma distribuição de precipitados maiores e bem definidos no subgrão e seu contorno. A 700°C, Fig.6, há no interior do subgrão um grande número de precipitados de diferentes tamanhos evidenciando uma interação com as discordâncias e o avanço do subgrão sobre as áreas altamente deformadas, durante o processo de restauração.

A caracterização das amostras irradiadas com neutrons, testadas sob fluência a 650 °C e 200 MPa, apresentam subgrãos bem definidos com precipitados no interior e nos contornos do subgrão, conforme a Fig.7. A 675°C, Fig.8, existem áreas restauradas e precipitados maiores no interior do subgrão, interagindo com discordâncias. Nas amostras irradiadas com neutrons e testadas a 700°C, observa-se uma redução no número de discordâncias no interior do subgrão, com alguns precipitados localizados nas proximidades dos contornos, Fig.9.

Em complementação às observações microestruturais, foram realizadas medidas da fluência nos tres lotes de amostras descritas acima, mostrando uma intensa fragilização provocada pela presença de 5 e 26 ppm de He, em comparação com as amostras não irradiadas e irradiadas com neutrons.

CONCLUSÕES

Dos resultados obtidos, podem ser auferidas as seguintes conclusões:

1. O efeito da irradiação neutrônica na microestrutura produz um aumento na densidade de discordâncias, anéis de discordâncias e precipitados, em amostras não deformadas. Nas amostras testadas em fluência (deformadas), na mesma tensão aplicada e diferentes temperaturas, as microestruturas correspondem aos diferentes estágios de restauração de um material altamente deformado, com a formação de: subgrãos, redes de discordâncias, estruturas celulares e mudanças na distribuição de precipitados e discordâncias, com o aumento da temperatura. A irradiação produz subgrãos e precipitados maiores e bem definidos, com alguns precipitados menores ancorados a discordâncias (Figs. 4, 5, 6, 7, 8 e 9).
2. As curvas de fluência das amostras evidenciam um estágio estacionário pouco definido, em geral, com taxa de fluência crescente até a ruptura, características de aços inoxidáveis austeníticos (Fig.10)
3. Um aumento da tensão aplicada de 200 para 300 Mpa, à mesma temperatura produz uma diminuição de aproximadamente 70% no tempo de ruptura, permanecendo a deformação praticamente inalterada (Fig.10).
4. Um aumento de temperatura de 50°C, em amostras irradiadas com neutrons e não irradiadas, causa uma diminuição de aproximadamente 95% no tempo de ruptura e praticamente dobra o valor da deformação total (Fig.10).
5. A pequena dose da irradiação neutrônica ($8,7 \cdot 10^{17}$ n/cm²) não produz efeito marcante no comportamento das curvas de fluência, notan

do-se apenas uma tendência à fragilização pelo menor tempo de ruptura.

6. Nas amostras implantadas com 5 e 26 ppma de He há uma redução média de 90% no tempo de ruptura e na deformação até a ruptura em relação ao material não implantado, evidenciando uma grande fragilização mesmo com as pequenas concentrações de He. O aumento de 5 para 26 ppma de He, a 200 MPa e 700°C, produz uma perda de ductilidade de aproximadamente uma ordem de grandeza, enquanto que os tempos de ruptura permanecem da mesma ordem. A 675°C os tempos de ruptura e as deformações totais atingem valores semelhantes. A concentração de 5 ppma de He leva a uma maior taxa de deformação inicial em relação às amostras com 26 ppma, que apresentam um maior encruamento durante a deformação (Fig.11)

BIBLIOGRAFIA

1. ULLMAIER, H.- Helium in Metals.
IN: Radiation Effects, 78: 1-10, 1983
2. BARNES, R.S.- Embrittlement of Stainless Steels and Nickel-Based Alloys at High Temperatures Induced by Neutron Radiation.
IN: Nature, 206: 1307-10, 1965
3. DRIESCH, H.J.; JUNG, P.- An Investigation of the solubility of Helium in Nickel.
IN: High Temperature-High Pressure, 12: 635-41, 1980
4. SCHROEDER, H.- High Temperature Embrittlement of Metals by Helium
IN: Radiation Effects, 78: 297-314, 1983
5. FARREL, K.- Experimental Effects of Helium on Cavity Formation During Irradiation.
IN: Radiation Effects, 53: 175-94, 1980.
6. SCIANI, V.; JUNG, P.- Diffusion of Helium in fcc Metals.
IN: Radiation Effects, 78: 87-99, 1983
7. CORREA, D.A.C.- Estudo da Fluência do Aço Inoxidável AISI-316 Irrradiado com Neutrons Rápidos e Partículas Alfa - SP - Dissertação de Mestrado - IPEN-CNEN/SP - SP - 1988

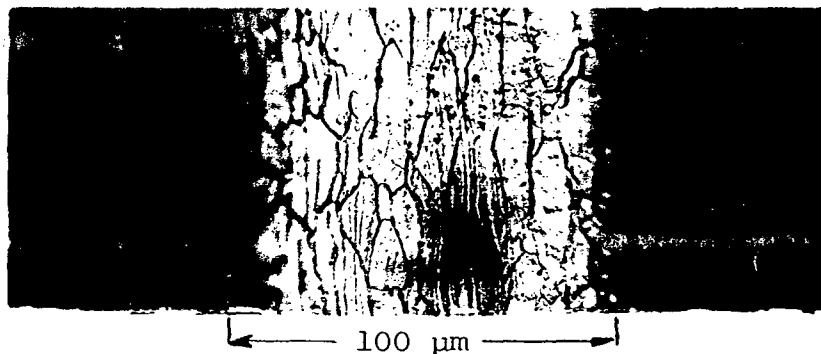


FIGURA 1.- Morfologia granulométrica das amostras de aço inoxidável 316 - largura média do grão 8,3 μm .

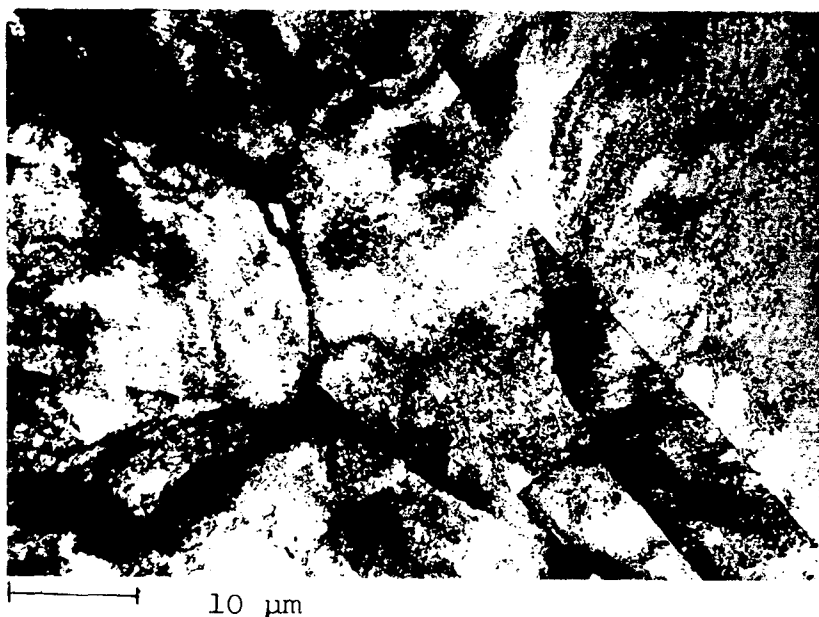


FIGURA 2.- Microestrutura do aço inoxidável no estado inicial.

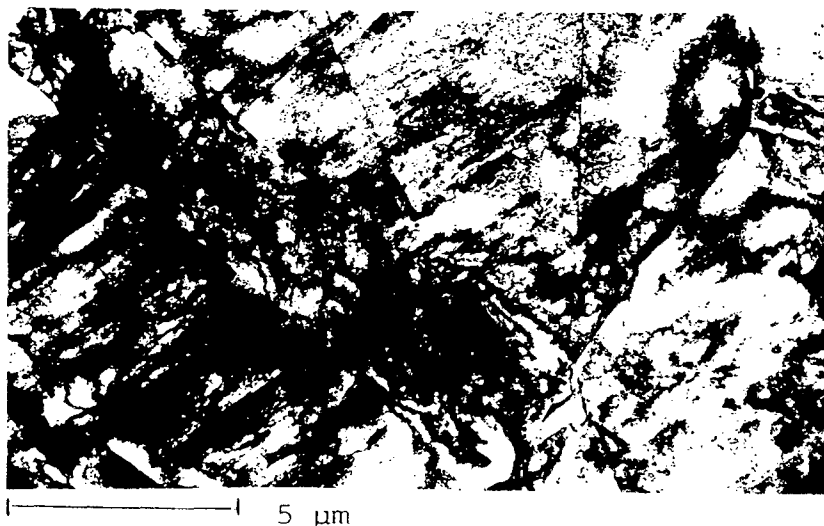


FIGURA 3.- Microestrutura do material irradiado com neutrons rápidos ($E \approx 1 \text{ MeV}$).

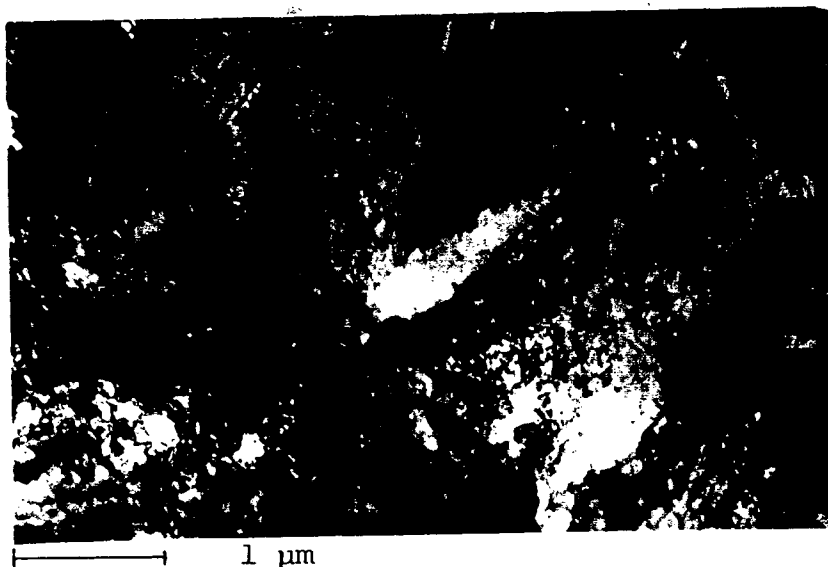


FIGURA 4.- Microestrutura de amostra não irradiada, deformada com 200 MPa a 650°C.

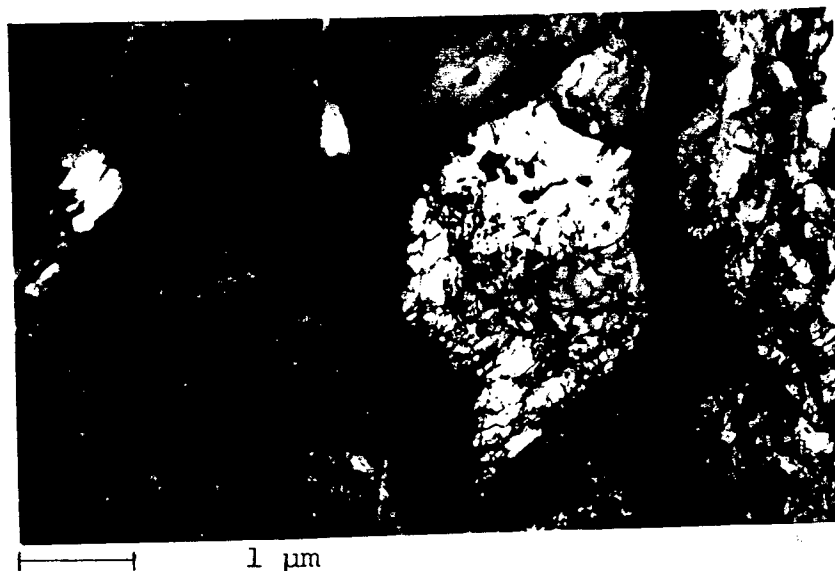


FIGURA 5.- Microestrutura de amostra não irradiada, deformada com 200 MPa a 675°C.



FIGURA 6.- Microestrutura de amostra não irradiada, deformada com 200 MPa a 700°C.



FIGURA 7.- Microestrutura de amostra irradiada com neutrons deformada com 200 MPa a 650°C.



FIGURA 8.- Microestrutura de amostra irradiada com neutrons testada sob 200 MPa a 675°C.



FIGURA 9.- Microestrutura de amostra irradiada com neutrons testada sob 200 MPa a 700°C.

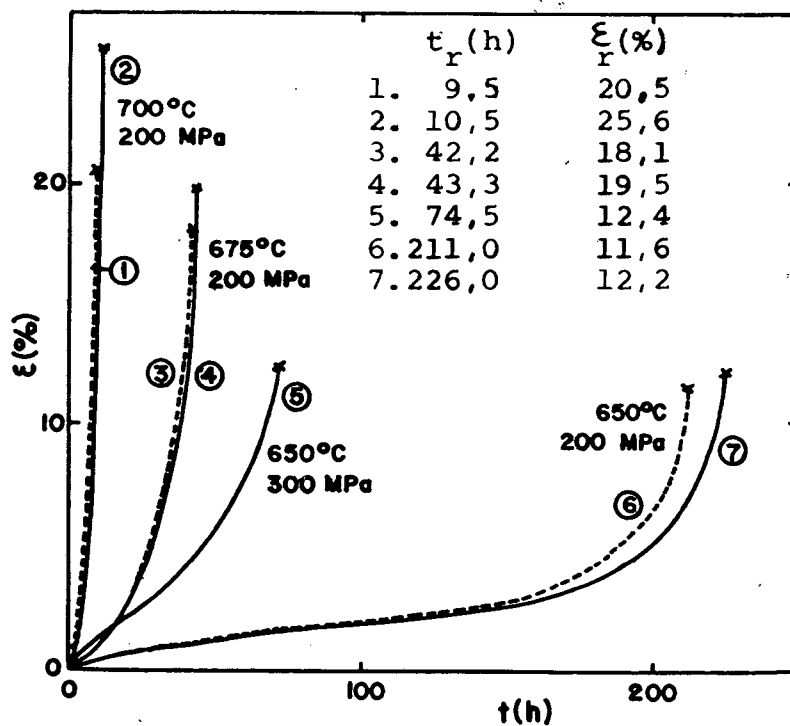


FIGURA 10.- Curvas de fluência de amostras não irradiadas (—) e irradiadas com neutrons rápidos (-----) até um fluxo integrado de $8,7 \cdot 10^{17}$ n/cm². (t_r =tempo de ruptura ϵ_r =deformação até a ruptura)

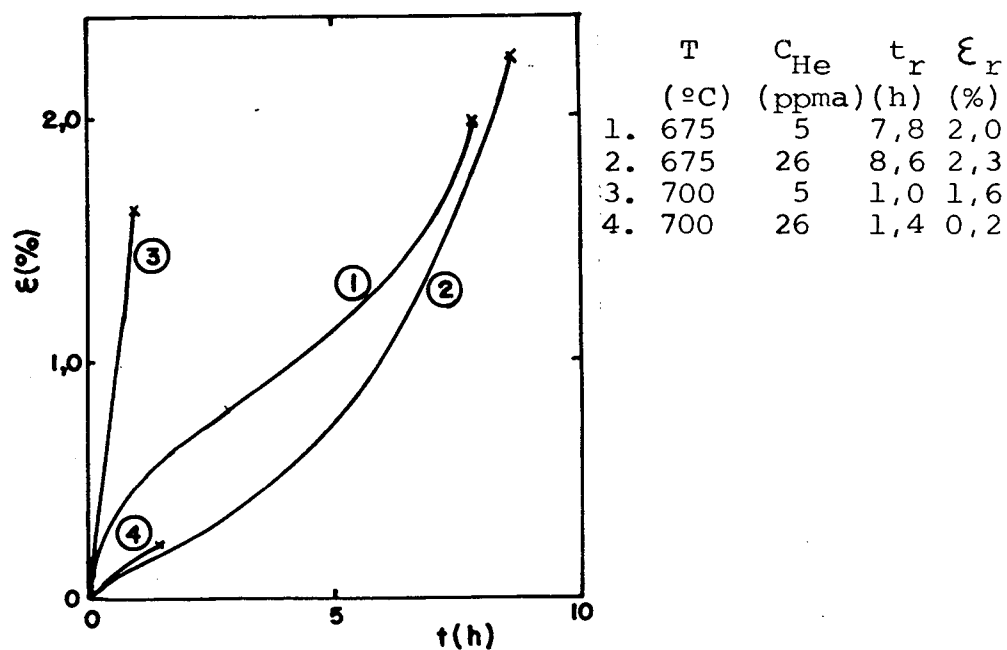


FIGURA 11.- Curvas de fluência de amostras implantadas com partículas alfa, testadas a 200 MPa, em diferentes temperaturas e concentrações de Hélio (C_{He}).