

MAGNETIC AFTER EFFECT IN IRON-NICKEL ALLOYS  
UNDER NEUTRON IRRADIATIONS

by

Iris Ferreira  
Shigueo Watanabe

ABSTRACT

Polycrystalline specimens of unirradiated and neutron irradiated Fe-Ni alloys have been studied in the temperature range RT - 500°C. The study was carried out in pure (50-50) as well as in Si, Al, Cr and Mo doped samples. Initial magnetic permeability was measured in unirradiated (virgin) and in neutron irradiated samples, during isochronal and linear thermal treatments.

The main results are:

1. A magnetic After Effect (MAE) is detected in the temperature range  $370^{\circ}\text{C} - T_c$ , where  $T_c$  is the Curie Temperature. In this range an activation energy of  $3.2 \pm 0.2$  eV was determined for the Cr doped Fe-Ni alloy (impurity content: 0.1%)
2. Measurements made in the irradiated samples, during a linear temperature treatment, show the existence of several MAE zones in the temperature range RT -  $T_c$ . The isochronal annealing experiments show that these MAE zones are accompanied by a decrease in the room temperature value of the magnetic permeability, for zones between RT and a certain temperature  $T_1$ . Above this range there is a steep increase in the room temperature permeability. Activation energies were determined for pure and Mo-doped (0.1%) samples for the first MAE zone ( $50^{\circ}\text{C} - 120^{\circ}$ ). The values obtained  $1.25 \pm 0.08$  eV and  $1.42 \pm 0.09$  eV, respectively.
3. The impurity - doped samples show a different behaviour relative to the pure ones: samples with low impurity content (0.1% and 0.5% of Si, Al or Mo) present an enhancement in the amplitude and also an overlapping of the diffusion stages. On the other hand, samples with higher impurity content (2 and 4% of Mo) show a decrease in these amplitudes.
4. The Curie Temperatures of unirradiated (virgin) samples and of irradiated ones are slightly different.
5. The Curie Temperature of the pure sample is higher than the Curie Temperatures of the doped samples.

The results presented above were explained following the Theory of directional order after Néel (25) and Taniguchi et al. (26) According to this theory the migration of defects causes an increase in the order which gives rise to the MAE zones. In our experiments these defects are the ones in thermal equilibrium in the specimen or the neutron induced ones.

The observed inversion behaviour in the magnetic permeability of the irradiated samples was interpreted in terms of destruction of the order.





# EFEITO MAGNETICO POSTERIOR (EMP)

## NA LIGA FE-NI (50-50)

I. Ferreira\* e S. Watanabe\*\*

### I. INTRODUÇÃO

Efeitos de ordem a longo alcance nas ligas FeNi(50-50) foram observados por Paulevé et al, (1) Néel et al (2) e Dautreppe et al (3) após tratamentos térmicos em presença de campos magnéticos sob irradiação com nêutrons. Efeitos de ordem direcional e mudanças no campo coercitivo por irradiação com nêutrons foram observados por Schindler et al. (4) Chambron et al (5), mais recentemente, através de medidas de energia de anisotropia magnetocristalina induzida, estudaram os defeitos pontuais criados por irradiação com elétrons e nêutrons. Efeitos de ordem direcional associados à temperatura foram observados por Chamberod (6) e Brusetti (7).

O presente trabalho estuda os efeitos da ordem direcional que pode ser induzida em ligas de Ferro e Níquel pela presença e migração de defeitos, na permeabilidade magnética inicial. Nossos resultados evidenciam a importância, pela sua sensibilidade, da utilização dessa técnica no estudo de defeitos pontuais em ligas ferromagnéticas.

### II. TECNICAS EXPERIMENTAIS

As amostras, na composição 50%Fe - 50%Ni, são obtidas por fusão sob hidrogênio de ferro e níquel previamente purificados por fusão por zonas. O lingote assim obtido é transformado por laminação numa chapa de .5mm de espessura na qual são estampadas as amostras na forma de anéis ( $\phi_e = 17.5$  mm e  $\phi_i = 11$  mm). Um tratamento térmico realizado a 860°C por 15 horas em hidrogênio purifica e recristaliza as amostras.

A técnica utilizada para se medir a permeabilidade magnética inicial é descrita em detalhes por Moser (8). A desimantação das amostras é obtida através da aplicação de um campo magnético alternado de até 30 Oe por alguns segundos, o qual é em seguida amortecido regularmente até .5mOe. O tempo total de desimantação utilizado foi de 28 segundos.

As irradiações foram feitas no reator tipo piscina do Instituto de Energia Atômica de São Paulo à temperatura de  $28 \pm 2$  °C com fluxo de nêutrons de  $1,8 \cdot 10^{12}$  n/cm<sup>2</sup>s (epitérmicos) e  $1,2 \cdot 10^{12}$  n/cm<sup>2</sup>s (rápidos).

Foram utilizados tratamentos térmicos isócronos (20min-10°C) e tratamentos térmicos lineares a taxa de 30°C/hora com desimantações cíclicas, segundo os métodos de medida de EMP (8).

### III. RESULTADOS EXPERIMENTAIS

A fig.1 apresenta os resultados obtidos através de tratamentos térmicos isócronos nas

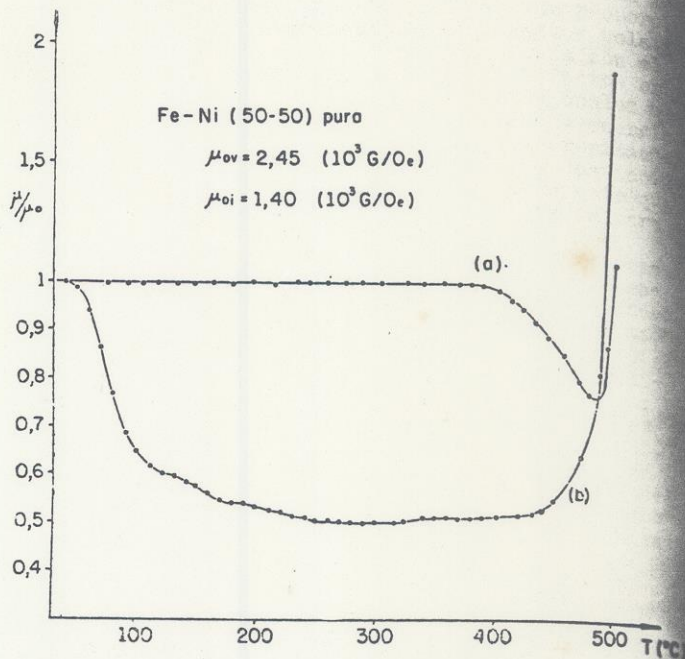


Fig.1 Curvas da permeabilidade magnética inicial, medida à temperatura ambiente, após tratamentos térmicos isócronos (10°C/20 min), em função da temperatura dos tratamentos: amostra virgem (a) e amostra irradiada (b).

amostras: virgem (curva a) e irradiada (curva b). A irradiação com nêutrons por cinco horas provoca um decréscimo em  $\mu$  de 43% do valor inicial à temperatura ambiente. Esses resultados podem ser divididos em três partes: estágio A ( $50^\circ\text{C} < T < 150^\circ\text{C}$ ), estágio B ( $150^\circ\text{C} < T < 300^\circ\text{C}$ ) e estágio C ( $T > 300^\circ\text{C}$ ). O estágio A que responde por uma diminuição relativa de permeabilidade de 25% é seguido de fenômenos não muito bem definidos até 300°C que provocam um decréscimo de 7% em  $\mu$ . Na região do estágio C, na amostra de controle, ocorre uma diminuição de permeabilidade enquanto que na amostra irradiada a permeabilidade apresenta uma tendência de retorno ao valor inicial.

Na fig. 2 são apresentados os resultados obtidos por tratamentos térmicos lineares na amostra de controle e na amostra irradiada. Observa-se, na amostra de controle, uma zona de EMP na região de temperatura compreendida entre 370°C e a temperatura de Curie ( $T_C$ ) - curva (a). A curva (b) evidencia, na amostra irradiada, o EMP desde a temperatura de 50°C até a temperatura  $T_C$ . Na região do estágio A observa-se uma zona muito bem definida, que é seguida de um EMP de amplitude praticamente



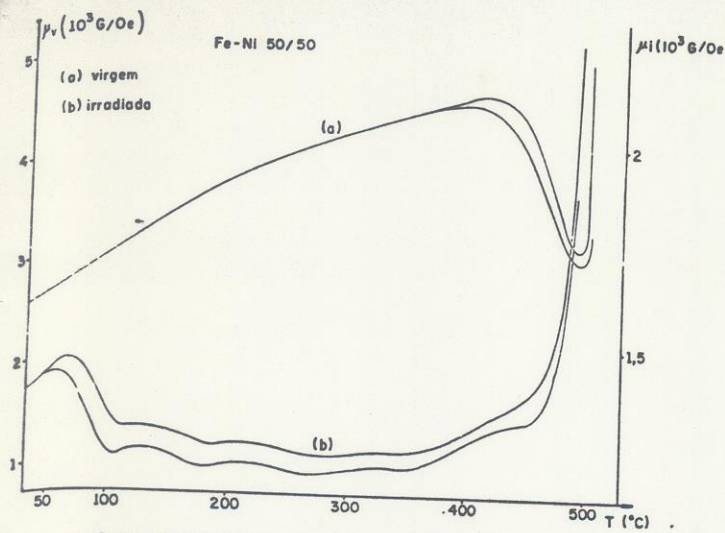


Fig. 2 Curvas de variação de permeabilidade magnética inicial para o tratamento térmico linear, com desmagnetizações cíclicas (veloc. de aquecimento = 30°C/hora), em função da temperatura: (a) amostra virgem e (b) amostra irradiada. Nos dois casos as zonas de EMP são apresentadas através das suas envoltórias.

constante com ligeiras oscilações. É possível entretanto se observar que tanto as derivadas  $\frac{d\mu}{dt}$  e  $\frac{d\mu}{dT}$  (211s) apresentam, na região do estágio B, máximos perceptíveis em torno de 150°C e em torno de 240°C indicando nesse estágio uma possível superposição de diversos processos.

Foram estudadas em detalhe as zonas de EMP mais importantes visando a determinação das energias de ativação desses estágios:

#### amostra virgem

Para o estudo da zona de EMP presente entre 370°C e  $T_C$  a amostra foi submetida a um tratamento prévio a 510°C por 30 min. seguido de têmpera. Na fig.3 são apresentadas as curvas de desacomodação da permeabilidade magnética inicial obtidas às temperaturas de 402°C, 445°C, 471°C e 490°C. Esses resultados foram analisados supondo uma distribuição logarítmica para constantes de tempo, entre dois valores  $\Theta_{min}$  e  $\Theta_{max}$  segundo método proposto por Brissoneau(9). Essa suposição corresponde a

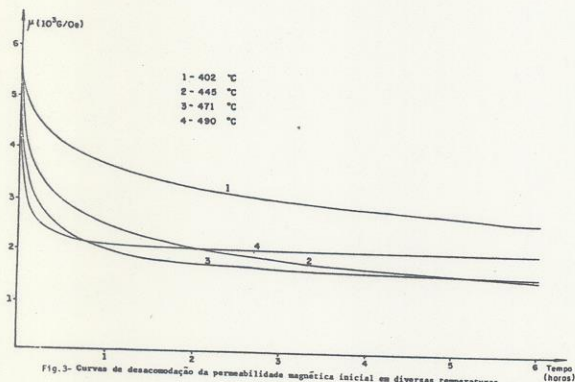


Fig.3- Curvas de desacomodação da permeabilidade magnética inicial em diversas temperaturas.

se ter as energias de ativação uniformemente distribuídas entre um valor mínimo  $E_{min}$  e um valor máximo  $E_{max}$ . A desacomodação fica então caracterizada por dois parâmetros: tempo de relaxação médio  $\bar{\Theta} = (\Theta_{min} \cdot \Theta_{max})^{1/2}$  e largura de espectro K,  $K = (\Theta_{max} / \Theta_{min})^{1/2}$ . Na figura 4 é feita a comparação entre as curvas experimentais e as curvas teóricas construídas segundo o modelo acima. Pode-se observar que para tempos experimentais tais que  $t/\bar{\Theta} > .50$  há

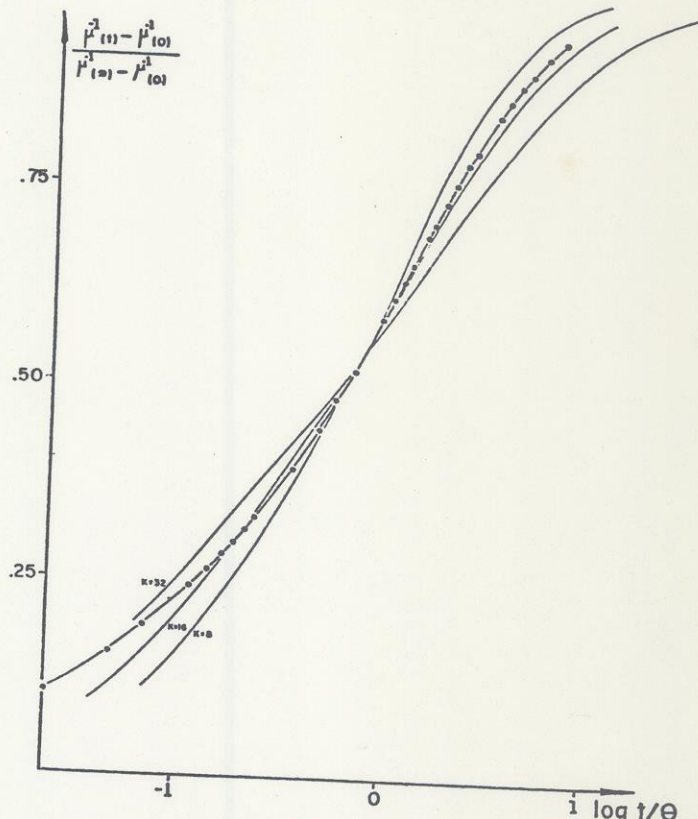


Fig.4 - Comparação entre as curvas isotérmicas de  $G(t) = \frac{1/\mu(t) - 1/\mu(0)}{1/\mu(\infty) - 1/\mu(0)}$  e a curva experimental de  $G(t)$  obtida a 471°C

uma concordância boa entre teoria e experiência com K=16. Na fig. 5 é apresentada a dependência de  $\log \bar{\Theta} \times 1/T$ . O comportamento linear nos permite determinar uma energia de ativação média  $\bar{E}_a = 3,2 \pm 0,2$  eV.

A dependência da amplitude de desacomodação  $\frac{\Delta \mu}{\mu_0}$  com a temperatura do tratamento térmico é mostrada na fig. 6. Note-se a amplitude decresce à medida que a temperatura do tratamento aumenta e se anula na temperatura de Curie. Comportamento similar foi observado por Ferguson(10) para a energia de anisotropia magnetocristalina induzida por tratamentos térmicos em presença de campos magnéticos.

#### amostra irradiada

Foram feitos recozimentos isotérmicos a varias



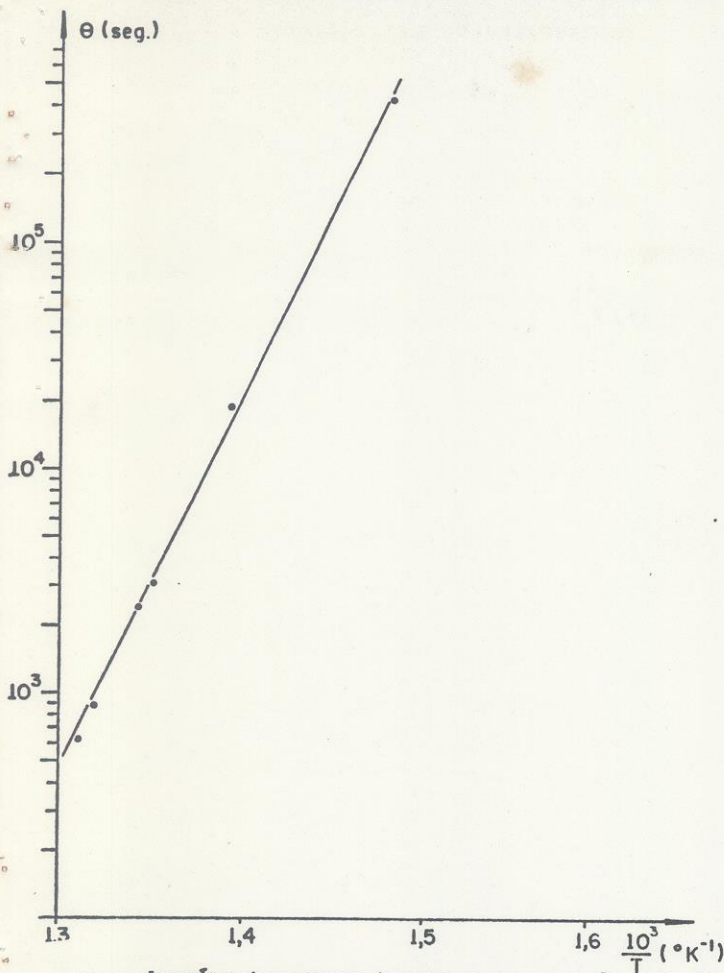


Fig. 5. Logaritmo da constante de tempo de desacomodação em função de  $1/T$ . A inclinação da reta dá a energia de ativação do

temperaturas em amostras irradiadas em idênticas condições e acompanhou-se a desacomodação da permeabilidade magnética inicial. As temperaturas de recozimento  $71.75^\circ\text{C}$ ,  $80^\circ\text{C}$ ,  $90^\circ\text{C}$  e  $95^\circ\text{C}$  foram escolhidas de forma a se ter precisão nos valores inicial e final da curva de desacomodação. Por análise similar à feita anteriormente para a amostra virgem obteve-se nesse caso para o estágio A um valor de  $1,15 \pm 0,06$  eV para a energia de ativação e  $K=16$ .

O número médio de saltos do defeito nesse estágio pode ser determinado através da relação:

$\bar{n} = z \bar{\nu} \bar{\theta}$ , onde  $z$  é o número de coordenação,  $\bar{\nu}$  é a frequência de salto do defeito numa particular direção e  $\bar{\theta}$  é o tempo de decaimento da curva de aniquilação do defeito.

As curvas de desacomodação obtidas são compatíveis com uma cinética de 1<sup>o</sup> ordem com energias distribuídas segundo um determinado espectro. Pode-se então escrever para o número médio de saltos  $\bar{n} = z \nu_0 \bar{\theta}$ . Os valores de  $\nu_0$  da liga não são muito bem conhecidos e os autores toman as vezes  $\nu_0 = 10^{13} \text{ s}^{-1}$  e às vezes  $10^{12} \text{ s}^{-1}$ . Se se supuzer que os saltos do defeito sejam igualmente prováveis em tôdas as direções e se se utilizar para  $\nu_0$  o valor  $2 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1}$  en-

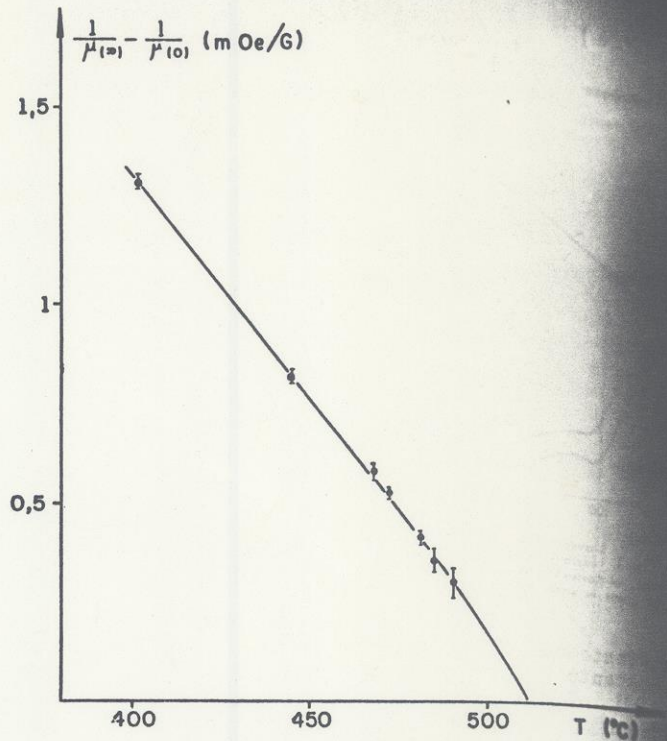


Fig. 6 Comportamento da amplitude de EMP em função da temperatura do tratamento térmico.

contrado no níquel puro (10), obtém-se um número médio de saltos da ordem de 240. A escolha de um outro valor para  $\nu_0$  diminuiria ainda mais o número médio de saltos.

#### IV. DISCUSSÃO

De acordo com Néel (11), numa liga binária AB, ferromagnética, o Efeito Magnético Posterior pode estar associado a dois mecanismos fundamentalmente:

- reorientação de um defeito anisotrópico
- reorientação de pares atômicos da liga

A zona de EMP observada na amostra não irradiada é bem compatível com o modelo de reorientação de pares atômicos da liga (orden direcional). Na região de temperatura compreendida entre  $370^\circ\text{C}$  e a temperatura  $T_c$  a amostra memoriza em cada ciclo de medida os efeitos do ciclo precedente sendo impossível uma desmantação completa da amostra por meios magnéticos. Essa memória somente é eliminada após recozimentos acima da temperatura  $T_c$ . Este fato explica a utilização do recozimento a  $510^\circ\text{C}$  por 30 min, antes de cada curva de desacomodação.

De acordo com a teoria (11), (12) a dependência da energia de anisotropia magneto-cristalina induzida e da amplitude de desacomodação com a temperatura do tratamento térmico deve ser do tipo  $\frac{T - T_c}{T}$ , onde  $T$  é a temperatura do tratamento. A observação da fig. 6 mostra que o comportamento obtido é consistente com o modelo de Néel e Tanigushi; a dependência



em  $1/T$  prevista teoricamente é difícil de ser verificada já que o intervalo de temperatura utilizado é muito pequeno para tanto. Nota-se porém o decréscimo com  $T$  e a anulação na temperatura de Curie.

O valor da energia de ativação para essa zona, encontrado como sendo igual a  $3,2 \pm 0,2$  eV é da mesma ordem de grandeza dos valores  $3,0$  eV obtido por Ferguson<sup>(10)</sup> e  $2,7$  eV obtido por Gerstner et al<sup>(13)</sup>. É interessante se comparar a energia de ativação medida com os valores obtidos para a difusão do Fe e do Ni na liga FeNi. Neimann e Shiniáiev<sup>(14)</sup> encontraram o valor  $2,6$  eV para o Fe, e Shiniáiev<sup>(15)</sup> obteve  $3,1$  eV para a autodifusão do Níquel. Em vista dessa concordância entre os valores de energia de ativação é bem possível que a zona de EMP observada corresponda à auto difusão na liga.

Para a amostra irradiada os resultados obtidos evidenciaram que na liga FeNi (50-50), submetida à irradiação com nêutrons à temperatura ambiente, a aniquilação dos defeitos introduzidos se faz em três estágios: estágio A cujo máximo se situa em torno de  $85^{\circ}\text{C}$  seguido do estágio B e acima de  $300^{\circ}\text{C}$  o estágio C ocorrendo neste último uma tendência de retorno aos valores iniciais.

Chambron et al<sup>(5)</sup> irradiando esta liga à temperatura do  $\text{N}_2$  líquido com nêutrons e elétrons mostraram que para pequenas exposições a aniquilação se faz em dois estágios bem separados: um abaixo de  $0^{\circ}\text{C}$  e outro em torno de  $90^{\circ}\text{C}$ . Chamberod<sup>(6)</sup> através de experiências de têmpera com velocidades de resfriamento diversas associou o estágio A à migração de vacâncias livres e o estágio B à desagregação de aglomerados. O valor encontrado para a energia de ativação do estágio A, nesse trabalho, concorda com os valores obtidos por Chamberod<sup>(6)</sup> e Brusetti<sup>(7)</sup>. Se admitirmos que o estágio A é devido à migração da vacância livre, o número médio de saltos que essas vacâncias efetuam antes de desaparecer é muito pequeno para uma aniquilação sobre as deslocções. Embora a liga seja fabricada a partir de metais purificados por fusão por zonas, uma quantidade apreciável de impurezas está presente nela que eventualmente podem capturar uma vacância. Além disso uma concentração apreciável de aglomerados está sempre presente num material submetido a uma irradiação no caroço do reator e estes podem funcionar como poços para uma vacância. Se o estágio A é devido a migração da vacância é bem possível que o estágio B corresponda à dissociação de complexos o que em parte explicaria a complexidade observada: zonas de efeito magnético posterior de ampli-

tude praticamente constante com ligeiras oscilações.

Na região do estágio C há uma tendência geral de retorno aos valores iniciais. É interessante observar que o retorno ocorre na mesma região de temperatura em que a transição ordem-desordem ocorre nessa liga. temperatura crítica de transição ordem-desordem determinada por Marchand<sup>(16)</sup> para a liga FeNi (50-50) é de  $320^{\circ}\text{C}$ . É bem possível que a tendência de retorno ao valor inicial esteja associada à destruição da ordem.

#### REFERENCIAS BIBLIOGRAFICAS

1. J. Pauleve, F. Dautreppe, J. Laugier and L. Neel, J. Phys. Rad., vol 28, 841, 1962 ✓
2. L. Neel, J. Pauleve, R. Pauthenet, J. Laugier and D. Dautreppe, J. Appl Phys., vol 35, 873, (1964) ✓
3. D. Dautreppe, J. Laugier, J. Pauleve and L. Neel - Proc. 1962. Symp. on Radiation Damage in Solids - Venice-p 7, 11 ✓
4. A.I. Schindler, R.H. Kernohan and J. Weertman, J. App. Phys. vol 35, 9 2640, (1964) ✓
5. W. Chambron, A. Chamberod e J. Pauleve, C.R. Acad. Sci. Paris, 262, 1417 (1966) ✓
6. A. Chamberod - Tese, Grenoble, França (1968)
7. R. Brusetti - Tese, Grenoble, França. (1970)
8. P. Moser - Tese, Grenoble, França, (1965)
9. P. Brissoneau, C.R. Acad. Sci. Paris, 244, 1174, (1957) ✓
10. E.T. Ferguson, C.R. Acad. Sci. Paris, 244, 2363, (1957) ✓
11. L. Neel, J. Phys. Rad., 15, 225, (1954); J. App. Phys., 30S, 3, (1959) ✓
12. S. Tanigushi, Sci. Rep. Res. Inst. Tohoku Univ., A7, 269, (1955); A8, 183 (1956) ✓
13. D. Gerstner and E. Kneller, J. App. Phys. 32, 3645, (1961) ✓
14. M. Neiman and I. Shiniáiev, Dokl. Akad. Nauk. SSSR, 102, 969, (1955) ✓
15. I. Shiniáiev, C.R. Acad. Sci. URSS, 4, 182, (1969) ✓