

# COMPORTAMENTO DA RESTAURAÇÃO TÉRMICA DOS AGLOMERADOS DE INTERSTICIAIS NO INTERVALO DE 5 A 650K, EM OURO IRRADIADO A 5K COM ELÉTRONS DE 3 MeV.

Eddy Segura Pino

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN-CNEN/SP  
Travessa “R” 400 – Cidade Universitária  
05508 – 900, São Paulo, SP, Brasil  
E-mail: espino@net.ipen.br

## RESUMO

Monocristais de ouro foram irradiados a 5K com elétrons de 3 MeV. Os defeitos induzidos pela radiação formam aglomerados de intersticiais ou intersticiais fixos a impurezas do cristal. Esta distribuição de defeitos, corresponde ao final do estágio I da restauração térmica de outros metais da mesma estrutura cristalina. Neste trabalho a restauração térmica entre 5 e 650K foi avaliado por meio da difração de raios-X difusos e as variações do parâmetro de rede ( $\Delta a$ ) e da resistividade elétrica ( $\Delta \rho$ ). Entre 5 a 200K, ( $\Delta a$ ) e ( $\Delta \rho$ ) recuperam-se de forma suave e contínua, após observa-se uma recuperação acentuada que é denominada de estágio III. A intensidade de difração difusa aumenta até 200K, como consequência do crescimento dos aglomerados de intersticiais; entre 200 a 400K a intensidade da difração decresce devido a diminuição do tamanho dos aglomerados de intersticiais como consequência da ação das vacâncias, que nesta faixa de temperatura tem grande mobilidade e que inclusive permite a formação de aglomerados de vacâncias. A restauração total dos defeitos foi observada a 650K.

## INTRODUÇÃO

Em ouro, os defeitos induzidos pela radiação com elétrons de 3 MeV e a 5K apresenta uma distribuição caracterizada pela presença de aglomerados de intersticiais e de intersticiais fixos a impurezas do cristal. Esta distribuição corresponde ao final do estágio I da restauração térmica de outros metais da mesma estrutura cristalina como Al e Cu. A ausência do estágio I no ouro, o caracteriza como de comportamento anômalo na sua restauração térmica que ainda após múltiplas pesquisas experimentais e novos modelos teóricos não está satisfatoriamente esclarecido [1][2].

Neste trabalho, a restauração térmica dos defeitos induzidos a 5K, são avaliados no intervalo de 5 a 650K por meio das variações da resistividade elétrica, do parâmetro de rede cristalina e das intensidades da difração de raios-X difusos. As determinações foram realizadas a diferentes temperaturas com um programa de aquecimento isocrônico com pulsos de 20 minutos e todas as medidas foram realizadas a 5K.

A seguir é apresentado um resumo das principais relações matemáticas da teoria da difração de raios -X difusos, a variação do parâmetro da rede cristalina decorrentes das deformações que os defeitos, induzidos pela radiação, produzem na rede cristalina.

## PARTE TEÓRICA

Considerando uma distribuição estatística de defeitos e uma superposição linear das deformações ao redor de um defeito, a intensidade da difração de raios-X difusos, perto da difração de Bragg, denominada Intensidade de Huang, é dada pela relação:

$$I_H = c \cdot f \cdot \frac{h^2}{q^2} \cdot (\Delta V/\Omega)_i^2 \cdot \Phi(h, q, \text{simetria}) \quad (1)$$

Onde:  $c$ , concentração de defeitos,  $f$ , fator de forma;  $\underline{h}$ , vetor recíproco da rede cristalina;  $q$ , distancia mais próxima do vetor  $h$  a  $k$ , vetor de difração, de modo que:  $q = k-h$ ;  $\Delta V$ , volume de relaxação do defeito e  $\Omega$  o volume atômico.  $\Phi$ , é uma função que depende de  $q$  e  $h$  e da simetria dos defeitos. A variação do parâmetro da rede cristalina,  $\Delta a/a$  é dada pela relação:

$$3\Delta a/a = c \cdot [(\Delta V/\Omega)_i - (\Delta V/\Omega)_v] \quad (2)$$

Como a deformação da rede cristalina produzida por um intersticial é muito maior que a produzida por uma vacância, considera-se que:

$$3\Delta a/a = c \cdot (\Delta V/\Omega)_i \quad (2a)$$

Para aglomerados com N defeitos, e considerando uma superposição linear, a intensidade de Huang será:

$$I_H^N = (c/N) N^2 \cdot I_H = c \cdot N \cdot I_H \quad (3)$$

## PARTE EXPERIMENTAL

As amostras para as medições da difração de raios-X e do parâmetro da rede cristalina, foram monocristais de ouro e para as determinações da resistividade elétrica foram policristais do mesmo material. As irradiações de estas amostras foram realizadas simultaneamente a fim de que recebam doses idênticas. O dispositivo utilizado para as irradiações a 5K com elétrons de 3MeV, são mostrados com detalhes em[3].

A qualidade das amostras, doses de irradiação e os resultados obtidos das medições a 5 e 200K são mostrados na tabela 1. Os parâmetros de rede foram determinados em amostras orientadas na direção [100] e com difração assimétrica nos planos (333).

### RESTAURAÇÃO TÉRMICA DA RESISTIVIDADE ELÉTRICA E DO PARÂMETRO DE REDE CRISTALINA

A Fig.1 mostra a restauração térmica da resistividade elétrica das amostras B e C que são representativas das outras amostras. Observa-se que a resistividade elétrica se recupera de forma contínua até 200K e após segue uma recuperação rápida até 400K, que corresponde ao estágio III.

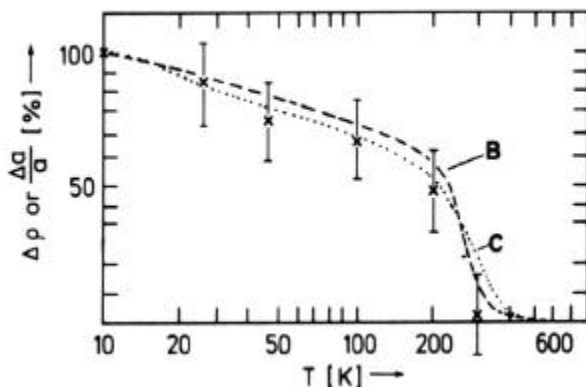


Fig.1 Restauração térmica da resistividade elétrica das amostras B, C e do parâmetro de rede da amostra A: x

As variações do parâmetro de rede da amostra A, também é mostrado na Fig.1. O comportamento da restauração das outras amostras é similar dentro da margem dos erros experimentais.

### VARIAÇÃO DA INTENSIDADE DA DIFRAÇÃO DIFUSA NA RESTAURAÇÃO TÉRMICA.

Na Fig.2 são apresentados os resultados obtidos do das variações das intensidades de difração difusa durante a restauração térmica das amostras A,B, e C; como referência é mostrado também a restauração da resistividade elétrica da amostra B.

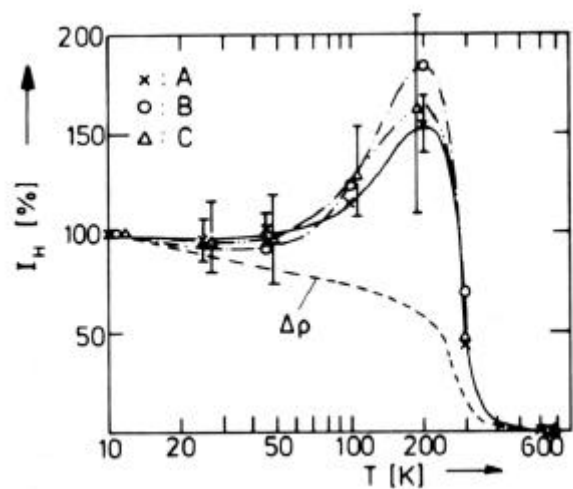


Fig.2 Variação da intensidade da difração de raios-X difusos durante a restauração térmica.

As intensidades da reflexão difusa mostra pouca variação até aproximadamente 100K, logo segue um aumento marcante até 200K para depois inicia uma redução drástica das intensidades até extinguir-se a 650K. A 400K a resistividade elétrica restaura-se completamente, mais as intensidades a esta temperatura ainda estão presente. Este fato é devido a grande sensibilidade que a difração difusa tem em detectar pequenos aglomerados em contraposição ao fluxo elétrico que não é influenciado pela presença destes pequenos aglomerados.

Na tabela 1, são mostrados os resultados obtidos a 5 e 200K, na qual são dados os valores médios de intersticiais por aglomerado,  $\langle N \rangle$ ; a concentração de defeitos,  $C_i$ ; e a concentração de aglomerados, C. Os valores de  $\langle N \rangle$  e C foram calculados utilizando as intensidades de Huang e as variações do parâmetro de rede, considerando para um intersticial  $(\Delta V/\Omega)_i = 1$ . Os  $C_i$  foram determinados por meio da resistividade elétrica. Observa-se que nas amostras de alta pureza  $\langle N \rangle$  a 200K é aproximadamente 3 vezes maior que a 5K e que C é 4 a 5 vezes menor.

Tabela 1.- Dados sobre amostras, irradiação e resultados a 5 e 200K.

Amostra	Pureza (RRR)	IRRADIAÇÕES			RESULTADOS					
		Doses $\Phi.t.10^{-18}$ [e <sup>-</sup> /cm <sup>2</sup> ]	$\Delta\rho$ [n $\Omega$ -cm]	$\Delta a/a$ 10 <sup>5</sup>	5K			200K		
					<N>	C [ppm]	C <sub>i</sub> [ppm]	<N>	C [ppm]	C <sub>i</sub> [ppm]
A	1500	8,0	102,0	8±1	30	11	300	72	2,5	180
B	1500	4,5	53,0	4	7	21	150	23	4,0	93
C	2000	2,0	24,5	2	5	17	80	15	3,0	44
E <sup>+</sup>	80	5,5	61,0	8	3	120	300	12	13,0	156
F <sup>+</sup>	400 ppmCu	1,8	42,0	4	1	150	150	--	---	--

A influência das impurezas na restauração térmica dos defeitos, foram avaliadas nas amostras E<sup>+</sup> e F<sup>+</sup> que são apresentados na Figura 3.

A amostra E<sup>+</sup> apresenta, entre 10 e 50K, um comportamento similar as amostras puras.

Acima de 50K até 200K as intensidades de Huang aumenta muito mais que nas amostras puras e a partir desta temperatura, seu comportamento é novamente similar as amostras puras. O aumento entre 50 e 100K nestas amostras que a 5K tinham aglomerados de 2 a 3 intersticiais, e interpretado por a liberação de defeitos das impurezas neste intervalo de temperatura. Nas amostras F<sup>+</sup>, com alta concentração de impurezas, as intensidades I<sub>H</sub> diminuem até 50K, e a partir desta temperatura observa-se um aumento moderado até aproximadamente 100K para logo decrescer em forma continua. Este comportamento é consequência da forte influência que exercem as impurezas no processo de fixação e liberação dos defeitos produzindo um efeito supressivo ao crescimento dos aglomerados.

### RESULTADOS E CONCLUSÕES

A redução da resistividade elétrica até 50K no processo de restauração térmica, indica uma diminuição da concentração de defeitos produzida pela recombinação de intersticiais e vacâncias, por outro lado, as intensidade de Huang mostram poucas variações neste intervalo de temperatura. Este comportamento deve-se ao fato de que as intensidade de Huang são mais intensas quando são produzidas por aglomerados maiores, mascarando assim as intensidades produzidas por os intersticiais simples fixados em impurezas. Nas amostras F<sup>+</sup>, fortemente dopadas com átomos de Cu, a recombinação dos intersticiais com

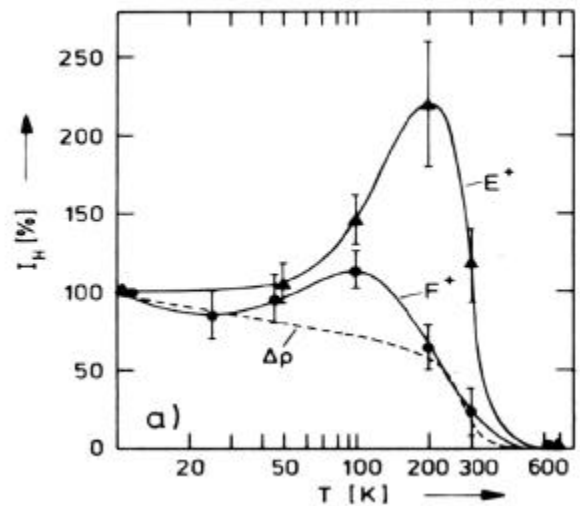


Fig.3 Comportamento da restauração Térmica da reflexão de Huang em amostras com impurezas e dopadas.

vacâncias podem ser observadas nestas amostras porque as intensidade dos intersticiais simples fixados nas impurezas, não são mascarados pelas intensidade maiores provenientes dos aglomerados maiores. O aumento das intensidade de Huang até 200K, final do estagio II, indica claramente o crescimento dos aglomerados. Nas amostras de alta pureza este aumento foi 3 a 4 vezes maior que os valores obtidos a 5K. Ainda que após irradiação a 5K, a concentração de aglomerados, C, está relacionado as impurezas das amostras puras. No processo de restauração térmica, o crescimento dos aglomerados, com a consequente redução da concentração deles, a 2 ou 4 ppm, o que representa a perda de efectividade de fixação que exercem as impurezas nos

intersticiais ou dito de outro modo, a ação recíproca entre aglomerados é maior que a força que fixa os intersticiais as impurezas. Nas amostras com alto teor de impurezas, o crescimento dos aglomerados depende do tipo e concentração dos centros de fixação dos intersticiais. Nas amostras  $E^+$  observa-se um crescimento pronunciado do tamanho dos aglomerados, quando comparado com as amostras puras. Nas amostras fortemente dopadas com Cu, apresenta-se uma supressão expressiva no crescimento dos aglomerados, Fig.3.

A redução marcante da intensidade de Huang no intervalo de 200 a 400K, estágio III, é devido a deslocamento de vacâncias até os aglomerados recombinação-se com os intersticiais e desse modo reduzindo o tamanho destes aglomerados. No final deste intervalo de temperatura, também foi determinado a formação de aglomerados de vacâncias que confirma a movimentação das vacâncias dentro da complexidade das reações dos defeitos neste estágio da restauração térmica. Este comportamento está de acordo com o modelo de restauração térmica de 1 - Intersticial, em contraposição ao modelo de 2 - Intersticiais, o qual considera que, neste intervalo de temperatura, são os intersticiais os que se deslocam [4]. Por outro lado, observa-se que a total restauração dos aglomerados ocorre somente a 650K. Esta etapa final de restauração está em concordância com o fato experimental de que os aglomerados de vacâncias se dissociam entre 500 a 600K e, conseqüentemente, são estas vacâncias que recombinação-se com os intersticiais dos pequenos aglomerados remanescentes produzem sua total restauração.

## REFERÊNCIAS

[1] Koehler, J. **“Present Knowledge of Point Defects in Pure Metals”**. J Nucl. Mat. 169 (1988) pp. 3-4.

[2] Seeger, A., **“A Novel Theory of Radiation Damage at High Doses”**. Rad. Eff. And Defects in Solids, Vol. 111 & 112 ( 1- 2 ) 1989, pp.355-368.

[3] Segura, E., **“Untersuchung von Frenkeldefekten in Tieftemperatur bestrahlten Gold mit Hilfe der diffusen Roentgenstreuung”**. Tese de Doutorado, T. H. Aachen, Alemanha, 1978, Berichte der KFA-Juelich, Nr. 1518, Juni 1978.

[4] Schilling, W.; Ehrhart, P.; Sonnenberg, K. **“Interpretation of Defects Reactions in Irradiated Metals by the One Interstitial Model”**. Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals (US-

ERDA- cont. 751006) M. T. Robinson and F.W. Young, Jr. (eds) 1975, Vol. 1 p. 470.