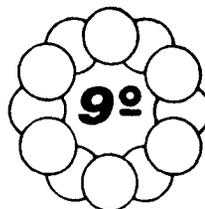




COMPORTAMENTO DOS INTERSTICIAIS E SEUS AGLOMERADOS EM OURO IRRADIADO COM ELÉTRONS, UTILIZANDO DIFRAÇÃO DE RAIOS-X DIFUSOS.



cbecimat



Eddy Segura Pino
Comissão Nacional de Energia Nuclear - SP
Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares

SUMÁRIO

O comportamento dos defeitos induzidos em ouro pela irradiação com elétrons foi analisado utilizando-se difração de raios-X difusos. Monocristais de ouro foram irradiados a uma temperatura de 5K com elétrons de 3MeV. Em amostras irradiadas com pequenas doses e a 5K, não foi observada a presença de intersticiais simples, mas apenas pequenos aglomerados. Em amostras dopadas com 400ppm de cobre, foi determinada a supressão da formação de aglomerados e a presença de intersticiais simples associados a átomos de cobre.

INTRODUÇÃO

Pesquisas realizadas com difração de raios-X difusos determinaram a estrutura dos intersticiais e a formação de aglomerados ao final do estágio I da recuperação térmica em Al e Cu [1], irradiados com elétrons em baixas temperaturas.

Ao contrário de outros metais de estrutura cristalina do tipo cúbico de face centrada, as características do estágio I não foram observadas em ouro. Este estágio se caracteriza pela migração, termicamente ativada, dos intersticiais.

No presente trabalho são apresentados os resultados obtidos utilizando difração de raios-X difusos em ouro e com isto mostrar que os intersticiais migram e formam aglomerados durante a irradiação com elétrons a 5K.

DIFRAÇÃO DE RAIOS-X DIFUSOS SOBRE DEFECTOS PUNTIFORMES

Considerando uma distribuição estatística com baixa concentração de defeitos e uma superposição linear das deformações do campo elástico ao redor de um defeito, a intensidade da difração difusa é proporcional a concentração dos defeitos, c , e ao quadrado de uma amplitude que é dada pela transformada de Fourier do campo de deformação ao redor do defeito [2]. Fazendo uso da teoria da elasticidade, esta intensidade, denominada intensidade de Huang, I_H , é dada da pela relação:

$$I_H = c f^2 \frac{h^2}{q^2} \left[\gamma^{(1)} \eta^{(1)} + \gamma^{(2)} \eta^{(2)} + \gamma^{(3)} \eta^{(3)} \right] \frac{1}{R^2} \quad (1)$$

onde $\gamma^{(i)}$ são fatores que dependem das constantes elásticas do cristal, c_i , e das direções de \vec{q} e \vec{h} , onde \vec{h} é o vetor recíproco do cristal e \vec{q} é a distância mais próxima entre o vetor de difração \vec{k} e o vetor \vec{h} ($\vec{q} = \vec{k} - \vec{h}$). f e Ω são o fator e volume atômico respectivamente.

Na equação (1), $\eta^{(i)}$, são expressões quadráticas das componentes do tensor P_{ij} que descreve o campo de deformação ao redor P_{ij} do defeito:

$$\eta^{(1)} = \frac{1}{3} (\text{dig } P)^2; \eta^{(2)} = \frac{1}{6} \sum_{i>j} (P_{ii} - P_{jj})^2; \eta^{(3)} = \frac{2}{3} \sum_{i>j} P_{ij}^2 \quad (2)$$

onde (dig P) é a soma dos elementos da diagonal da matriz P_{ij} .

Com uma escolha adequada de \vec{q} e \vec{h} pode-se determinar os parâmetros $\eta^{(i)}$ separadamente: assim, das medições em reflexão (h00) e direção [100] obtêm-se $\eta^{(1)}$, na direção [011] obtêm-se $\eta^{(3)}$ e numa reflexão (hh0) e direção [110] obtêm-se $\eta^{(2)}$.

A variação do parâmetro de rede, a , é dada da pela relação:

$$3 \frac{\Delta a}{a} = \frac{c \sqrt{3 \eta^{(1)}}}{\Omega (c_{11} + 2c_{12})} \quad (3)$$

Portanto, os valores de c , (dig P) e $\frac{\Delta V}{\Omega}$ (onde ΔV é a variação do volume), podem ser determinados de uma combinação de medidas de I_H e $\Delta a/a$.

Os pequenos aglomerados podem ser considerados como defeitos puntiformes mais fortes numa difração, de modo que supondo uma superposição linear de defeitos na formação do aglomerado, tem-se:

$$I_H^{\text{aglom}} = \frac{c}{N} \cdot N^2 I_H = c N I_H \quad (4)$$

onde N é o número de defeitos simples por aglomerado. Neste caso I_H^{aglom} aumenta proporcionalmente a N .

Para aglomerados maiores, a relação (1) se aplica com algumas restrições, de modo que para valores de $q \gg 1/R_0$ onde R_0 tem a magnitude do raio do aglomerado, a intensidade da difração difusa é dada pela aproximação de Stokes-Wilson [2].

$$I_{Sw} = c f^2 \frac{h^2}{4 \Omega} |\text{dig } P|_{\phi_{Sw}} \left(\frac{\vec{q} \cdot \vec{h}}{qh} \right) \quad (5)$$

onde ϕ_{Sw} representa uma função de ângulo.

Resultados após irradiação a 5k

Na tabela 1., estão resumidas as características das amostras, doses de irradiação e os resultados obtidos a 5K. As doses de irradiação são dadas pela corrente integrada de elétrons e pela variação da resistividade elétrica. Estas doses, nas amostras puras, são proporcionais a $\Delta a/a$. Os valores grandes de

Tabela 1. Resultados dos defeitos após irradiação a 5 K

Amostra	Pureza (RRR)	IRRADIAÇÕES			RESULTADOS 5K.		
		$\phi \cdot t \cdot 10^{-18}$ [e ⁻ /cm ²]	$\Delta \rho$ [nΩcm]	$\frac{\Delta \rho}{\rho}$ $\times 10^6$	C [ppm]	$\frac{\Delta V}{V}$ %	Ci [ppm]
A	1500	8	102	8±1	11	30	300
B	1500	4,5	53	4	21	7	150
C	2000	2	24,5	2	17	5	80
F ⁺	400ppmCu	1,8	42	4	150	1,1	150

$\Delta V/\Omega$ confirma a presença de aglomerados, dado que os intersticiais simples tem um valor de $\Delta V/\Omega$ entre 1 e 2 [1].

Na figura 1 são mostrados exemplos dos resultados da intensidade I_H em função de q medidos em monocristais de ouro de 80μm de espessura, irradiados com elétrons de 3MeV a 5K [3].

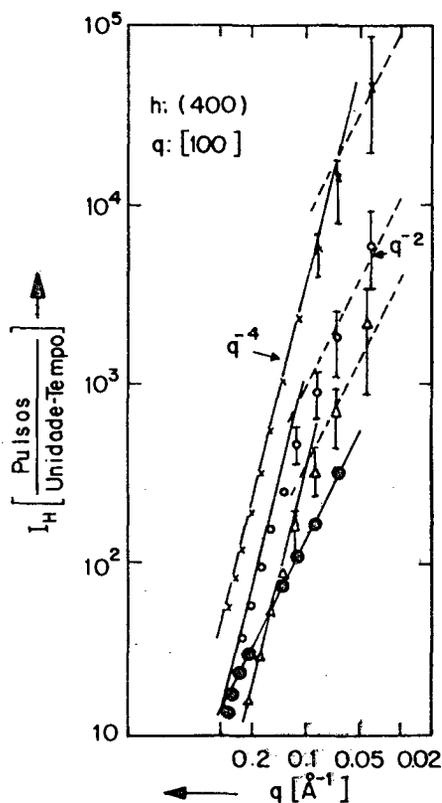


Fig. 1. Intensidade de Difração em espaço recíproco.

Amostras A: x; B: o; C: Δ; F⁺ ●

As amostras de alta pureza mostram um comportamento semelhante: para grandes valores de q a intensidade é proporcional a q^{-4} para pequenos valores de q , proporcional a q^{-2} .

Estes resultados estão em concordância com a difração difusa de aglomerados de defeitos puntiformes [1]. Considerando a variação da resistividade elétrica, $\Delta \rho$, como medida da

concentração de defeitos a intensidade I_H na região q^{-2} mostra uma relação não linear. Isto evidencia novamente a existência de aglomerados nas amostras puras. Na fig. 1, a amostra do pado com Cu mostra uma intensidade, I_H , muito menor e uma dependência q^{-2} em toda a sua extensão, evidenciando a presença de intersticiais simples fixados nos átomos de cobre.

CONCLUSÕES

Durante a irradiação com elétrons de 3MeV a 5K, se observa, em amostras de ouro, a presença de aglomerados e um processo de fixação de intersticiais simples nos átomos de cobre. Esta situação corresponde ao final do estágio I observado em outros metais de estrutura cúbica de face centrada onde se produz o crescimento de aglomerados e um processo de recombinação dos pares de Frenkel.

O deslocamento dos intersticiais a grandes distâncias e a fixação dos intersticiais nas impurezas de cobre observada a 5K, poderia ser esclarecido como consequência de colisões em cadeia substituídas (Replacement Collision Chains) ou como um processo aleatório de difusão de intersticiais. Por outro lado, ainda após muitos anos de pesquisa básica sobre defeitos puntiformes induzidos pela irradiação em metais não ficou esclarecido totalmente o comportamento anômalo da recuperação térmica do ouro [4].

REFERENCIAS

- [1] Ehrhart, P., Haubold, H.G. and Schilling, W. "Investigations of Point Defects and their Agglomeration in Irradiated Metals by Diffuse X-ray Scattering". *Adv. Sol. Stat. Phys.* XIV, 87 (1974)
- [2] Dederichs, P.H., "The theory of diffuse X-ray Scattering and its Application to the Study of Point Defects and their Clusters". *J. Phys. F. Metal Phys.* 3, 471 (1973)
- [3] Segura, E., and Ehrhart, P., "Interstitials and their Agglomerates in Electron Irradiated Gold Investigated by Diffuse X-ray Scattering". *Rad. Eff.* 43. 233 (1979).
- [4] Koehler, J., "Present Knowledge of Point Defects in Pure Metal". *J. Nucl. Mat.* 169 (1988) 3-4.

SUMMARY

Single crystals of gold have been irradiated at a temperature of 5K with 3 MeV electrons. The behaviour of the induced defects were investigated by measurements of the Huang diffuse scattering of X-ray. In pure Gold no single interstitials were observed but only small

interstitials clusters. In samples doped with about 400 ppm Cu, cluster formation was suppressed and single interstitials trapped at copper atoms were observed. With these results it can be explained, in part, the so far not well understood irradiation and annealing behaviour of Gold.