

**COMPORTAMENTO DA RESTAURAÇÃO TÉRMICA EM
MONOCRISTAIS DE OURO IRRADIADOS A 5 K COM FEIXE DE
ELÉTRONS DE 3 MeV.**

EDDY SEGURA PINO
Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares
IPEN-CNEN/SP.
Cx. Postal: 11049, CEP. 05422-970, São Paulo, SP, Brasil.

RESUMO

Ao contrário de outros metais de estrutura cúbica de face centrada, o Ouro mostra um comportamento anômalo durante a irradiação em baixas temperaturas e na sua restauração térmica. Esta anomalia é a ausência do Estágio I. Neste trabalho, é analisado o comportamento anômalo do Au através de medidas de resistividade elétrica residual, de variações do parâmetro da rede cristalina e de espalhamento de raios-X difuso em monocristais e policristais de alta pureza e em amostras dopadas com 400 ppm de Cu, irradiadas com elétrons de 3 MeV, a uma temperatura de 5 K.

INTRODUÇÃO

Sabe-se que o fenômeno de interação dos elétrons de alta energia com os átomos da estrutura cristalina resulta na formação de intersticiais (i) e lacunas (l) em igual número, denominados pares de Frenkel. Está também estabelecido que, quase todos os metais de estrutura cúbica de face centrada, irradiados a baixas temperaturas, tem um comportamento similar na sua restauração térmica, que é caracterizado por dois estágios, denominados Estágio I e Estágio III. Um exemplo esquemático deste comportamento é mostrado na figura 1. Utilizando o modelo de restauração de l- Intersticial, estes estágios podem ser interpretados pela migração, termicamente ativada, dos intersticiais e lacunas nos Estágios I e III respectivamente. O Estágio II se deve fundamentalmente ao colapso dos pares de Frenkel mais próximos, assim como, ao início da formação de pequenos aglomerados de intersticiais que sobrevivem até o final deste estágio. No Estágio II, estes aglomerados crescem formando anéis planos, que é a estrutura energética mais favorável. No Estágio III, as lacunas migram sendo que, a maior parte se aniquila nos aglomerados de intersticiais e a outra parte forma pequenos aglomerados, os quais ao final deste estágio sobrevivem junto com grandes anéis de intersticiais. A total restauração ocorre somente a temperaturas mais elevadas.

No Au, o Estágio I de restauração não foi confirmado experimentalmente mesmo quando medições foram realizadas em amostras irradiadas a 0.3 K. [1].

Depois do êxito na utilização da técnica de espalhamento de raios-X difusos na determinação, com grande sensibilidade, da estrutura, da presença de intersticiais e de seus aglomerados [2], foi considerado a utilização desta técnica para elucidar se a ausência do Estágio I, em Au, se deve à existência de um novo tipo de intersticial que permanece imóvel até o Estágio III ou se estes intersticiais já se deslocaram e formaram aglomerados durante a irradiação a 4.2 K.

É apresentado a seguir um pequeno resumo da teoria do espalhamento de raios-X difusos e os resultados das medidas realizadas após irradiação com elétrons de 3MeV a uma temperatura de aproximadamente de 5 K.

RESUMO DA PARTE TEÓRICA.

Para uma distribuição estatística e pequena concentração de defeitos induzidos pela irradiação, a intensidade de espalhamento perto do espalhamento de Bragg, denominado espalhamento de Huang, I_H , é dada pela relação:

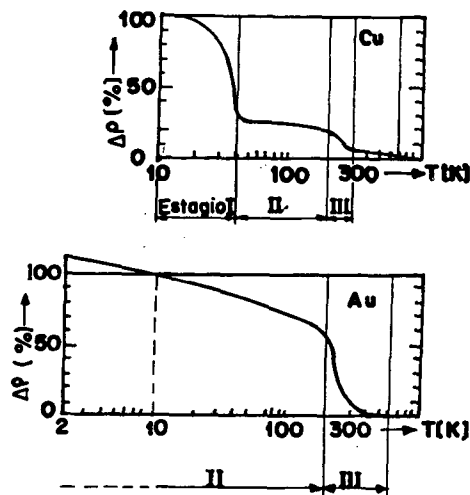


Fig.1. Restauração Térmica da Resistividade Elétrica do Cu e Au

$$I_H = c \cdot f^2 \cdot \frac{h^2}{q} \cdot \left(\frac{\Delta V}{\Omega} \right) \cdot \Phi(\vec{h}, \vec{q}, \text{Simetria}) \quad (1)$$

Onde: C, concentração de defeitos; f, fator de forma atômico; \vec{h} , vetor recíproco da rede cristalina; q, distancia mais próxima do vetor \vec{h} , de modo que: $\vec{q} = \vec{k} - \vec{h}$; \vec{k} é o vetor e espalhamento; ΔV , volume de relaxação do defeito e Ω o volume atômico. A função Φ mostra que a intensidade de espalhamento depende da direção de \vec{q} e \vec{h} e da simetria dos defeitos.

A intensidade de Huang se caracteriza fundamentalmente por ser proporcional a concentração dos defeitos e a q^{-2} , que faz com que esta intensidade seja fortemente intensa perto do espalhamento de Bragg.

A variação do parâmetro da rede cristalina $\Delta a/a$, é dada pela relação:

$$3 \frac{\Delta a}{a} = C \cdot \left[\left(\frac{\Delta V}{\Omega} \right)_I - \left(\frac{\Delta V}{\Omega} \right)_L \right] \quad (2)$$

Nesta relação, considerando-se que a distorção produzida pelas lacunas seja muito menor que a distorção produzida pelos intersticiais, a variação do parâmetro da rede é proporcional a C e ΔV_i , de modo que, medidas de $(\Delta a/a)$ e I_H nos permite determinar C e ΔV_i .

Para aglomerados formados por n defeitos, a concentração dos "novos defeitos" é: C/n . Por outro lado, a distorção total será n vezes maior e, por conseguinte, a intensidade de Huang será também n vezes maior. Este modelo simples para o caso dos aglomerados, onde é considerada uma superposição linear dos intersticiais, é uma boa aproximação para o caso do Au, na qual tem-se também uma relação linear entre $(\Delta a/a)$ e $\Delta \rho$, conforme mostrado na Fig. 2.

$$I_H (\text{Aglom.}) = C/n \cdot n^2 I_H^i = C \cdot n \cdot I_H^i \quad (3)$$

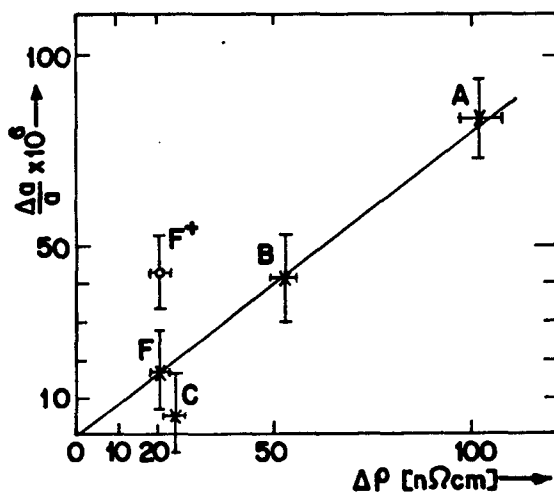


Fig. 2. Relação entre $(\Delta a/a)$ e $\Delta \rho$ a 5 K.
Material puro: X, Material Dopado: O

Com um aumento do tamanho do aglomerado, o espalhamento de Huang fica restrito a regiões perto do espalhamento de Bragg, que corresponde a pequenos valores de q . Para $q \geq 1/R$, onde R é da ordem de grandeza do raio do aglomerado, a intensidade do espalhamento vem da região altamente distorcida ao redor do aglomerado. Para o caso de defeitos isotrópicos, numa matriz também isotrópica, a intensidade de espalhamento é dada pela relação aproximada de Stokes- Wilson, I_{SW} .

$$I_{sw} = C \cdot f^2 \cdot \frac{h}{q^4 \cdot \Omega^2} \cdot (\Delta V)_i \cdot |\Phi(q \cdot \bar{h})| \quad (4)$$

Nesta relação observa-se que a intensidade de Stokes- Wilson é proporcional a q^{-4} e varia linearmente com ΔV_i , o que corresponde a não influencia da presença do aglomerado.

PARTE EXPERIMENTAL

As amostras utilizadas consistiram de placas de Au monocristalino ($20 \times 6 \text{ mm}^2$) com espessuras entre 60 e 80 μm e direções [100] e [110].

Os parâmetros da rede foram determinados nos planos cristalinos (333) e nas orientações [100] com espalhamento de Bragg assimétrico. A resistividade elétrica residual foi medida em amostras policristalinas do mesmo material, irradiadas simultaneamente com as amostras destinadas a medidas de raios-X, a fim de que ambas recebam doses idênticas.

A pureza das amostras foi dada através da resistividade residual relativa (RRR), que atingiu valores entre 1500 e 2000. A amostra E atingiu somente 80, que corresponde a um material com impurezas. A amostra F com espessura de 80 μm foi dopada numa face com 400 ppm de Cu até uma profundidade de 7 μm , por meio de uma difusão controlada, permanecendo a outra face pura.

As irradiações foram realizadas em um acelerador Van der Graff, com feixe de elétrons de 3 MeV densidade de corrente de aproximadamente $5 \mu\text{A}/\text{cm}^2$ e a uma temperatura de 5 K. Em todos os casos amostras de material policristalino foram irradiadas simultaneamente com amostras para medições de raios-X, recebendo ambas amostras doses idênticas. As medições com raios-X foram realizadas utilizando um aparelho de 6-KW de ângulo rotativo, com um monocromador de Johansson e um criostato de raios-X que permitiu medições em temperaturas de 4 até 300 K. As doses recebidas variaram entre 2 e 8 e^-/cm^2 . A variação da resistividade elétrica foi de 21 até 102 $\text{n}\Omega\text{cm}$. A variação do parâmetro da rede na amostra F⁺, que foi dopada com Cu mostra um valor expressivamente maior, comparado com o valor para a parte pura, comportamento este consequência da alta taxa de danos de irradiação que é apresentada em materiais dopados ou com alto teor de impurezas. As condições das amostras, doses de irradiação e os resultados obtidos das medições a 5K são mostrados na Tabela 1.

TABELA 1. Dados sobre amostras, irradiação e resultados a 5 K.

Amostra	Pureza (R R R)	IRRADIAÇÕES			RESULTADOS 5 K.		
		$\phi \cdot 10^{18}$ (e^-/cm^2)	$\Delta \rho$ ($\text{n}\Omega\text{cm}$)	$\frac{\Delta a}{a}$ ($\times 10^5$)	C_{Agl} (ppm)	$\frac{\Delta V}{\Omega}$	C_i (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
D	1500	3,7	44	3,5	13	11	140
F	1500	1,8	21	1,7	—	—	—
E ⁺	80	5,5	61	8	120	3	300
F ⁺	400 ppm Cu	1,8	42	4	150	1	150

Os resultados das medições da intensidade de espalhamento após a irradiação a 4.2 K, medidas nos planos cristalinos (400) e nas direções [100] e [011], são mostrados nas Figuras 3 e 4 respectivamente. Nos materiais de alta pureza, a intensidade de espalhamento na direção [100] aumenta mais rápido que a relação das concentrações. Por exemplo: as amostras A e B mostram uma relação de concentração de aproximadamente 2, mas nas intensidades a diferença é aproximadamente 10. Pode-se interpretar estas intensidades em função da formação de aglomerados. Outra manifestação da presença de aglomerados é dada pela dependência em q^{-4} dessas curvas. A amostra C e a parte pura da amostra F se comportam do mesmo modo. Na figura 4 as medições realizadas na direção [011] são semelhantes as medições na direção [100], as quais mostram dois ramos que dependem de q^2 e q^{-4} . Isto mostra novamente a presença de aglomerados.