

ESTUDIO DE LA FORMACION DE CAVIDADES BAJO IRRADIACION NEUTRONICA
MEDIANTE TECNICAS DE MICROSCOPIA ELECTRONICA.

A.A.Pochettino y M.Ipohorski, Gerencia de Desarrollo, Departamento de
Materiales, Comisión Nacional de Energía Atómica.

I.- INTRODUCCION.

El hinchado de metales (swelling) por formación de cavidades producidas bajo irradiación neutrónica a altas dosis y temperaturas comprendidas entre 0.3 y 0.5 de la temperatura absoluta de fusión $T_m(^{\circ}K)$, es un factor muy importante a tener en cuenta en el diseño de reactores. Con el objeto de conocer los mecanismos atómicos en juego durante la producción de estos defectos cristalinos y el posible rol inhibitor de ciertas impurezas metálicas, se estudió la nucleación de cavidades en monocristales de Al y aleaciones diluidas Al-Mg, irradiados en el reactor CNEA/RA 3 de Ezeiza a dosis del orden de 10^{20} n/cm² utilizando técnicas de microscopía electrónica de transmisión.

II.- TECNICAS EXPERIMENTALES.

En las experiencias realizadas se utilizaron monocristales de Al, Al-0,01 % at.Mg y Al-0,1 % Mg, crecidos por el método de Bridgman modificado utilizando un horno de radiofrecuencia, siendo el contenido de las restantes impurezas menor que el 0,001 % at.

Las irradiaciones se realizaron en el reactor RA3 a dosis de 4×10^{19} n/cm², 10^{20} n/cm² y 3×10^{20} n/cm². Posteriormente se cortaron por electroerosión discos de 3mm de diámetro y 0.3-0.4 mm de espesor, con sus caras planas orientadas en la dirección {101} a fin de facilitar las posteriores experiencias de microscopía electrónica. A partir de los discos y utilizando técnicas de pulido electrolítico, se obtuvieron láminas delgadas del material irradiado, las que se observaron en el microscopio electrónico Philips EM300 del Departamento de Materiales de la CNEA.

III.- RESULTADOS OBTENIDOS

1.- CAVIDADES EN ALUMINIO

Estos defectos cristalinos se observan en las micrografías electrónicas a partir de dosis de 10^{20} n/cm², encontrándose también en las mismas una gran cantidad de lazos de dislocaciones (Fig.1). La densidad de ambos tipos de defectos se incrementa con la dosis de irradiación. En la Tabla I se resumen los resultados obtenidos.

Para que existan cavidades en un metal irradiado deben prevalecer los procesos de nucleación de vacancias frente a los de recombinación intersticial-vacancia. Para ello es necesario que existan numerosos sumideros de intersticiales (p.ej. bordes de grano) o bien que éstos se nucleen en lazos de intersticiales.

En este trabajo, donde se utilizan monocristales con bajo contenido de dislocaciones, se descarta la primera hipótesis acerca de la existencia de sumideros de intersticiales. Sin embargo, la densidad de defectos formados

Dosis	Lazos de dislocaciones	% lazos int.	Cavidades
$4 \cdot 10^{19} \text{ n/cm}^2$	$5 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$	$\approx 100\%$	----
10^{20} n/cm^2	$7 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$	$\approx 50\%$	$5 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$
$3 \cdot 10^{20} \text{ n/cm}^2$	10^{13} cm^{-3}	$\approx 20\%$	$2 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$

Tabla I

... por intersticiales disminuye con el aumento de la dosis. Esta aparente anomalía en los resultados puede ser explicada si se tiene en cuenta la existencia de numerosos segmentos de dislocaciones en las micrografías del material irradiado. Estos segmentos corresponderían a lazos intersticiales que han crecido desmesuradamente y que al preparar la lámina delgada (2000-3000 Å de espesor) se presentan como "segmentos de dislocaciones".

También se observan, asociados a cavidades, contrastes electrónicos de precipitados, los que se indican con flechas en la Fig.2. Si se considera que la cantidad de Si producido por reacciones $^{27}\text{Al} (n, \beta) ^{28}\text{Si}$, generada por neutrones térmicos, es 0,006 y 0,02 % at. para las dosis de 10^{20} y $3 \cdot 10^{20} \text{ n/cm}^2$ y que el límite de solubilidad del Si en Al es de 0,001 % at. a 55°C, se pueden asociar los contrastes observados a precipitados de Si, ya que el contenido de las restantes impurezas está por debajo de sus solubilidades máximas a dicha temperatura.

Cabe señalar que la asociación precipitados de Si-cavidades no es biunívoca, ya que se observan numerosos precipitados de Si en el cristal sin que estos estén asociados a cavidades, hecho que se debe tener en cuenta al analizar los mecanismos de nucleación de cavidades.

2.- AGREGADO DE IMPUREZAS DE MAGNESIO.

El agregado de un 0,01% at. de Mg no altera fundamentalmente la nucleación de defectos bajo irradiación, observándose una disminución en un factor dos en la densidad de cavidades.

Sin embargo en las muestras con un contenido de 0,1% at. Mg no se observa la existencia de cavidades en el material irradiado. En ellas se encuentran contrastes que corresponden a pequeños lazos de dislocaciones, de diámetro menor que 200 Å y que presentan imágenes tipo "black-dot" (10^{14} cm^{-3} a la dosis máxima). También se observan contrastes en forma de "agujas", orientadas en direcciones del tipo $\{100\}$, de longitudes comprendidas entre los 300 y 600 Å y diámetros entre 50 y 100 Å, los que luego de ser estudiados se determinó que correspondían a precipitados de Mg_2Si ($8 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ a la dosis máxima) (Fig. 3).

Luego, el agregado de un 0,1% at. de Mg facilita la recombinación intersticial-vacancia, eliminando la posibilidad de formación de cavidades, altera la distribución de lazos de dislocaciones y permite la precipitación de Mg₂Si, lo que alteraría las propiedades mecánicas del material.

IV .- INTERPRETACION DE LOS RESULTADOS OBTENIDOS.

El incremento de la recombinación intersticial-vacancia se puede explicar a través de la existencia de pares impureza-vacancia de mayor difusibilidad en el cristal que las vacancias creadas bajo irradiación (1).

El Si producido bajo irradiación, también migra por mecanismos de vacancias. Sin embargo, existen diferencias entre los pares Si-vacancia y Mg-vacancia, ya que:

- a) Poseen distintas energías de unión: $E_b \text{ Si-vac} \approx 0,07 \text{ eV}$
 $E_b \text{ Mg-vac} \approx 0,04 \text{ eV}$ (2)

b) Existen zonas del cristal ricas en Si, las que están asociadas a defectos formados por vacancias, mientras que no ocurre lo mismo con el Mg.

Un modelo utilizado en estudios de difusión permite explicar estas diferencias y es el llamado "modelo de cinco frecuencias de salto" (3). En él se propone que los pares impureza-vacancia no son necesariamente estables, pudiendo estos disociarse más fácilmente con la disminución de la energía de unión.

En el caso de Si, los pares serán más estables, pudiendo retener vacancias al precipitar y transformarse entonces en un núcleo para el crecimiento de cavidades. Si esto no ocurre da origen a precipitados libres en el cristal.

Se debe tener en cuenta que inicialmente no existe Si en la red y que la cantidad de estas impurezas se incrementa con el tiempo de irradiación. Distinto es el caso de las aleaciones Al-Mg, donde con el agregado de Mg se favorece la recombinación dado que existirán desde el comienzo de la irradiación una gran cantidad de trampas de vacancias disponibles para favorecer la migración de vacancias.

REFERENCIAS

- (1) A. A. Pochettino y M. Ipohorski, Ultramicroscopy, 3 (1978), 61.
 (2) J. Takamura, M. Koike y K. Furokawa, J. Nucl. Mat. 69-70 (1978), 738.
 (3) A. D. Le Claire, J. Nucl. Mat. 69-70 (1978), 70.

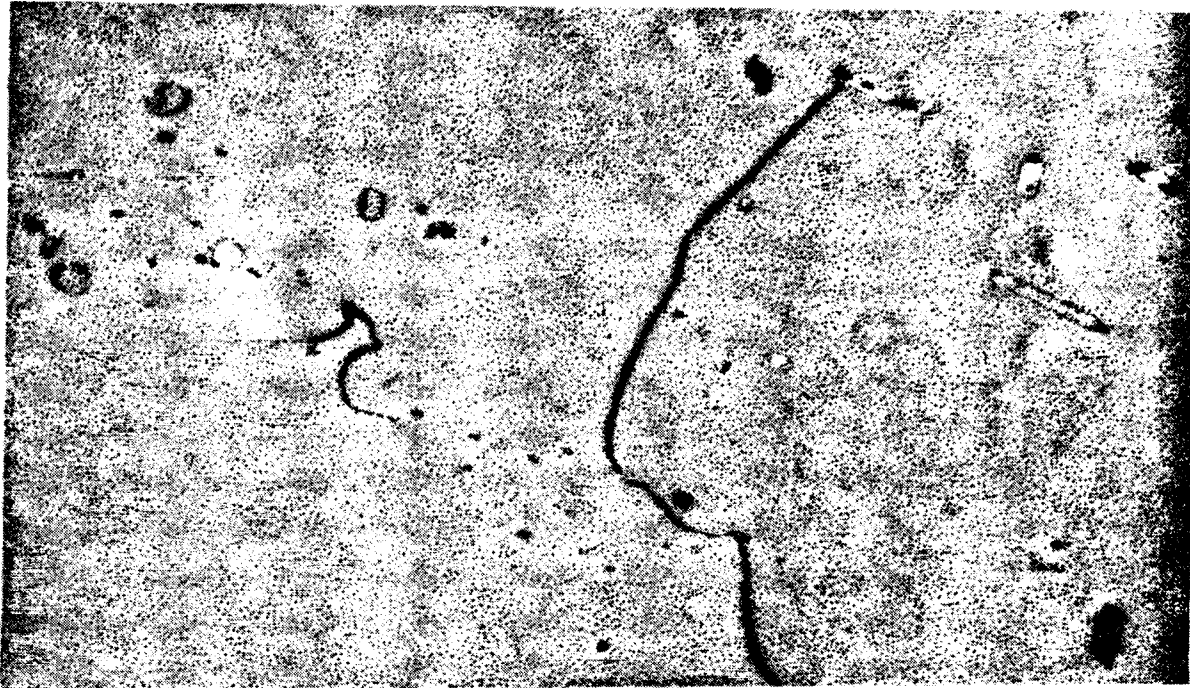


Figura 1: Micrografía electrónica típica de una muestra de Al puro irradiado a la dosis de $3 \cdot 10^{20}$ n/cm². En ella se observan contrastes correspondientes a lazos de dislocaciones y cavidades. 60.000 X.

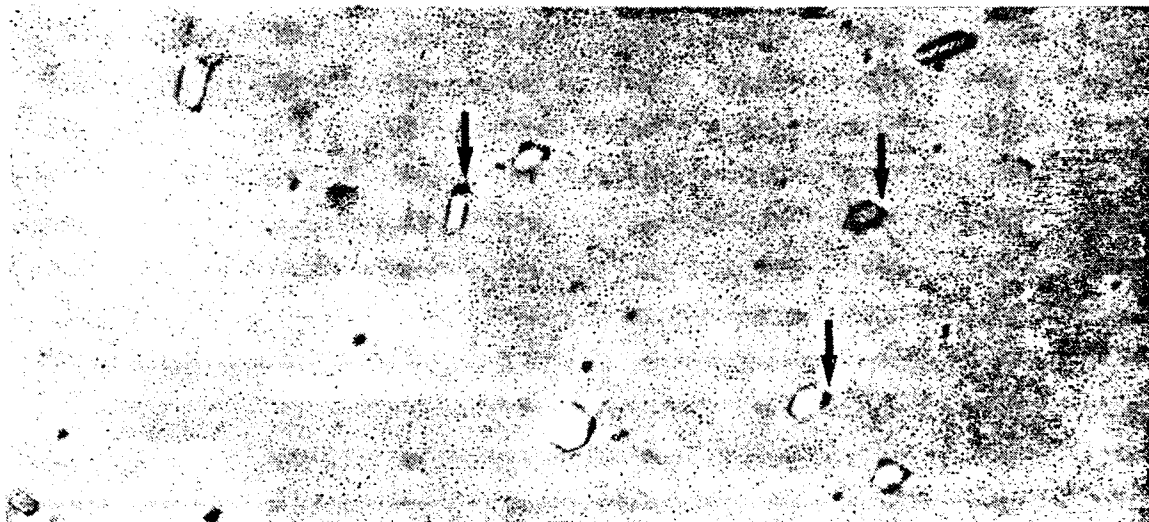


Figura 2: Micrografía de una zona rica en cavidades en Al puro irradiado a $3 \cdot 10^{20}$ n/cm². Con una flecha se indican los contrastes correspondientes a precipitados de Si asociados a cavidades. 60.000 X.

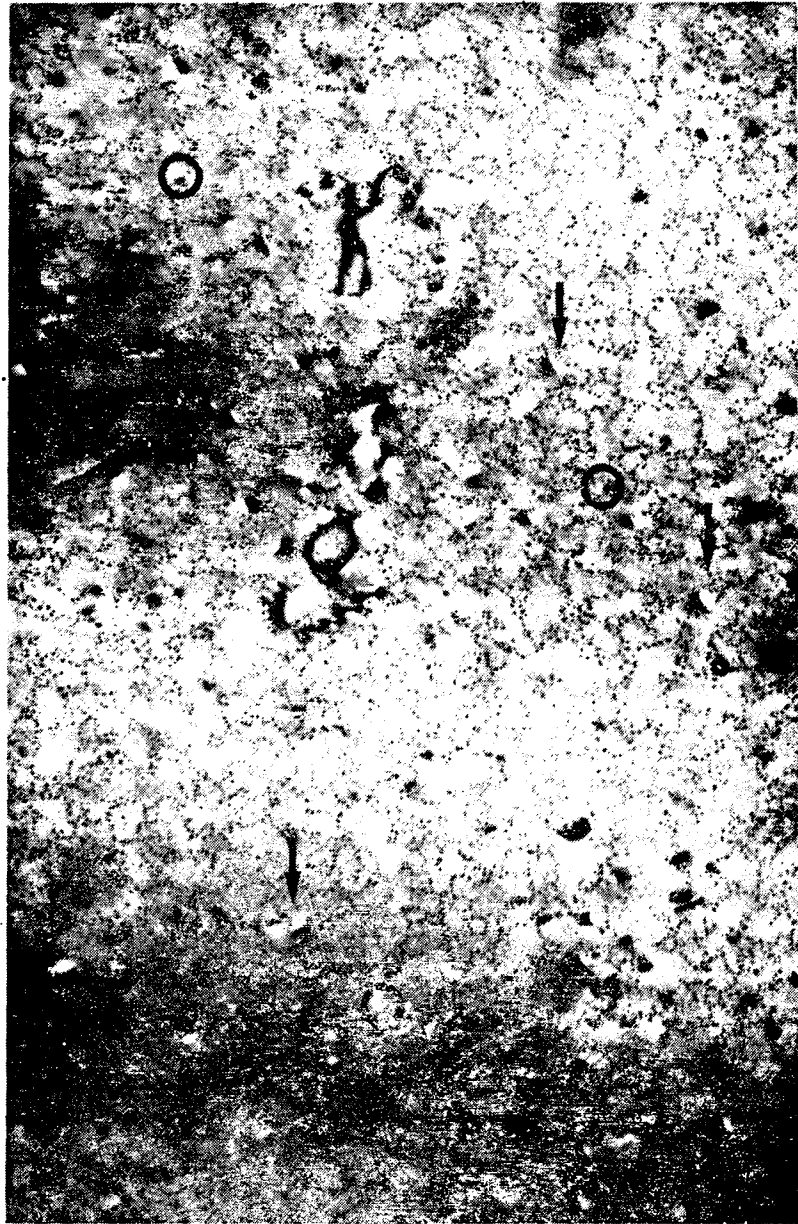


Figura 3: Micrografía característica de una muestra de Al 0,1% at. Mg irradiada a 10^{20} n/cm². En ella se observan contrastes correspondientes a lazos de dislocaciones, muchos de los cuales, al ser de diámetro menor que 200 Å, presentan imagen tipo "black dot" (indicados con un círculo) y a precipitados de Mg₂Si (indicados con flechas). 60.000 X.