

COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA
DEPENDIENTE DE LA PRESIDENCIA DE LA NACION

QUINTO CURSO PANAMERICANO DE METALURGIA

Dentro del Programa Multinacional de Metalurgia
(Programa Regional de Ciencia y Tecnología - OEA)

EFFECTO DE LAS RADIACIONES SOBRE LOS SOLIDOS CRISTALINOS

Dr. Y. Queré
(Centre Etudes Nucleaires, Fontenay aux Roses, Francia)

Departamento de Metalurgia
Buenos Aires - Argentina
1969

COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA
DEPENDIENTE DE LA PRESIDENCIA DE LA NACION

QUINTO CURSO PANAMERICANO DE METALURGIA

Dentro del Programa Multinacional de Metalurgia
(Programa Regional de Ciencia y Tecnología - OEA)

EFFECTO DE LAS RADIACIONES SOBRE LOS SOLIDOS CRISTALINOS

Dr . Y. Queré
(Centre Etudes Nucleaires, Fontenay aux Roses, Francia)

Departamento de Metalurgia
Buenos Aires - Argentina
1969

1. DEFECTOS PRODUCIDOS POR IRRADIACION

Al irradiar un metal se entrega energía a los átomos en forma localizada. Si el átomo recibe suficiente energía, es desplazada del lugar S_o que ocupa inicialmente. Se aloja generalmente en una posición intersticial, dejando una vacancia en S_o . La formación de estos pares de Frenkel constituyen el mecanismo más elemental en lo que a efectos de las radiaciones en metales se refiere. Las condiciones para que estos pares se formen, su evolución en la red, los efectos macroscópicos que se presencia entrañan, serán los puntos que desarrollaremos en este párrafo.

1.1. Creación de Defectos por Irradiación

El objeto no será, desarrollar en forma general el problema de desalcración de partículas rápidas en un cristal (*). Dichas partículas pueden ser eléctricamente cargadas (electrones, protones, partículas α , iones acelerados, fragmentos de fisión de uranio o de plutonio ...) o no (neutrones, fotones...). En el primer caso, ellas son especialmente frenadas por interacción culombiana con el gas de electrones del metal y también por los núcleos a los cuales ceden una parte de su energía. El proceso depende de la sección eficaz σ de colisión de la partícula incidente respecto a los núcleos del metal. Si σ no es pequeña se tratará de colisiones directas: colisión neutrón - núcleo por ejemplo. Si σ es despreciable las colisiones pueden ser indirectas: así por ejemplo los fotones entregan su energía a los electrones y éstos a su vez bombardean los núcleos y los desplazan.

De todos modos un átomo que se halla en su posición normal en la red no puede ser desplazado, en forma total, si la colisión no le cede suficiente energía. Dicha energía E_s , llamado energía de umbral desplazamiento, depende de la eventual dirección eyección.

Sin embargo, como Seitz calculó antes de 1950 (1) ella es para la mayor parte de los metales del orden de los 25 eV. Cada vez que un átomo recibe una energía inferior a E_s , se aleja de su posición de equilibrio, pero incapaz de abrirse paso entre sus vecinos, vuelve a su posición inicial disipando su energía en vibraciones térmicas. Una proporción muy importante (hasta 90% a veces) de la energía entregada por la irradiación de un cristal es comunmente de esta forma "perdida" en colisiones ineficaces.

Es frecuente que un átomo impactado sea eyectado de su sitio y con energía suficiente para colisionar otros átomos y desplazarlos y así sucesivamente... Se dice que se ha producido una "cascada" en la cual el primer átomo colisionado, se llama "primario". Se demuestra (1.a.) y lo tomaremos como un orden de magnitud que para un primario de energía E , el número de pares Frenkel creados una vez que todos los átomos se hallan en reposo es

$$n \approx 0.5 \frac{E}{E_s} \quad (1)$$

(*) Para consultar sobre este tema: N.F. Mott et H.S.W. Massey - The theory of collisions, Clarendon Press, Oxford (1949); F. Seitz et J.S. Koehler - Solid state Physics, vol.2 Academic Press, New York (1956)

fórmula obtenida bajo la suposición que los pares formados no interaccionan. Si se desea crear defectos pero evitar la producción de "cascadas" es necesario entregar a los átomos del cristal una energía comprendida entre E_s y $2 E_s$. Los electrones dado que se pueden obtener rigurosamente monoenergéticos se adecuan excelentemente a este tipo de experiencia. Así los electrones de 1 MeV - energía fácilmente obtenible en un acelerador - ceden a los átomos de plata una energía igual a 37,5 eV o más (choque frontal).

Las generalidades precedentes no tienen en cuenta el carácter cristallino de los metales. Ellos permanecen en gran parte idénticos si se trata de cuerpos amorfos. Ahora bien la red influye en la transmisión de choques y en la propagación de partículas incidentes siendo ambos anisotropos en un cristal. Los dos mecanismos de esta anisotropía, focalización y canalización merecen ser descriptas en la medida en la que ellos influyen en la localización de defectos puntuales creados.

Vimos ya la "focalización" cuando describimos los métodos de cálculo por computación. Una colisión se propaga mejor - a condición que su energía no sea superior a algunos cientos de eV - a lo largo de un ordenamiento denso de la red que según cualquier otra dirección.

La focalización ha sido demostrado por Wehner (2) y Thompson (3). Este último bombardeó una lámina delgada de oro monocristalino con protones y demostró que los átomos de oro son eyectados de la lámina a lo largo de las direcciones compactas $\langle 110 \rangle$: las colisiones se transmitían principalmente a lo largo de esas direcciones y los átomos abandonaban la lámina con un impulso paralelo a las dichas direcciones.

La existencia de este proceso acarrea dos consecuencias importantes :

1) Al transportarse con una gran eficacia la energía según las direcciones cristalinicas densas la cadena de colisiones focalizadas tiende a crear un intersticial en el extremo de la cadena a una distancia relativamente grande de la vacancia; el concepto de par Frenkel en este caso pierde interés.

2) Todo defecto estructural que se encuentra en una dirección compacta por la cual se desarrolla una colisión focalizada tiende a interrumpirla : es de esperar entonces la creación de un mayor número de intersticiales en las proximidades de los bordes de grano, planos de machas, dislocaciones, etc. (4) que en una región perfecta del cristal. El primero de estos puntos nos conducen directamente al concepto de displacement spike introducidos por Brukman (5) . Este autor ha calculado el libre camino medio Λ de un átomo primario que se desacelera en un cristal (cobre, por ejemplo).

El ha demostrado que Λ es del orden de las distancias interatómicas cuando la energía del primario está comprendida entre 50.000 y 400 eV aproximadamente, esto es dentro de una gran fracción de la desaceleración de un primario rápido. Un gran número de colisiones se producen por tanto

en una región muy pequeña R del cristal. Si emerge de la región R un "ramificación" de colisiones focalizadas los N intersticiales correspondientes a las N vacancias concentradas en R estarán distribuidas alrededor de R constituyendo una vaina de intersticiales alrededor de una zona vacancial.

En la figura 1. se muestra un ejemplo de esta situación : para calcular mediante una computadora se simula en un plano $\{100\}$ de un cristal de cobre una colisión de 400 eV. Las once vacancias formadas se encuentran cerca del punto de impacto en tanto que los 11 intersticiales formados en el extremo de la cadena de focalización se hallará alrededor de la zona de vacancias (6)

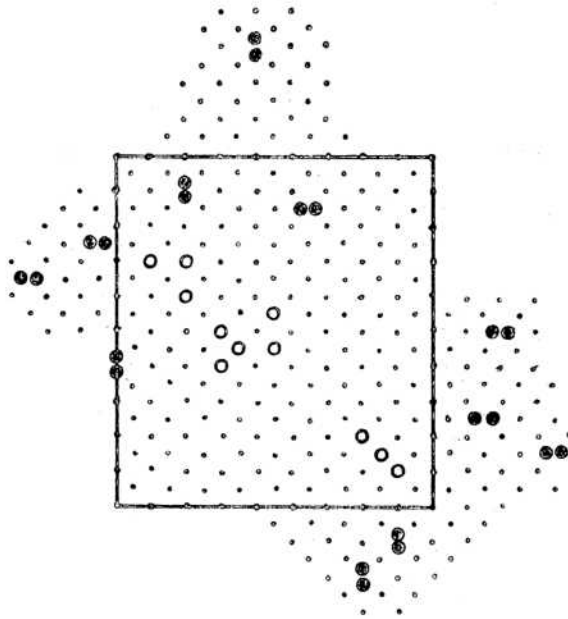


FIGURA 1 = Posición final de los átomos eV en un plano $\{100\}$ (6)

Los círculos blancos representan las vacancias, los círculos negros apareados los intersticiales disociados.

Cálculo hecho con las constantes elásticas del cobre.

Si N es suficientemente grande la situación no es estable. La faja o nube de intersticiales se precipitará inmediatamente hacia R , proceso llamado displacement spike.

Los intersticiales se recombinarán con las vacancias generando así un cristal prácticamente libre de defectos puntuales en la región R . Si al contrario, N es pequeño o si los intersticiales son creados a distancias relativamente grandes de R , se alejarán por migración, si la temperatura lo permite, y se mantendrá en la región N una zona de vacancias, llamada a veces zona de Seeger.

Es claro que la formación de displacement spike disminuye el número de defectos creado por la irradiación. En particular, ello puede convertir en groseramente falsa la fórmula (1). Otro mecanismo ha sido propuesto que actúa en el mismo sentido. La disipación de energía debida a una colisión en la región R es acompañada de una elevación de temperatura instantánea alrededor de R, que le permite a los defectos puntuales recientemente (o anteriormente) creados migrar o recombinarse. Este proceso constituye un thermal spike. Estos dos modelos constituyen sin duda las descripciones extremas de la realidad, el primero considerando iguales a cero las energías de migración en el displacement spike, el segundo admitiendo que estas energías no son modificadas en una región donde por tanto se forma una concentración enorme de defectos.

La focalización es el signo de la anisotropía del transporte de la energía de los choques atómicos. "La canalización" corresponde a la anisotropía de las pérdidas de energía de las partículas incidentes en un cristal. Recuerdese que una partícula - y en particular un átomo primario - se dice canalizado cuando se propaga en un "canal" vacío existente entre dos direcciones compactas de vecinos cercanos, por ejemplo entre cuatro direcciones vecinas (110) de un cristal f.c.c. Un canal es tanto más hueco cuanto más compactas son las direcciones que lo bordean.

Este proceso de canalización ha sido puesto en evidencia experimentalmente por Thompson (7) quien demostró que la transparencia de una lámina de oro con respecto a los protones incidentes está muy aumentada cuando las direcciones cristalográficas densas de la lámina coinciden con la dirección incidente de protones introduce, como la focalización, importantes consecuencias respecto a la creación de defectos puntuales por irradiación.

1) Si las partículas incidentes o los átomos primarios desacele-
ran progresivamente, con la ayuda de choques laterales numerosos pero de
baja energía con los átomos que bordean el canal, la canalización reducirá
el número de defectos puntuales creados.

2) Inversamente todo obstáculo, borde, dislocación..., interfiri-
endo un canal tiende a interrumpir la canalización y a crear en la proximi-
dad y más allá del obstáculo, más defectos puntuales, que si la canalización
no haya sido perturbada.

Remarcaremos finalmente que cuando un defecto de la red obstruye un
canal $[h, k, l]$, la transmisión de partículas a lo largo de los canales $[h, k, l]$
será disminuída, este defecto de obstrucción permite por tanto estudiar los
defectos mediante experiencias de transmisión de partículas en los cristales
(8).

1.2. Observaciones de Defectos Puntuales Creados por Irradiación :

Las técnicas experimentales de irradiación son generalmente más complejas y bastante más pesadas que la técnica de templado. La inestabilidad de pares Frenkel próximos a la supuesta movilidad de intersticiales hace necesario la realización de las experiencias a baja temperatura, si es posible a la de He líquido ($4,2^{\circ}\text{K}$). Por otra parte la fuente de partículas - aceleradores, reactores nucleares ... - constituye una variable rígida de la experiencia, a la cual hay que adaptar, dentro de límites estrictos, los dispositivos experimentales (portaprobeta, cámara de irradiación). A lo largo de la irradiación se producen (a causa de neutrones principalmente) frecuentemente numerosas reacciones nucleares que transforman en radioactivas las probetas y sus accesorios y obligan a efectuar algunas mediciones después de la irradiación bajo protección de plomo en hormigón. Finalmente, no es siempre fácil conocer con precisión el flujo instantáneo φ de partículas, en consecuencia el flujo integrado $\int \varphi \cdot dt$ - aún llamada dosis de irradiación (*) - alcanzada por la probeta. Cada experiencia de irradiación debe entonces contener un aspecto "dosimétrico" que los físicos del sólido a veces tienden a despreciar o a subestimar.

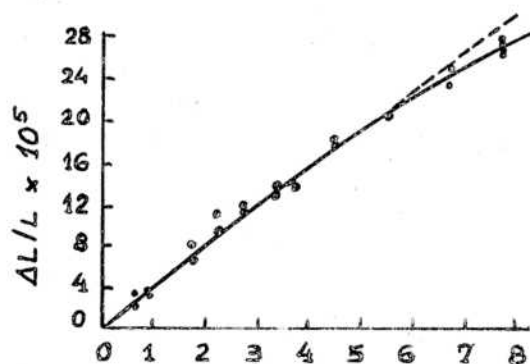
Los medios de irradiación - en especial con partículas - son muy numerosos. Los medios de investigación y de observación no lo son menos. Si consideramos además todos los metales que han sido estudiados, se vé inmediatamente que sería tedioso hacer una lista completa de las experiencias que han sido hechas en este dominio. Por lo tanto elegiremos algunas que sean representativas de las diferentes situaciones que se pueden presentar y las clasificaremos en función del método de investigación.

a) Microscopías por emisión : La técnica de irradiación por Müller (11) contradice nuestra afirmación precedente acerca de la complejidad de las experiencias de irradiación. Se irradia, en el mismo microscopio una fina aguja metálica con partículas α emitidas por una fuente situada en las proximidades de la probeta o con un haz de átomos de Helio de 20 k.e.V.

Se observa también la creación de vacancias superficiales, en mayor número sobre la cara de entrada de las partículas, así como asociación de vacancias (9) ver zonas de vacancias de Seeger en platino bombardeado con neutrones (10). No es posible ver con seguridad los intersticiales. Durante el curso de la irradiación, aparecieron sobre los clisés manchas brillantes suplementarias que Müller atribuye a la presencia de este defecto. Cuando se irradia una aguja de tungsteno a baja temperatura y se la recoge progresivamente, esas manchas aparecen a 80 ó 100°K , lo que permite suponer que es esa la temperatura a la cual las intersticiales migran en el tungsteno.

b) Medidas de longitud y de parámetros cristalinos : Ya hemos visto que la presencia de pares Frenkel en la probeta se debe manifestar por un aumento de longitud y por un aumento de parámetro cristalino.

Vook y Wert han irradiado finas láminas de cobre (espesor : alrededor de 80μ) con deuterones de 8,5 M.e.v. a una temperatura de 17°K y han medido su variación de longitud en el curso de la irradiación mediante un comparador (11). Este último permite tomar un punto de la probeta irradiada y evaluar sus desplazamientos con respecto a un punto de una probeta vecina no irradiada. En la figura 2. se representan los resultados de estas medidas en función del flujo integrado de deuterones.



Flujo integrado : $d/\text{cm}^2 \times 10^{-16}$

FIGURA 2 = Elongación relativa $\frac{\Delta L}{L}$, debida a los defectos puntuales de una probeta de cobre irradiado con deuterones (11)
En abscisas, flujo integrado de deuterones.
Temperatura de irradiación : 17°K

La elongación $\Delta L/L$, crece a bajas dosis, proporcionalmente a ésta.

Tomando como variación de volumen por par Frenkel el valor $1.8 v_{\text{AT}}$ (Cap. III) donde v_{AT} es el volumen atómico y sabiendo que la lámina delgada irradiada tiene alrededor de $8,4 \cdot 10^{20}$ átomos/ cm^2 , se calcula fácilmente que el número de pares Frenkel creados por deuterones incidentes es igual a 5.

Las variaciones $\Delta a/a$ del parámetro cristalino de cobre irradiado con deuterones de energía comparable (7 MrV) a 10°K han sido medidas por Simmons y Balluffi (12); las probetas tienen un espesor de 90μ

La figura 3. representa los resultados así obtenidos; la variación $\Delta a/a$, positiva, es proporcional al flujo integrado de deuterones.

Comparando esta figura a la figura 2. se comprueba que para un flujo dado la variación relativa de longitudes y la variación relativa de parámetro cristalino son comparables.

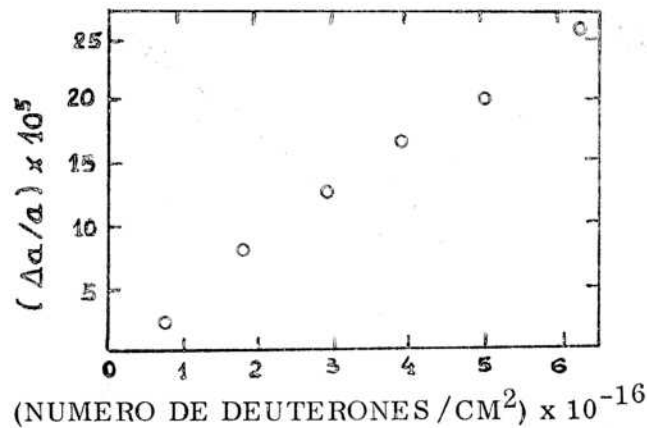


FIGURA 3 = Variación del parámetro cristalino α de un monocristal de cobre bombardeado con deuterones (12)
En abscisas , flujo integrado de deuterones
Temperatura de irradiación : 10°K

Esto está de acuerdo con lo que debería esperar si la mayoría de los defectos puntuales han mantenido su individualidad. En efecto, a concentraciones de vacancias y de intersticiales aislados iguales :

$$\frac{\Delta L}{L} = \frac{\Delta \alpha}{\alpha}$$

Vamos a encontrar en el plutonio un caso donde esta igualdad de $\frac{\Delta L}{L}$ y $\frac{\Delta \alpha}{\alpha}$ no se verifica. La fase α estable a bajas temperaturas tiene una red cristalográfica compleja (monoclínica) así como una estructura electrónica aún no bien entendida. Sin embargo, este metal presenta el gran interés de ser emisor α : la desintegración (*) de Pu ²³⁹ libera una partícula α de 5.1 M.e.V. y un átomo de U ²³⁵, con una energía de retroceso de 87 k.e.V.

Una experiencia de "auto-irradiación" de plutonio consiste por lo tanto en medir las variaciones de las propiedades físicas de este metal a lo largo del tiempo.

Lallement y colaboradores (13-14) han medido de una manera las variaciones de longitud de plutonio α por auto-irradiación a 4,2° K pegando un strain gauge sobre la probeta de este metal. La variación de longitud crece, al comienzo, linealmente, con el tiempo t y se tiene :

$$\frac{\Delta L}{L \cdot \Delta t} = 419^{-6} / \text{hora}$$

Se ha deducido, manteniendo como volumen de activación de un par Frenkel, 1,8 V_{At} que se producen aproximadamente 2000 pares Frenkel por desintegración α . Este valor está sorprendentemente de acuerdo por el propuesto anteriormente por Vineyard (1800 (15)).

(*) La pérdida de esta reacción es 24 360 años. Cada átomos N de ²³⁹Pu, 9.10⁻¹³N se desintegra por segundo.

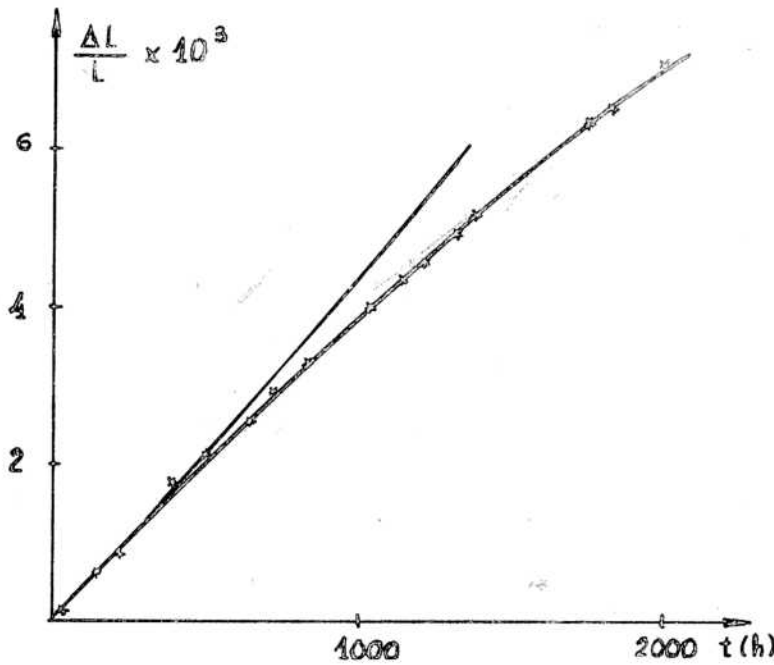


FIGURA 4 = Elongación relativa $\frac{\Delta L}{L}$ de una probeta de plutonio en función del tiempo t de permanencia t en helio líquido (14). La irradiación se debe a partículas α emitidas por el plutonio mismo.

La figura 4. pone de manifiesto por primera vez un fenómeno muy general : la tendencia a la saturación con la concentración de defectos. La linealidad efecto-dosis se verifica solamente para flujos integrados débiles. La curva efecto-dosis presenta en realidad una curvatura negativa. Esta propiedad deviene de la eliminación, por efecto mismo de la irradiación, de defectos anteriormente creados. Volveremos más adelante sobre este importante fenómeno.

Las variaciones del parámetro cristalino $\frac{\Delta a}{a}$ de plutonio α auto-irradiado a 4,2°K ha sido medido por Marples (16). Es interesante destacar que, $\frac{\Delta a}{a \Delta t}$ igual a 10^{-6} /hora es significativamente diferente a $\frac{\Delta L}{L \Delta t}$.

Tal resultado se explica si, en el plutonio α , los intersticiales forman clusters desde 4,2°K.

c) Medidas de resistividad eléctrica : Son de una interpretación menos directa que las anteriores pero, a pesar de ello, las más utilizadas para estudiar los defectos de irradiación.

Justamente por medidas de resistividad se han determinado los ordenes de magnitud de las energías umbral E_s de los metales. El principio de la experiencia es simple, se bombardea un metal a bajas temperaturas con electrones de energía W variable. Aumentamos W gradualmente a partir de cero. Sea E_m la energía (máxima) cedida por choque de lleno por

un electrón de energía W a un átomo del metal. Se debe observar una creación de pares de Frenkel, esto es un aumento $\Delta \rho$ de la resistividad, ya que W es superior a W_s , y $E_m(W_s) > E_s$. De la medición de W_s se deduce pues, en principio E_s . En realidad, la anisotropía de E_s hace imposible la medición de un umbral preciso aún en un monocristal irradiado por un haz paralelo de electrones de velocidad V , los átomos adquieren por choque las velocidades $\bar{V}$ en todas las direcciones obedeciendo la sola condición: $\bar{V} \cdot \bar{V}$

> 0 . Se puede introducir una propabilidad de eyección, $p(E)$ para los átomos, nula por debajo de un valor nominal. E_s es igual a 1 por encima de un valor máximo E_{sm} . Se admite entonces que $\Delta \rho$ es proporcional a la sección eficaz de desplazamiento $\sigma_d(W) = p(E) \cdot \sigma(W)$, donde $\sigma(W)$ representa la eficaz, conocida, de colisión coulombiana para electrones relativistas. Se comporta finalmente la curva experimental $\Delta \rho(W)$ con las curvas teóricas $\sigma_d(W)$ obtenidas ensayando diferentes expresiones de la función p .

El método ha sido utilizado en detalle por Lucasson y Walker quienes han irradiado numerosos metales con electrones a bajas temperaturas (17). Estos autores estudiaron diversas posibilidades para la función p - en particular la función escalón, la función lineal entre $p(E_{so}) = 0$ y $p(E_{sm}) = 1$... - las cuales concuerdan muy bien con sus resultados experimentales a condición de elegir correctamente E_{so} y E_{sm} . También usaron la noción más simple de escalón medio, correspondiente a la función escalón para p y a $E_{so} = E_{sm} = E_s$, que será de uso cómodo para calcular los efectos globales. Se encuentran de este modo los siguientes valores de E_s : Ni 24 eV, Cu 22 eV, Ag 28 eV, [17] Pt 36-37 eV [17a] Al 17 eV [17b].

La variación inicial de resistividad de un metal irradiado, como la concentración en pares de Frenkel, proporcional al flujo integrado. Se puede ver un ejemplo de este comportamiento inicial en la figura 5. Sin embargo, en los primeros momentos de la irradiación se observa una curvatura positiva en las curvas de resistividad-dosis.

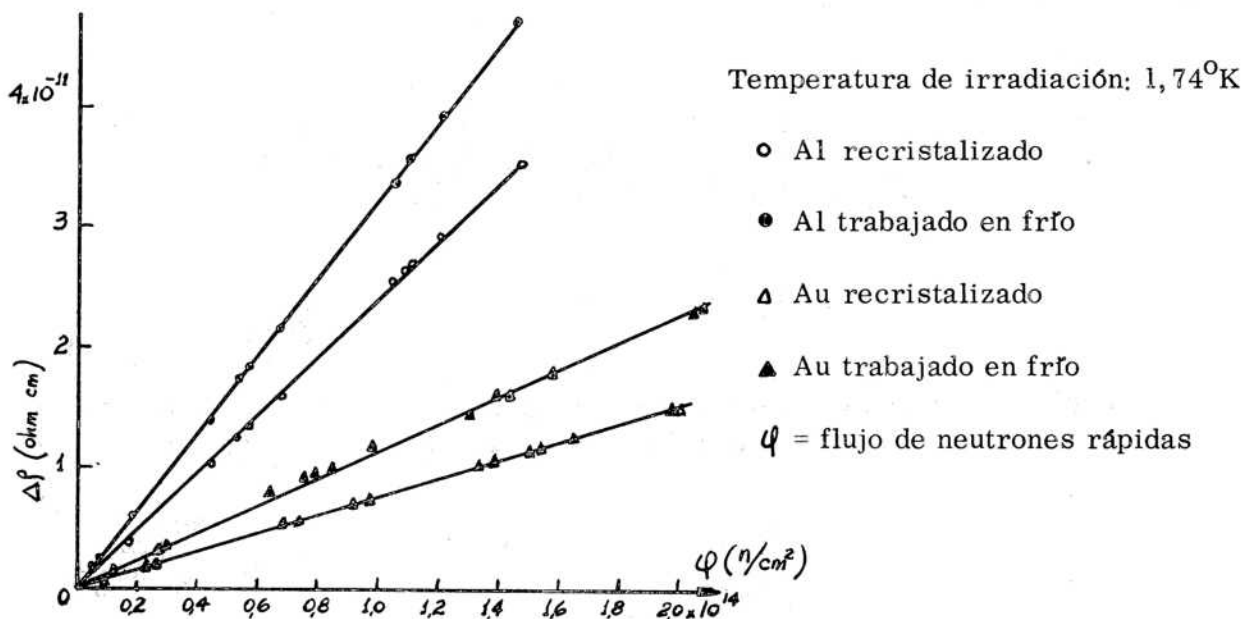


FIGURA 5 = Variación de la resistividad eléctrica de probetas de aluminio y oro irradiadas con dosis bajas de neutrones rápidos (18)

Es el caso del tungsteno inicialmente trabajado en frío e irradiado a 77°K (con neutrones rápidos (19)) o del uranio $\propto$ irradiado a 4,5°K en un flujo de neutrones lentos por los gramentos de fisión que producen estos últimos (20 - 21). En estos dos casos los metales contienen defectos puntuales antes de la irradiación.

Se deberá notar, ver figura 5, que la resistividad crece inicialmente más rápido en un metal trabajado en frío que en un metal recristalizado. Este comportamiento es generalmente atribuido a la interrupción de colisiones focalizadas en dislocaciones del metal trabajado en frío que disminuye la disipación ineficaz de energía debida a la focalización. Se verán de este modo más pares Frenkel en el primer caso que en el segundo (4).

Si la irradiación no ha tenido lugar a temperaturas muy bajas, los defectos pueden migrar después de su creación. Es probablemente este efecto el que Budin y Lucasson pusieron en evidencia, irradiando, con electrones de 1,45 MeV a 1000°K aluminio previamente templado - pues contienen una concentración c de vacancias - o no (22). El aumento de resistividad $\Delta\rho$ debida a la irradiación es menor si el metal contiene vacancias y la diferencia es tanto más marcada cuando más grande sea c . El efecto es interpretado como debido a la migración, a la temperatura misma de irradiación de los intersticiales creados y a su aniquilación con las vacancias de temple.

Finalmente dado que la energía de las partículas de irradiación es suficiente para que haya formación de "cascadas" Corciovei (22a) muestra que la resistividad de n vacancias y de n intersticiales, formadas en un volumen limitado, es notable, es notablemente inferior a la de $2n$ defectos supuestos alejados los unos de los otros.

A altas dosis de irradiación, se observa siempre una tendencia a la saturación, ya observadas en las mediciones de longitud. Muchos efectos pueden conducir a esta saturación, entre otros:

1. Migración térmica de defectos y su aniquilación a la temperatura de irradiación.
2. La existencia alrededor de cada defecto puntual de un volumen de recombinación atómica V_r que excluye la posibilidad de crear una concentración de defectos puntuales aislados superior al valor límite

$$C_{\infty} = \frac{V \cdot A_t}{V_r}$$

más allá de la cual todo nuevo defecto (vacancia o intersticial) creado se aniquila obligatoriamente con un defecto de signo opuesto (intersticial o vacancia).

3. La formación de displacement spikes o de thermal spikes, que recombina-
do en el interior de un cierto volumen V, los defectos precedentemente
creados se encuentran en ese volumen, producen un recocido por irradia-
ción aún para temperaturas de irradiación más bajas obtenibles.

Es suficiente irradiar a temperaturas donde no se produce ninguna migra-
ción térmica de defectos - generalmente 4,2°K - para poder eliminar el
efecto número uno. Se dice entonces que se trata de saturación atérmica.
Burger y al. (23) han así mismo irradiado diversos metales a 4,5°K con
altas dosis de neutrones rápidos. En la figura 6 se pueden ver los resul-
tados correspondientes al aluminio.

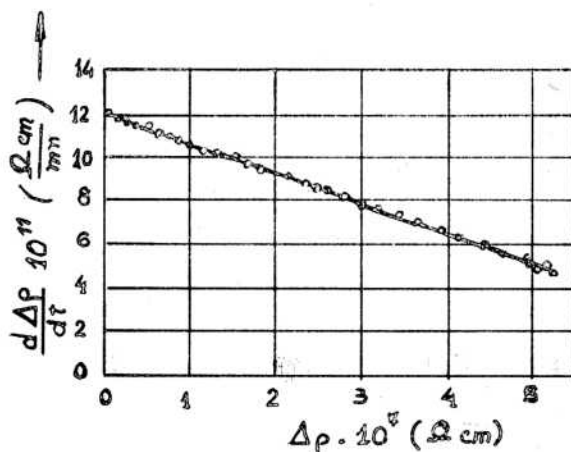


FIGURA 6 = Velocidad de aumento de la resistividad $\dot{\Delta \rho}$ ($=d \Delta \rho / dt$) en función del aumento de la resistividad $\Delta \rho$ del aluminio irradiado con neutrones rápidos a 4,5°K (23)

La velocidad de aumento de la resistividad $\frac{d\Delta \rho}{dt}$ (t, tiempo de irradiación, es proporcional a la dosis) decrece linealmente en función de $\Delta \rho$. Se obtiene por extrapolación el valor $\Delta \rho_{\infty}$ correspondiente a la saturación completa ($\frac{d\Delta \rho}{dt} = 0$): $\Delta \rho_{\infty} = 0,86 \mu \Omega \text{ cm}$, es decir tomando el valor

$$\Delta \rho_{\text{p.F.}} = 6,8 \mu \Omega \text{ cm}/\% \text{ p.F.}$$

(resistividad del uno por ciento de pares Frenkel) una concentración de saturación C'_{∞} de pares iguales a 0,13% en consecuencia a un volumen de recombinación $v_r = \frac{1}{2C'_{\infty}} v_{\text{at}}$ igual a 400 v_{at} .

Más precisamente para describir el efecto del bombardeo a altas dosis con partículas de baja energía los autores precedentes proponen la ecuación:

$$\frac{dc}{dt} = A (1 - V_{rv} \cdot C_i - V_{r1} C_v - V_f C_1) \quad (2)$$

C , C_i y C_v son las concentraciones -iguales- en pares de Frenkel, intersticiales y vacancias, C_p la concentración en pares muy próximos, V_{rv} y V_{ri} los volúmenes de recombinación correspondientes respectivamente a las vacancias y a los intersticiales. A es entonces la velocidad de creación de defectos por irradiación, V_{rv} . C_i puesto que en la condición misma de su formación, un intersticial, así como su volumen de recombinación, sufre un desplazamiento antes de alcanzar su posición estable. Finalmente el término $V_f C_p$ describe la recombinación de pares muy próximos debido a la agitación de la red producida por la irradiación, en particular por las colisiones focalizadas no eficaces, C , C_i y C_v son iguales y C_p constituye una fracción - que uno puede considerar como constante - de C , es claro que la ecuación (2) describe correctamente las variaciones de $\Delta \rho$ representadas en la figura 6. La introducción del término $V_f \cdot C_p$ conduce a los autores a deducir la evaluación del volumen de recombinación a $V_p \approx 300 V_{At}$.

Una ecuación de la misma naturaleza es la que conduce al concepto "de recubrimiento", el cual considera que por irradiación mediante neutrones rápidos los defectos son creados en zonas pseudo-esféricas pequeñas de muy alta concentración. Cuando una nueva zona es creada y cubre una parte de una zona anterior la concentración de defectos en la parte común a ambas no se superponen: la concentración en esa zona común es la misma que en las regiones no comunes de ambas zonas.

Es verdad que el aluminio parece ser el único metal que obedece una ley tan simple como $\Delta \dot{\rho} = -P \cdot \Delta \rho + Q$ (P y Q constantes positivas) para todas las dosis. En tanto que la plata (ver figura 7), el cobre,

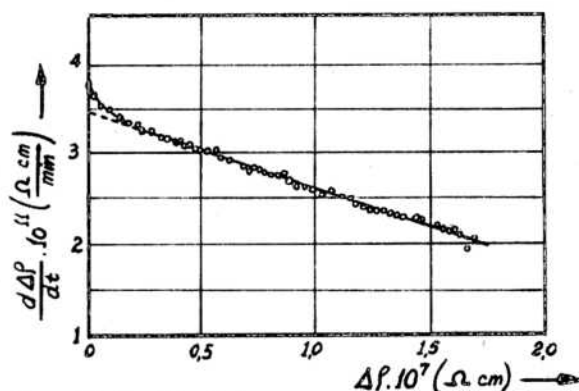


FIGURA 7 = Velocidad de aumento de la resistividad $\Delta \dot{\rho} = (d\Delta \rho / dt)$ en función del aumento de la resistividad de la plata irradiada con neutrones rápidos a 4,5°K (23)

el oro (23, 23a), el níquel, el platino, el paladio y el hierro (23a) presentan a una dosis baja una desviación sensible a esta ley lineal. Burger y al. (23) lo atribuyen al rol de colisiones focalizadas eficaces, las cuales, en efecto, terminan normalmente por la creación de uno o más intersticiales que nosotros

llamaremos intersticiales de focalización. La probabilidad que tienen tales colisiones de encontrar una vacancia, es nula al comienzo de la irradiación y crece con la dosis. La velocidad de creación de intersticiales de focalización disminuye pues a lo largo de la irradiación. A ello se atribuye la desviación positiva de $\Delta \rho$ al comenzar la irradiación con respecto a la ley lineal $\Delta \dot{\rho} = \Delta \rho$ ulteriormente seguida.

Se puede ver en las figuras 6 y 7 que el tiempo de irradiación no varía como $\Delta \rho$, la experiencia duraría mucho tiempo si se quisieran obtener los valores experimentales próximos al valor $\Delta \dot{\rho} = 0$. El uranio ofrece la posibilidad de alcanzar mucho más rápidamente la saturación. En efecto, el núcleo del isótopo 235 de este metal irradiado con neutrones lentos es fisionado dando lugar a la producción de dos iones pesados de masas atómicas más probables 137 y 96 con 67 y 95 MeV de energía respectivamente. Estos fragmentos crean mayor número de defectos que cualquier otra partícula comúnmente utilizada. Una experiencia de algunas horas es suficiente para alcanzar la saturación atómica total como en el caso de la figura 8.

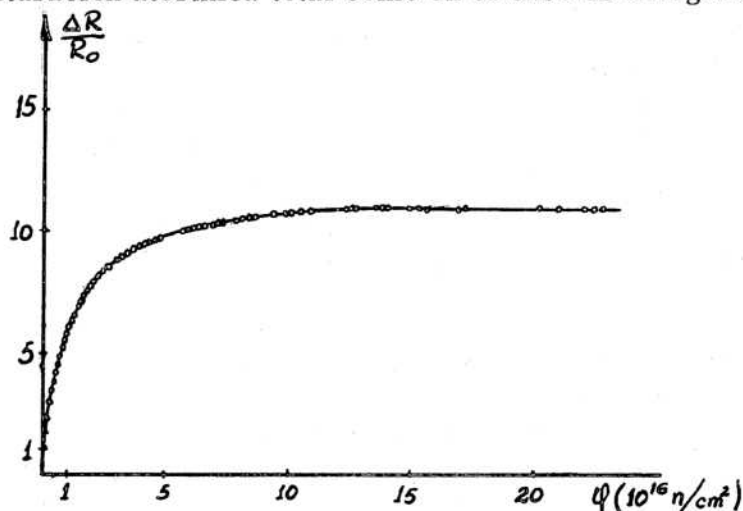


FIGURA 8 = Variación de la resistencia eléctrica del uranio irradiado con fragmentos de fisión a 4.5°K (24)
 ϕ : flujo de neutrones térmicos.

No hemos contestado a la pregunta hecha más arriba: Mediante qué mecanismo se alcanza la saturación de defectos? Hemos destacado que el modelo de volumen de recombinación alrededor de cada defecto, supuesto aislado, así como el recubrimiento de zonas ricas en defectos conducen a una misma ley de saturación $\Delta \dot{\rho} = -P \Delta \rho + Q$. Por supuesto a esta misma ley elegida conduce el modelo de displacement spike en el cual se admite que para cada evento - choque de una partícula $\propto$, de un fragmento de fisión, de un átomo primario - los defectos son creados en número constante de manera que los defectos anteriores son aniquilados en un volumen V, volumen de displacement spike de desplazamiento (proporcional al factor P).

Es normal que así ocurra dado que estos tres mecanismos se basan en la fundamental inestabilidad de las concentraciones locales de defectos

muy grandes. Una ley de saturación analíticamente simple no nos permite entonces comprobar un modelo. Es necesario destacar que los mecanismos propuestos son extremadamente simples, por ejemplo, ellos no tienen en cuenta la congregación de defectos puntuales. Cada experiencia debe, sin duda, una parte de su interpretación a cada mecanismo. A veces esto parece ser preponderante: éste será el caso en la amorfización de las aleaciones por irradiación, donde la noción de displacement spike parece dar una explicación adecuada. El caso inverso es sin duda el consistente en irradiar a dosis muy altas (saturación o próxima a la misma) un metal mediante electrones de energía moderada pues se evita entonces la creación de puntos (spikes) y de congregaciones de defectos.

Encontraremos finalmente con la irradiación de manganeso, otro mecanismo posible de pseudo-saturación, aquel donde cada defecto crece alrededor de sí mismo, en un volumen V de desorden magnético en una estructura normalmente ordenada. El manganeso es antiferromagnético a bajas temperaturas. Esta propiedad se manifiesta entre otras por una variación rápida de la resistividad en función de la temperatura en el estado ordenado. En el estado desordenado la resistividad varía poco con la temperatura. Wigley ha irradiado manganeso a 300K con protones de 4 MeV y ha observado que la resistividad ρ_0 a saturación es cercana a la resistividad del manganeso en estado ordenado (25). Es por lo tanto probable que la mayor parte de la variación de la resistividad $\Delta \rho$ es de naturaleza magnética. Cuando los dominios de desorden de volumen V cubren enteramente la muestra, se alcanza la saturación, aunque no hay ninguna razón para que la concentración de saturación C_∞ haya sido alcanzada.

Este fenómeno es también, probablemente, la causa de la saturación de la resistividad del plutonio después de aproximadamente 3000 horas de autoirradiación a Helio líquido (26-27).

Acá nuevamente el valor máximo de la resistividad debido a la autoirradiación es prácticamente igual a la resistividad máxima ρ_M del plutonio $\propto$. Para el plutonio esta concordancia entre ρ_∞ , resistividad a saturación y ρ_M constituye uno de los argumentos más sólidos a favor del orden magnético a bajas temperaturas que no ha sido demostrado por los metales ordinarios (28).

d) Experiencias de arrastre magnético: Estas experiencias, aunque poco utilizadas, entre otras ventajas, permiten conocer la orientación de los defectos de simetría no esférica. La teoría del arrastre magnético establecida por Néel (29) se basa en la existencia, en los metales ferromagnéticos, de la energía de interacción entre la imantación y todo defecto de simetría no esférica. Si en consecuencia un defecto puntual, en un metal como el hierro posee una simetría cilíndrica, esta energía tiende a crear en un dominio de Weiss, una superestructura tal que los defectos adquieren una orientación preferencial con respecto a la dirección de imantación del

dominio. A esta orientación preferencial corresponde una energía de superestructura E . Una pared de Bloch que se desplaza en la dirección x sufre entonces por efectos de esa superestructura una presión llamada de arrastre $p = - \frac{\delta E}{\delta x}$ que es nula si se trata de una pared a 180° , pero que tiene un valor no nulo si es una pared a 90° y el defecto tiene una simetría $\langle 100 \rangle$ o $\langle 110 \rangle$ en el Fe cúbico centrado (*).

Una experiencia de arrastre consiste entonces en desimantar primero una muestra que tenga defectos con la ayuda de un campo alternativo que decrezca lentamente para obtener inicialmente un estado simétrico, es decir donde los defectos de simetría cilíndrica se repartan igualmente sobre las diferentes direcciones que pueden ocupar (por ejemplo las tres direcciones $\{100\}$, $\{010\}$ y $\{001\}$ de un defecto de simetría $\langle 100 \rangle$). Después a una temperatura T se deja establecer la superestructura y se provoca en el tiempo t un desplazamiento de paredes de Bloch aplicando un campo H . La imantación de la muestra que se mide, es proporcional al desplazamiento de las paredes. Estando entonces, para un campo H dado, tanto t grande cuanto la presión de arrastre es t débil, ello permite seguir en función del tiempo t como se establece la superestructura. También se puede estudiar para un tiempo t dado, la variación de la permeabilidad μ con la temperatura. Las curvas μ - T se llaman bandas de arrastre.

Se sabe calcular la variación del campo de arrastre h en función de la inducción B para diferentes simetrías del defecto. Moser y colaboradores (30), (31), después de haber indicado Fe puro con neutrones rápidos a 77°K , obtuvieron diferentes bandas de arrastre volviendo a calentar las muestras: la primera de éstas llamada B.T. 1 se sitúa a alrededor de 1000°K . A esta temperatura, se tiene balanceo en un defecto de simetría no esférica; este balanceo permite que se establezca la superestructura. Los autores atribuyen esta banda al intersticial y comparan entonces las curvas experimentales $h(B)$ con las curvas teóricas establecidas para las direcciones de defectos $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ y $\langle 110 \rangle$. La curva experimental se compara mejor con la curva relativa $\langle 100 \rangle$. Aparece entonces que el intersticial, en el Fe presenta la simetría $\langle 100 \rangle$ (ver figura 9) y no la $\langle 110 \rangle$ prevista antes.

Por otra parte, la presión de arrastre así como la amplitud de arrastre, es proporcional a la concentración de defectos. Moser trazó así las curvas de creación de defectos en función de la dosis, en el hierro, y observó para un flujo integrado de neutrones de $3.10^{18} \text{ cm}^{-2}$ una tendencia neta a la saturación de esas curvas (31). -

(*) No hay presión de arrastre para los defectos de simetría esférica como las vacancias a las que, en consecuencia, no se las puede estudiar por este método.

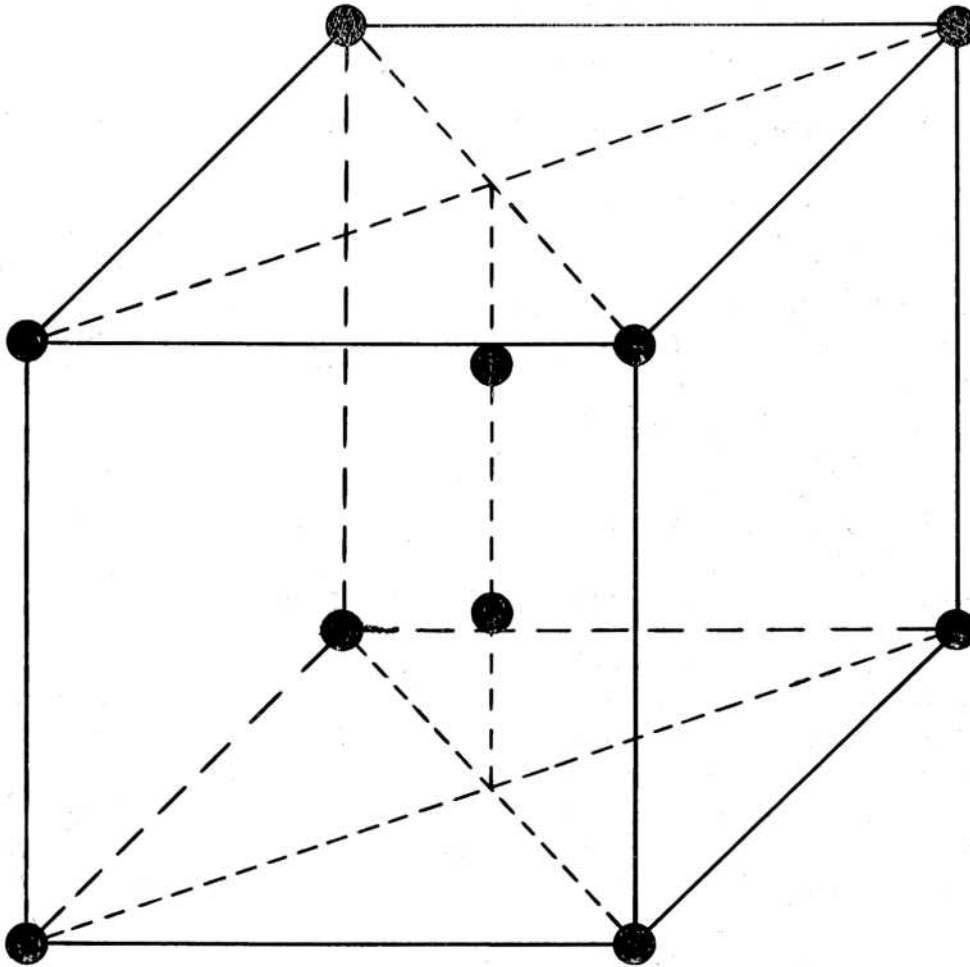


Figura 9

Simetría $\{001\}$ sugerida para el intersticial
desviado por las experiencias de arrastre
magnético sobre el Fe α .

2. MIGRACION DE DEFECTOS CREADOS POR IRRADIACION

Después de haber irradiado un metal a bajas temperaturas, es suficiente calentarlo a temperaturas sucesivamente crecientes para poder observar la migración térmica de los defectos creados. Desgraciadamente, debido a la coexistencia de varios tipos de defectos (como mínimo la vacancia y el intersticial) esta migración se efectúa en varias etapas, y un gran número de experiencias sobre este tema permanecen aún mal entendidas. Se puede observar bien el movimiento de los defectos, ya en su acto elemental, el balanceo, ya después de un cierto número de saltos por recombinación entre defectos, pero aún no podemos atribuir con certeza tal etapa a tal defecto, excepto en ciertos casos particulares.

a) Balanceo: Por su mismo principio, las mediciones de arrastre magnético, fundadas en el establecimiento de una superestructura de defectos cilíndricos, permite pues "ver" el balanceo de esos defectos de una posición dada a otra cristalográficamente equivalente (por ejemplo de $\langle 100 \rangle$ a $\langle 010 \rangle$) pero de energía magnética muy ligeramente diferente. Se puede determinar la energía de salto E_b por medio de mediciones de arrastre a diferentes temperaturas en el interior de una misma banda de amortiguamiento. Cabe distinguir aquí: balanceo-rotación, después del cual el centro de gravedad del intersticial no cambia, y balanceo-migración después del cual el defecto ha migrado (ver figura 9).

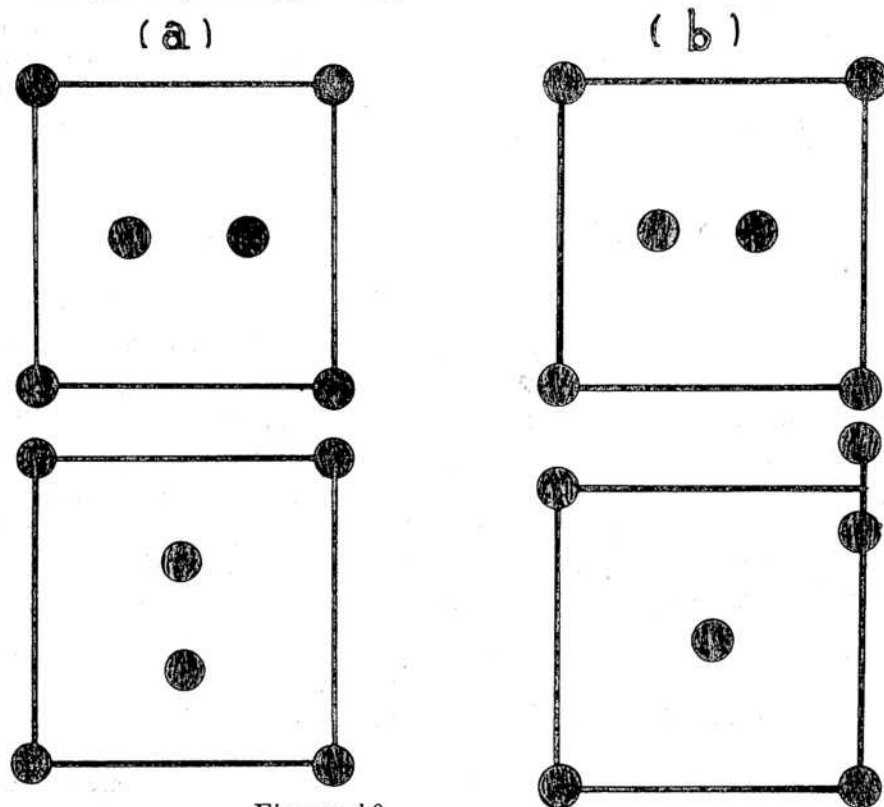


Figura 10

- a) balanceo-rotación
- b) balanceo-migración de un intersticial disociado, en el plano $\langle 100 \rangle$ de un metal cúbico centrado en las caras.

Moser, ha medido así, en Fe irradiado, la constante de tiempo Θ de reorientación a diferentes temperaturas vecinas a 100°K , y mostrado que se tiene :

$$\Theta = \Theta_{\infty} \exp (E_b / kT)$$

con

$$\Theta_{\infty} = 10^{-10} \text{ seg} ; E_b = 0.25 \text{ eV} \quad (34)$$

Este valor de la energía E_b de balanceo es menor o igual al de la Energía de Migración : si la migración se hace por algún otro mecanismo diferente al de balanceo (mecanismo de "crowdion" por ejemplo) con energía inferior a E_b , los intersticiales ya habrían migrado y desaparecido a temperaturas inferiores a 100°K (figura 10).

Mediante medidas análogas, Segger y colaboradores (32) han estudiado al níquel luego de ser irradiado con neutrones rápidos a temperatura ambiente o luego de deformar, y han observado en ambos casos un balanceo caracterizado por :

$$\Theta_{\infty} = 2.6 \times 10^{-12} \text{ seg y } E_b = 0.81 \text{ eV.}$$

Dado que este fenómeno no ha podido ser observado en níquel templado conteniendo sin duda divacancias - los autores lo atribuyen al balanceo del intersticial disociado $\langle 100 \rangle$ en los metales centrados en las caras. Al ser la energía de migración por lo menos igual a E_b , y por lo tanto bien superior a los valores previstos en el Capítulo III, nos encontramos aquí por primera vez con un elemento de la controversia referente a la migración de intersticiales en los metales, y que va a constituir gran parte del parágrafo siguiente.

b) Migración de defectos de irradiación ;

Las experiencias de arrastre magnético permiten distinguir entre balanceo - rotación y migración. El primero, conserva al defecto, mientras que el segundo entraña su eliminación o la pérdida de su individualidad. En mediciones de arrastre magnético, se estudia la

migración observando la disminución de la amplitud de una banda de arrastre, por recocidos isocronos o isotermos de la muestra. De esta manera (31) la banda BT.1 del hierro irradiado a 770K desaparece por recocido entre 100 y 1400K. La energía de activación de esta desaparición varía entre 0.20 y 0.27 eV, y corresponde a la energía de migración del defecto responsable de BT.1, que puede verse que es del mismo orden de magnitud que la energía de balanceo. El mecanismo de balanceo es pues, para los intersticiales en hierro, idéntico al mecanismo de migración: el balanceo se realiza de un sitio dado al vecino.

El caso del níquel resulta diferente ya que Seeger y colaboradores (32) obtienen para la energía de migración del defecto observado luego de irradiación neutrónica, $E_M = 1.02$ eV, energía superior en 0.2 eV a la energía de balanceo.

El balanceo del intersticial disociado sería entonces, una rotación pura de $\frac{\pi}{2}$ sobre un sitio dado, y la migración consistiría en una rotación más una translación (Ver Capítulo III). Conviene remarcar aquí que otros defectos que no fuera el intersticial simple podrían dar lugar al fenómeno precedente.

La mayoría de las experiencias de migración han sido hechas con ayuda de la resistividad eléctrica. Al irradiar a un metal a baja temperatura (4.2°K), la resistividad aumenta de ρ_0 a $\rho_0 + \Delta\rho$. Luego de la irradiación, se efectúan recocidos isocronos, midiendo cada vez la resistividad a la temperatura de irradiación. El aumento de resistividad $\Delta\rho$ disminuye hasta hacerse nulo una vez que todos los defectos creados por la irradiación se han eliminado térmicamente. Esta disminución de $\Delta\rho$ se efectúa generalmente en cinco etapas, que son los dominios de temperatura donde $\Delta\rho$ varía fuertemente. Para el caso del cobre, los dominios de temperatura correspondientes a las cinco etapas son los siguientes:

etapa I	14 - 65°K
etapa II	80 - 250°K
etapa III	250 - 350°K
etapa IV	350 - 475°K
etapa V	>475 - °K

Sólo la etapa V no plantea gran dificultad de interpretación. Se lo atribuye a la evaporación de lazos de dislocación formados por la migración de defectos puntuales en el curso de las etapas precedentes.

Por el contrario, lejos se está de contar con unanimidad en cuanto a la interpretación de las otras etapas. La controversia principal se centra en el valor que se debe atribuir a la energía de migración de intersticiales en un metal como el cobre: del orden de 9.1 eV para unos, o del orden

de 0.8 eV para otros. Veamos ahora, sucintamente presentadas, las argumentaciones alrededor de las cuales se ordenan las dos interpretaciones extremas de las curvas de recocido.

La primera, propuesta por Corbett, Smith y Walker (33), consiste principalmente en atribuir la etapa I en conjunto, a la migración (con una energía de activación de ≈ 0.1 eV) de intersticiales, sea que se recombinen con vacancias, sea que se asocien con impurezas, o que formen di-intersticiales. La etapa III, la más marcada luego de la etapa I, corresponde a la migración de las vacancias que subsisten luego de la etapa I (34).

La segunda, esbozada inicialmente por Meechan, Sosin y Brinkman (35) y luego precisada por Seeger (36) se basa en la idea que las vacancias migran en la etapa IV y que la etapa III es debida a la migración de intersticiales (con una energía de activación de ≈ 0.8 eV). La etapa I se atribuye así a la recombinación de pares de Frenkel próximos y a la migración de "crowdions".

Como se vé, estos dos modelos se distinguen por sobre todo, respecto al intervalo de temperaturas donde suponen migran los intersticiales libres, centrados o disociados : 14-650K para el primero, 250-320°K para el segundo. En lo que sigue, llamaremos nosotros al primero, modelo de baja temperatura (B.T.) y al segundo modelo de mediana temperatura (M.T.). Veamos ahora los hechos experimentales sobre los que se apoyan ambas teorías :

La etapa I ha sido estudiada en detalle por Corbett y colaboradores (33) en cobre irradiado con electrones de 1.5 MeV-. Estos autores han mostrado que la etapa I se descompone en varias sub-etapas ; ellos observaron cinco, a la que llaman $I_A \dots I_E \dots$ (ver figura 11).

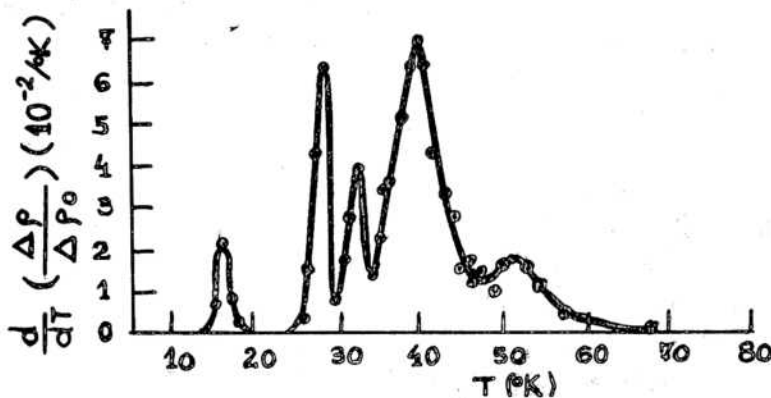


Figura 11

Derivada respecto a la temperatura de la curva de recocido isocrono $\frac{\Delta \rho(T)}{\Delta \rho_0}$ de la resistividad de una muestra de cobre irradiada con electrones a 4.2K (33).
Concentración inicial de pares de Frenkel 1.10^{-6}
Duración de cada recocido : 10 minutos.

El número de sub-etapas detectadas más recientemente luego de irradiaciones con electrones (37, 38) o con neutrones (39) es en la realidad superior a cinco pero la interpretación propuesta por Corbett y colaboradores (33, 40) no requiere una modificación profunda.

La cinética de las sub-etapas I_A , I_B e I_C es de primer orden (*). Las energías de activación son pequeñas : respectivamente 0.05, 0.08 y 0.09 eV. Estos resultados conducen a interpretar estas sub-etapas como debidas a la recombinación de pares de Frenkel próximos, esto es el movimiento hacia su vacancia asociada, de intersticiales apenas más allá del volumen de recombinación asociado a una vacancia. Son entonces los sitios menos y menos próximos a la vacancia, que de I_A a I_C dan lugar a energías crecientes. Koehler y Leibfried han estudiado algunos de estos sitios y han mostrado que el intersticial disociado debería dar lugar a un número mucho mayor de energías de recombinación distintas. (alrededor de 23) que el intersticial centrado (alrededor de 6).

Esta interpretación, común a los modelos B.T. y M.T. es aceptada universalmente. Las sub-etapas I_D e I_E están caracterizadas por un orden cercano a 2 y una energía de activación común (0.12 eV), como lo muestra la figura 12, lo que sugiere fuertemente que ambas son relativas al mismo fenómeno. Corbett y colaboradores (33) suponen que se trata de la migración del intersticial libre : más allá de una cierta distancia entre la vacancia y el intersticial, la energía de migración se hace constante e igual a 0.12 eV. Sin embargo, en el curso de esta migración la probabilidad de un intersticial de encontrar su vacancia asociada es fuerte. Si tal es el caso, decimos que tenemos migración con correlación. La sub-etapa I_D correspondería así a una aniquilación intersticial vacancia por ese mecanismo, mientras que I_E sería debido a la migración de intersticiales hacia sumideros lejanos necesiándose en este último caso un número de saltos mucho mayor que para la migración con correlación. Las experiencias de "dopado" por irradiación que consisten en pre-irradiar a 77°K, esto es, en introducir vacancias previamente a la irradiación a 4.2°K, avalan esta afirmación : en efecto, el dopado no modifica I_A , I_B e I_C , mientras que acelera I_D e I_E .

(*) Esto se pone en evidencia, ya al estudiar las isothermas $\Delta P(t)$, ya al observar que la temperatura de la sub-etapa no cambia con la dosis, o sea con concentraciones de defectos diferentes.

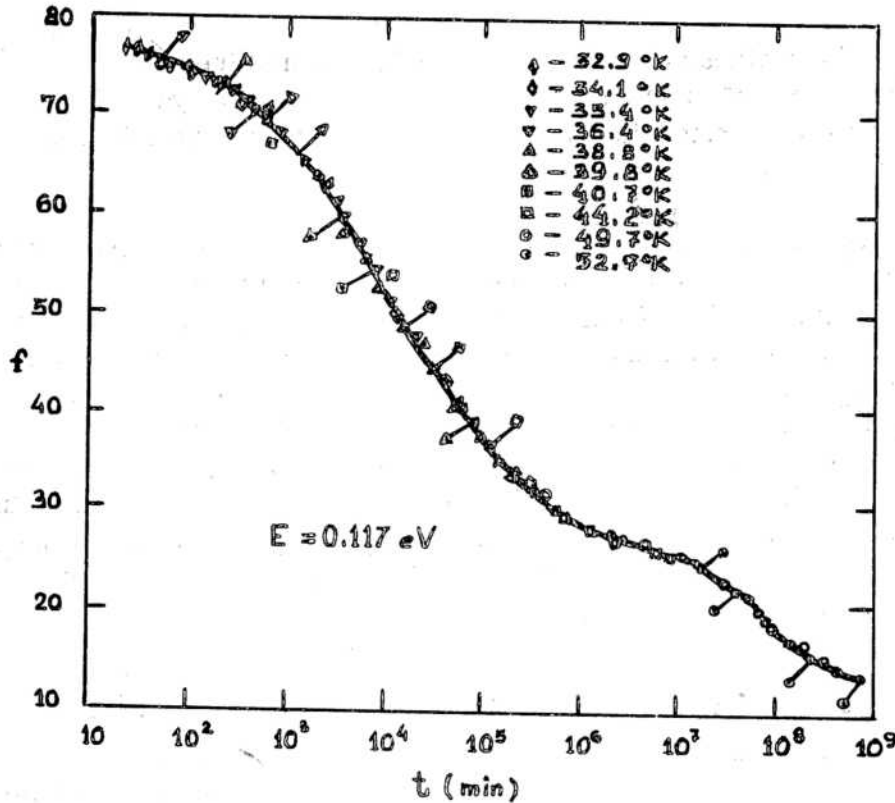


Figura 12

Resultado de recocidos isoterms o isocromos de cobre irradiado con electrones de 1.4 MeV reportado en tiempo equivalente, para las sub-etapas I_D e I_E (40).

f = fracción (en %) de la resistividad inducida por irradiación y no eliminada.

E = tiempo equivalente definido por un factor de Boltzmann con $E = 0.117$ eV.

En el modelo M.T., la irradiación crea dos tipos de intersticiales: el intersticial disociado y el crowdion (*). La energía de formación de este último es netamente superior a la del primero (3.7 eV contra 2.8 eV (42), pero su energía de migración es inferior. Es entonces el crowdion que, migrando con (I_D) o sin (I_E) correlación es responsable de dichas dos sub-etapas. Su migración se termina, sea por aniquilación con una vacancia sea por su transformación o conversión - en un intersticial disociado.

(*) Para una descripción más detallada de este modelo, ver por ejemplo : D.Schumacher : The recovery of electron and neutron irradiated f.c.c. metals" 10^o Coloquio de Metalurgia, Saclay.

Subsiste aquí una dificultad : un crowdion formado sobre una dirección $\langle 110 \rangle$ se desplaza en efecto a lo largo de la misma y se muestra (43) que la aniquilación de tales crowdions, móviles sobre un eje, con vacancias fijas, debería obedecer una cinética de tercer orden, lo que parece que no se halla verificado experimentalmente.

La etapa II, casi inexistente si el metal es muy puro, es tanto más acentuada cuanto más impuro es el metal. Hace ya tiempo que hemos estimado que corresponde a la liberación de intersticiales (o de crowdions) atrapados por impurezas en el curso de la etapa I. Sosin, ha irradiado cobre con electrones y mostrado que concentraciones muy pequeñas de impurezas (plata, berilio, oro) reducían considerablemente la importancia relativa de la etapa I en beneficio de la etapa II. Esta presenta igualmente una estructura fina, con tres sub-etapas (II_A cerca de $65^\circ K$, II_B cerca de $120^\circ K$, II_C cerca de $180^\circ K$ en el caso de Cu-Au) asociadas a la liberación de intersticiales ligados diferentemente a los átomos de impurezas (44).

Sin embargo, un estudio reciente de la etapa II en Aluminio irradiado con neutrones a $4.6^\circ K$ (C, realizado por Burger y colaboradores (45) en tanto que establece igualmente la existencia de tres sub-etapas en dicho metal (a 71, 83 y $105-110^\circ K$) conduce al resultado importante que la temperatura de las dos primeras de esas sub-etapas es independiente de la dosis, para variaciones de ésta por un factor 100. Esta experiencia sugiere fuertemente que la etapa II no es debida a la migración y aniquilación de un defecto, sino más bien a un reordenamiento local, sobre el cual no es posible dar aún una descripción precisa pues no se cuenta con determinaciones precisas de la cinética. En forma más general, esta experiencia muestra que la temperatura de una etapa, considerada globalmente, puede depender de la dosis - éste es justamente el caso de la etapa II - pero ello no implica que sus sub-etapas deban depender. Es suficiente para que así sea, que la importancia relativa de las sub-etapas varíe con la dosis.

La etapa III presenta una energía de activación bien definida y una cinética de orden 2 (44, 46). Corbett y colaboradores, en el modelo B.T. la atribuyen al movimiento de las vacancias que subsisten después de la etapa I. Aquí reside el punto débil de este modelo, ya que la energía de activación de la etapa III, E_M^{III} tiene un valor inferior al de la energía de migración de vacancias, E_M^V medida luego de experiencias de templado. (Para el cobre, E_M^{III} : 0.65 eV y E_M^V : 1.08 eV (36).

La energía de migración de los di-intersticiales no se conoce lo suficiente como para poder evaluar el rol que podría jugar este defecto en la etapa III. En cuanto a la divacancia, para lo cual el orden de magnitud de la energía E_M^{III} sería el correcto, no es razonable pensar que se puedan formar más que en concentraciones ínfimas, luego de haber irradiado con electrones de baja energía.

La observación de que la energía E_M^{IV} correspondiente a la

etapa IV, es comparable a E_M^V , provee los cimientos para el modelo M.T.: en este modelo, se propone que durante la etapa III se mueve el intersticial disociado, y durante la etapa IV la vacancia. Este modelo se apoya también en los cálculos de Seeger y colaboradores (42) quienes obtienen un valor de 0.5 eV para la energía de migración del intersticial disociado en cobre. Ante este profundo desacuerdo entre estos dos modelos presentados, es necesario recurrir a mediciones de otras propiedades físicas además de la resistividad eléctrica. Veremos a continuación que, hasta el presente, ellas no han permitido aún resolver esta dificultad.

Antes de abandonar el dominio de las mediciones de resistividad señalemos que esta técnica ha sido usada para estudiar varios otros metales aparte del cobre. Así, Lucasson y Walker han irradiado con electrones, hierro, níquel, plata, molibdeno, aluminio y oro (47). Salvo para el último metal nombrado, las etapas I de estos diferentes metales presentan entre sí una gran similitud. Para el oro, la etapa I es menos marcada si bien presenta una estructura fina muy compleja (48); la etapa III, como en el caso del cobre presenta una cinética de orden 2 (49). En el aluminio, la etapa II resulta muy sensible a la presencia de impurezas (50). El niobio ha sido estudiado por Pichon y colaboradores (51) y el hierro, puro o dopado, por C. Minier-Cassayre (52).

Asimismo, la recuperación ha sido estudiada luego de irradiaciones con otras partículas energéticas. En una de las primeras investigaciones, Blewitt y colaboradores, estudiaron la etapa I, y la influencia de impurezas en las etapas I y II, luego de irradiaciones con neutrones (53). Las irradiaciones con neutrones han sido utilizadas para estudiar la estructura fina de la etapa I de numerosos metales (39, 53), la cinética de orden 2 de la etapa III en el aluminio de alta pureza (54), la etapa II en el mismo (44), la influencia de impurezas sobre la etapa III (55), la recuperación de tungsteno (56, 57), de molibdeno (58, 59)... Se han utilizado igualmente, irradiaciones con deuterones (60), fragmentos de fisión (21)...

Entre las otras mediciones, aparte de la resistividad eléctrica, señalemos antes que nada las mediciones de calor liberado. Granato y Nilan han bombardeado cobre con deuterones y medido por microcalorimetría diferencial, el calor liberado durante el transcurso de la etapa I por la recombinación de pares de Frenkel (61). Se encuentran (ver figura 13) las cinco etapas que detecta la resistividad, estando la quinta de ellas poco marcada.

Adoptando para la energía de creación de un par $E_F^P = 5$ eV, y asociando sus resultados a los resultados de resistividad obtenidos por Magnuson y colaboradores (60) estos autores obtienen $\Delta \rho = 2.6 \mu \Omega \cdot cm$ como el valor de la contribución a la resistividad de una concentración de pares de Frenkel de 10^{-2} . Más aún, al asociar sus datos con las mediciones de variación de parámetro cristalino (95) y de elongación (94) por irradiación, obtienen para la variación de volumen asociado a la presencia de un par de Frenkel en cobre, el valor $v_F^P \approx 1.2$ Vol. atómico.

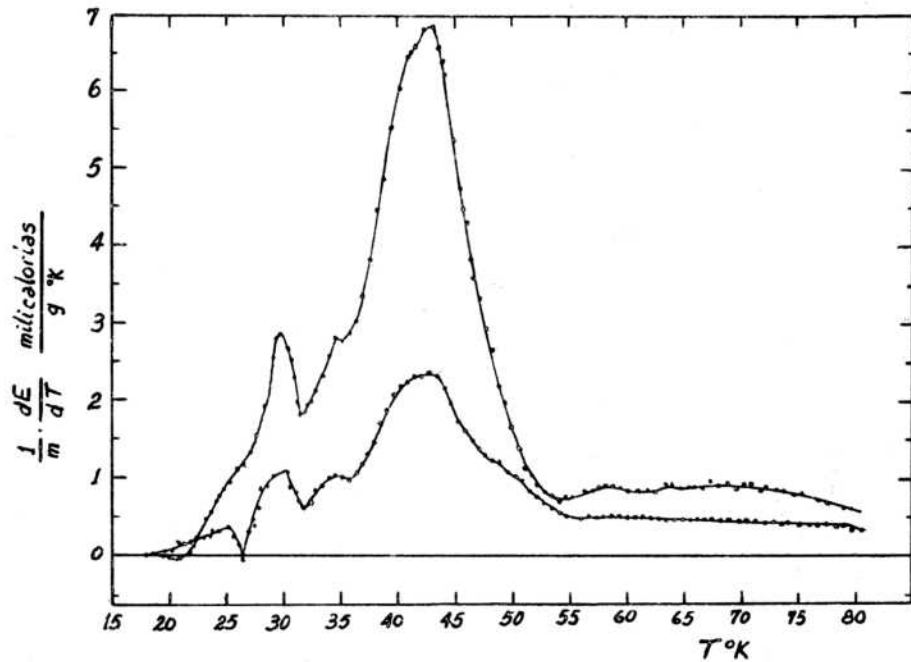


Figura 13

Liberación de energía almacenada por unidad de masa en cobre irradiado con deuterones a una temperatura inferior a 10°K (61)

Blewitt y colaboradores han también medido el calor liberado en el curso de la etapa I, en cobre dopado con Boro 10, irradiado con neutrones (63). No hay ya liberación de calor más allá de 47°K , esto es para la etapa I_E . Si I_E es debida a la migración libre de intersticiales, este resultado establece que esta migración no se termina por recombinación con vacancias, ya que ello daría lugar a una liberación de energía. Debemos hacer notar que la relación entre el calor liberado respecto a la disminución de resistividad, $4.1 \text{ cal/g}/\mu\Omega \text{ cm.}$, es inferior al que se observa luego de irradiación con deuterones ($7.1 \text{ cal/g}/\mu\Omega \text{ cm.}$ (61, 64).

Boujour y colaboradores (64-a) midieron el calor liberado durante el recocido de aluminio irradiado con neutrones a 78°K , observando que un defecto se eliminó en el entorno de 210°K con una energía de activación de $0.52 \pm 0.06 \text{ eV}$.

Isebeck y colaboradores, muestran que en aluminio irradiado con neutrones a 4.5°K la energía almacenada, la resistividad y el volumen varían de manera idéntica (62).

La variación de longitud $\frac{\Delta L}{L}$ y del parámetro $\frac{\Delta a}{a}$

inducidas por irradiación, decrecen durante el recocido, sensiblemente de la misma manera que la resistividad, en el cobre (11, 12, 65), en el aluminio (65, 65a) y en el plutonio (14).

Las medidas precedentes no permiten decidir entre los modelos B. T. y M. T. Se han entonces ensayado poner en evidencia más directamente, la migración de intersticiales en los metales. Esto es en principio posible porque se conoce cómo introducir y observar - aglomerados de tipo - vacancia en un metal. Es el caso de anillos de dislocación tipo vacancia en el aluminio o de los tetrahedros de fallas de apilamiento en oro, obtenidos luego de haber templado vacancias y recocer el metal. Si uno irradia a tal metal, se puede esperar medir la temperatura a la cual los intersticiales creados migran hacia esos conglomerados y los aniquilan. La experiencia fué intentada en oro conteniendo tetrahedros, bombardeado con iones de Argón de 200 eV y observados por microscopía electrónica (66). El tamaño de los tetrahedros no disminuye hasta que la temperatura no alcanza a ser próxima a 0°C . Esta experiencia parece mostrar que al menos en el oro, los intersticiales migran con una energía de activación del orden de 0,75 eV conforme al modelo M. T. Sin embargo, su interpretación no es aún clara : sería necesario realizarla en una muestra masiva. Diferentes laboratorios, en condiciones diferentes, intentan actualmente (1966) reproducirla teniendo en cuenta su importancia.

En forma general, sólo el uso simultáneo de varias técnicas experimentales distintas permite comprender cuándo y cómo migra cada defecto. Es así que Peretto y colaboradores, han estudiado por arrastre magnético y resistividad eléctrica, níquel irradiado con electrones a 20°K (67). Los resultados obtenidos por estos dos métodos y notablemente la ausencia de frenamiento ... durante la etapa I_D conducen a una interpretación (del tipo B. T.) que toma en cuenta los efectos de focalización : intersticiales disociados migrando libremente en la etapa I_E ; intersticiales formados por focalización $\langle 100 \rangle$ - por lo tanto relativamente próximos a su vacancia asociada - reuniéndose sin balanceo con esta vacancia en la etapa I_D . Más aún para la interpretación de las etapas I_B y I_C los autores definen como "grupo" al conjunto de sitios situados a la misma distancia de una vacancia, estando los "sub-grupos" constituidos, dentro de ese "grupo", de sitios equivalentes que entre ellos sean primeros vecinos. Esto los conduce a asociar la etapa I_B a la aniquilación de intersticiales disociados del grupo 3 (en posición de 3° vecinos de una vacancia) y la etapa I_C , a la aniquilación de los intersticiales del grupo 5.

3. FENOMENOS LIGADOS A LOS DEFECTOS PUNTUALES DE IRRADIACION

a) Difusión Acelerada :

Se puede esperar que las vacancias producidas por irradiación conjuntamente y de igual modo que las vacancias de origen térmico, contribuyan a la difusión en metales y aleaciones. Dienes y Damask han estudiado este fenómeno, suponiendo que las vacancias, creadas a velocidad constante se eliminan en sumideros fijos (68).

Estos autores muestran que entonces, el coeficiente de difusión bajo irradiación D' se escribe :

$$D' = D + \frac{K}{\alpha} \quad (3)$$

donde D es el coeficiente de difusión térmico, K la velocidad de creación de vacancias por irradiación y α la concentración de sumideros. Esta ecuación expresa que a alta temperatura D' no difiere prácticamente de D , mientras que a más bajas temperaturas - pero a condición que las vacancias migren - D' se hace constante.

La expresión (3) ha sido muy bien verificada experimentalmente mediante experiencias de irradiación de latones templados (69). Estas aleaciones Cu-Zn presentan en equilibrio orden de corto alcance, por el cual cada átomo de Zn está rodeado en forma preferencial por átomos de cobre.

Un latón templado, se encuentra en estado desordenado. El retorno de la aleación a su estado ordenado puede seguirse por mediciones de resistividad, la que decrece con el ordenamiento. Al irradiar se observa una rápida disminución de la resistividad, lo que indica que la contribución sobre ella de los defectos creados es en valor absoluto inferior a la contribución del ordenamiento. Así, luego de haber irradiado durante 6 días con electrones a 50°C se obtiene un valor mínimo de resistividad que corresponde a un ordenamiento total; por extrapolación, se puede estimar en 30.000 años el tiempo que sería necesario, para alcanzar dicho equilibrio, térmicamente, a 50°C.

Wechsler y Kernohan han atribuido este efecto a las vacancias, luego de haber observado, por mediciones de resistividad, el ordenamiento local de una aleación Cu-Al inicialmente templada e irradiada a 40°C, temperatura a la cual el efecto es fuerte, y a -120°C, a la cual el efecto es nulo, (70). En este último caso, al llevar a la aleación irradiada a temperaturas entre -50 y +100°C, dominio en el cual las vacancias son móviles en cobre, el orden aparece.

Sin embargo, de una experiencia análoga, Schule ha deducido que son los intersticiales y no las vacancias, los responsables de la difusión acelerada (71). Sobre la misma aleación, este autor ha estudiado el ordenamiento por recocido, previo templado e irradiación, y el ordenamiento por recocido luego del templado. En el primer caso se produce, como ya hemos

dicho, entre -50 y $+100^{\circ}\text{C}$, mientras que en el segundo, tiene lugar entre $+20$ y 100°C . Si se admite que en esta última intervienen solamente las vacancias de templado, la primera puede ser atribuida a otro defecto.

Para el autor, éste no puede ser otro que el intersticial disociado. Este desplazamiento de temperaturas podría también ser explicado atribuyéndolo a la divacancias, y vemos aquí también entonces la continuación de las diferencias de interpretación encontradas en el párrafo precedente.

Se observa también una aceleración por irradiación, de la precipitación en las aleaciones con endurecimiento estructural. Es el caso de las aleaciones Al-Zn, irradiadas con neutrones a 4.5°K y posteriormente recocidas (72).

Un caso espectacular de difusión acelerada por irradiación es aquel donde es posible crear una fase estable a baja temperatura, pero que no es posible obtener directamente debido a los tiempos prohibitivos para su obtención en equilibrio térmico. Tal es el caso de la aleación Fe Ni (50%) en la cual Paulevé y colaboradores (73) han podido crear, por irradiación con neutrones a temperaturas inferiores a 330°C , con campo magnético, una estructura que los rayos X revelan como ordenada. La temperatura de transición orden-desorden (aproximadamente 330°C) es suficientemente baja para que resulte imposible observar la fase ordenada si no se dispone de vacancias producidas por irradiación. Esta temperatura varía de 250 - 370°C a medida que la concentración en níquel pasa de 37 a 70% (74).

Se debe distinguir este fenómeno de ordenamiento por difusión acelerada, del de desordenamiento por irradiación. La irradiación de una aleación inicialmente ordenada conduce generalmente de establecimiento de desorden, pero este fenómeno no es directamente debido a defectos puntuales. Existen dos mecanismos que parecen juzgar un rol importante: las colisiones focalizadas que pueden desplazar globalmente a una fila de átomos por una distancia interatómica, colocando al segmento en posición desordenada, y los fenómenos de picos (spikes) en particular el pico de desplazamiento, que mezcla los átomos en un cierto volumen. Se ha observado por ejemplo, a través de mediciones de inducción magnética, el desordenamiento de la aleación Ni_3Mn irradiado con neutrones (75), o a través de difracción de rayos X, el desordenamiento de la aleación U_2Mo irradiada con fragmentos de fisión (76).

La fase final del desordenamiento, es la amortización, detectada por la desaparición de líneas de difracción X. Se la ha observado en la fase U_6Fe de la aleación $\text{U}_6\text{Fe} + \text{U}\alpha$, irradiada con fragmentos de fisión (77). Si se admite que esta amortización es debida a una superposición, en la muestra, de picos de desplazamiento, se deduce que el volumen de cada pico asociado a una fisión, es de aproximadamente $2 \times 10^{-16}\text{cm}^3$.

b) Endurecimiento :

Las propiedades mecánicas de los metales y aleaciones son profundamente afectadas por la irradiación. La gran magnitud de los efectos observados y también la extrema importancia técnica del fenómeno, explica por qué el endurecimiento por irradiación fué estudiado desde el comienzo mismo de los estudios sobre el efecto de la radiación.

La presencia de defectos puntuales aislados modifica las constantes elásticas de los metales. No parece, sin embargo, que se haya podido medir las variaciones en constantes elásticas debidas a la presencia de defectos puntuales aislados, luego de irradiación a muy baja temperatura.

En contraste, son numerosas las experiencias de anclado de las dislocaciones por los defectos puntuales. Nosotros hemos ya hablado de la existencia de una energía de interacción entre vacancias y dislocaciones. Los intersticiales, también inter-actúan con las dislocaciones, principalmente con los de borde, alojándose en la región que se halla tensionada. Al situarse los defectos puntuales a lo largo de la dislocación, la misma vé su movilidad muy disminuída, ya que debe separarse de los defectos antes de progresar en su movimiento. Se dice entonces que la dislocación se halla anclada.

Las mediciones de fricción interna ponen en evidencia la vibración de segmentos de dislocación entre dos puntos de anclaje vecinos. Por lo tanto, ellas deben ser sensibles a la presencia de defectos puntuales a lo largo de la dislocación. Numerosas mediciones han mostrado que efectivamente la fricción interna decrece fuertemente por irradiación. Así, Thompson y Holmes (33) midieron la atenuación a una frecuencia de 10 kc. en cristales de cobre irradiados con neutrones rápidos a temperatura ambiente, observando que el decremento logarítmico Δ decrecía de 4×10^{-3} (en el metal no irradiado) a 4×10^{-4} . El efecto se completaba para una dosis relativamente débil, de aproximadamente 4×10^{12} m/cm². Una disminución tan brutal de Δ confiere al metal propiedades cercanas a las de un metal sin dislocaciones. Es por este fenómeno de anclado de las dislocaciones, que el plomo irradiado por algunos minutos en un flujo aproximado de 10^{12} m/cm² seg-, presenta propiedades sonoras comparables a las del bronce.

En el curso de las irradiaciones precedentes, a temperatura ambiente, los defectos puntuales creados migran en la red cristalina antes de alcanzar la dislocación. El anclado, se produce igualmente a temperaturas de irradiación a la cual no migra ningún defecto.

Así, las medidas de fricción interna realizadas en cobre irradiado con neutrones rápidos a 20°K, muestran que hay también anclaje de las dislocaciones (78).

La velocidad de anclaje, es más de 10^4 veces más débil que la

correspondiente a irradiaciones a temperatura ambiente. Sólo los defectos creados en la proximidad inmediata de las dislocaciones, juegan un rol en el anclaje. Este, crece fuertemente al calentar cobre irradiado a 10°K . El efecto es sensible a partir de 35°K , lo que concuerda bien con la idea de un defecto puntual móvil durante las sub-etapas I_E y I_D . Se obtiene un resultado análogo en el cobre irradiado con electrones a aproximadamente 4.2°K (79).

Destaquemos que el endurecimiento por irradiación se manifiesta igualmente sobre las curvas de tracción. Blewitt y colaboradores (80, 80a) han estudiado el endurecimiento de monocristales de cobre irradiado con neutrones. La mayor parte de las irradiaciones, han tenido lugar a temperatura ambiente, lo mismo que la determinación de las curvas de tracción. Estas últimas muestran un aumento en el límite elástico σ' que crece con el flujo integrado de neutrones y se elimina por recocidos entre $300 - 400^{\circ}\text{C}$. Los metales cúbicos centrados, en el cuerpo, como el hierro, α , endurecen igualmente por irradiación (81).

Para explicar este aumento de límite elástico, se han propuesto dos mecanismos extremos. Si los defectos, migran y anclan a las dislocaciones, se dice que se tiene un endurecimiento de las fuentes. Al comienzo de un ensayo de tracción, las dislocaciones se liberan de ese anclaje, deslizando luego en forma casi libre. Si los defectos (por ejemplo, intersticiales disociados o pequeños lazos de dislocación (81-a) se hallan uniformemente repartidos en el retículo y las dislocaciones los encuentran sobre su plano de deslizamiento, actuando como barreras, se dice que se tiene un endurecimiento por fricción. En este último caso, si λ es la distancia media entre defectos sobre el plano de deslizamiento, se tiene que

$$\lambda \sim \frac{1}{\phi^{1/2}}$$

y como $\Delta\sigma'$ es proporcional a λ^{-1}

$$\Delta\sigma' \sim \phi^{1/2}$$

Esta variación de $\Delta\sigma'$, proporcional a $\phi^{1/2}$, ha sido propuesta inicialmente por Seeger (82), para quien los defectos responsables del endurecimiento por fricción son las zonas con predominio de vacancias (ver página 182). Dichas zonas, sin duda, no desaparecen sino por autodifusión, lo que explicaría la gran estabilidad térmica del endurecimiento por irradiación. La ley en " $\phi^{1/2}$ " ha sido efectivamente observada, en dosis débiles, por Diehl, y colaboradores en cobre (83). Sin embargo, otros resultados experimentales recopilados por Thompson y Paré (83-a) muestran que sobre un amplio dominio de dosis (de 2×10^{11} a 5×10^{18} neutrones cm^{-2}), es más bien una ley $\phi^{1/3}$ la que se verifica. Esta ley experimental, que

parece poco compatible con el endurecimiento por fricción no tiene por el momento una justificación teórica sólida.

Notemos finalmente que para dosis suficientemente elevadas, los defectos puntuales se reagrupan por migración en lazos de dislocaciones de tipo "vacancias" o "intersticial", visibles por microscopía electrónica aunque muy pequeños para ser resueltos, y que contribuyen al endurecimiento por fricción. Una técnica elegante, para poner a dichos lazos en evidencia consiste en bombardear una muestra con iones en el microscopio mismo (84).

c) Hinchazón (Swelling - Gonflement)

Ciertas irradiaciones crean dentro del retículo cristalino, fuertes concentraciones de gas. Este es el caso cuando se irradia un metal con protones o deuterones (introducción de Hidrógeno) o con partículas α (introducción de Helio). Es también éste el caso cuando la irradiación con neutrones da lugar a reacciones nucleares como la de fisión (los gases Xenon y Krypton constituyen 12% de los fragmentos de fisión del Uranio 235) o reacciones $n-\alpha$ que producen helio.

Es posible que los átomos de gas aislados así creados constituyan al endurecimiento, e incluso a la fragilización por irradiación. Se explica de esta manera la fragilización por irradiación con neutrones de aceros que contienen boro. El boro sufre una reacción n, α , que crea helio en el acero.

Se encuentra que las concentraciones de gas formadas, superan rápidamente el límite de solubilidad, y el gas formado precipita en burbujas. Estas burbujas, que pueden ser apreciadas en la Figura 14, necesitan para formarse y crecer, de un flujo de vacancias, ya que en átomo gaseoso ocupa dentro de una burbuja, un volumen definitivamente mayor que el volumen atómico del metal

FIGURA 14 = Burbujas de gas (helio y tritio)
dentro de una aleación metálica (Aluminio - 1.2% litio)
Microscopía electrónica por transmisión (84-a)

La aleación fué irradiada a temperatura ambiente con una dosis de 10^{20} neutrones térmicos/cm², y luego recocido 2hs. a 350°C. El litio es enriquecido a 60% en ⁶Li.

Hemos ya esbozado que es mediante la observación de que las burbujas se forman preferencialmente sobre los bordes de granos, que Barnes y colaboradores demostraron el papel que desempeñan los bordes de grano como fuentes de vacancias.

La consecuencia más destacada de este flujo de vacancias, es un aumento de volumen de la muestra, que se denomina "hinchazón".

Supongamos que las fuentes puedan suministrar un número suficiente de vacancias para que las burbujas estén en equilibrio térmico con la red, o sea que, la tensión debida a la presión P del gas esté equilibrada por la tensión de superficie γ del metal. En este caso, si R es el radio de una burbuja, supuesta esférica, se tiene :

$$P = \frac{2 \gamma}{R}$$

y aplicando la ley de los gases perfectos (*)

$$\frac{8 \gamma \cdot \pi \cdot R^2}{3} = n k T \quad (4)$$

donde n es el número de átomos de gas contenidos en la burbuja, k la constante de Boltzman y T la temperatura absoluta. Se puede deducir asimismo, que el arribo a la burbuja de un átomo suplementario ($dn = 1$) entraña una variación de volumen

$$\Delta V = \frac{3 R k T}{4 \gamma} \quad \text{Tomando : } \gamma = 1.000 \text{ erg / cm}^2 \text{ y } T =$$

800°K, se obtiene

$\Delta V (\text{cm}^3) = 8.3 \times 10^{-17} R (\text{cm})$: o sea que un átomo de gas penetrando en una burbuja de 0.1μ ó de 10μ de radio, provoca respectivamente, la afluencia de 40 o 4000 vacancias (con $v_{at} \approx 20 \text{ A}^{03}$).

Siendo el volumen de un átomo de gas aislado en el metal, despreciable, vemos que su arribo dentro de la burbuja, conduce a un aumento considerable en el volumen de la muestra. Es fácil de ver, de la ecuación (4), que la variación de volumen $\frac{\Delta V}{V_0}$ es proporcional a $n^{3/2}$, o sea, para una reacción nuclear dada, a $\psi^{3/2}$, siendo ψ la dosis de irradiación.

(*) Para el caso de fuertes presiones, esto es, burbujas muy pequeñas, deben de aplicarse correcciones a esta ley.

Se han realizado numerosas determinaciones sobre el fenómeno de hinchazón (85 - 88). Generalmente, se mide la disminución global de densidad. Si una variación en $\rho^{3/2}$ no es incompatible con los resultados experimentales a dosis débiles, se tiene en oposición, una aceleración del fenómeno a dosis elevadas, a veces llamada hinchazón exagerada : así, una muestra de U 3% Pd Mo irradiada con neutrones térmicos a 600°C, duplica su volumen ($\frac{\Delta V}{V_0} = 1$) para una dosis (xx) de aproximadamente 1×10^{-2} . Parece que el fenómeno de hinchazón exagerada es debido a la coalescencia de burbujas vecinas a medida que su tamaño aumenta. En efecto, cuando dos burbujas (R_1 y R_2) se tocan y comparten sus átomos de gas, originan una nueva burbuja cuya superficie, una vez llegado al equilibrio, es igual (según (4)), a la suma de la superficie de las dos burbujas iniciales. Su volumen es entonces :

$$V = \frac{4}{3} \pi (R_1^2 + R_2^2)^{3/2}$$

es superior a la suma de los volúmenes

$$\frac{4}{3} \pi (R_1^3 + R_2^3)$$

de las burbujas iniciales. De este modo la unión de dos burbujas iguales de radio 0.1μ da lugar a una burbuja de radio $0.1 \cdot \sqrt{2} = 0.14 \mu$ que para equilibrio necesita la afluencia de 0.6×10^8 vacancias. Este aumento de volumen aumenta la probabilidad de que la nueva burbuja se encuentre con otra : el proceso entonces se acelera, ya se tenga que las burbujas se mueven en el cristal (89) o no (89-a).

(xx) aquí la proporción de átomos que han efectuado fisión.

REFERENCIAS

- (1) F. SEITZ. - Disc. Faraday Soc., 5, 271 (1949)
- (1a) W.S. SNYDER y J. NEUFELD. - Phys. Rev., 97, 1636 (1955)
- (2) G.K. WEHNER. - Phys. Rev., 102, 690 (1956)
- (3) M.W. THOMPSON. - Phil. Mag., 4, 139 (1959)
- (4) G. LEIBFRIED. - J. appl. Phys., 31, 117 (1960)
- (5) J.A. BRINKMAN. - Am. J. Phys., 24, 246 (1956)
- (6) J.B. GIBSON, A.N. GOLAND, A.M. MILGRAN y G.H. VINEYARD. - Phys. Rev., 120, 1229 (1960)
- (7) R.S. NELSON y M.W. THOMPSON. - Phil. Mag., 8, 1677 (1963)
- (8) Y. QUERE, J.C. RESNEAU y J. MORY. - Comptes rendus, 262, 1528 (1966).
- (9) D.G. BRANDON, M. WALD, M.J. SOUTON y B. RALPH. - J. Phys. Soc. Jap., 18, II, 324 (1963)
- (10) M.J. ATTARDO y J.M. GALLIGAN. - Phys. Rev. Letters, 17, 191 (1966)
- (11) R. VOOK y C. WERT. - Phys. Rev., 109, 1529 (1958)
- (12) R.O. SIMMONS y R.W. BALLUFFI. - Phys. Rev., 109, 335 (1958)
- (13) P. SOLENTE y R. LALLEMENT, - Phys. Letters, 13, 109 (1964)
- (14) R. LALLEMENT y D.A. WIGLEY. - Phys. Stat. Sol., a para-
itre (1967)
- (15) G.H. VINEYARD y C.E. OLSEN. - Symposium A.I.E.A. Veni-
se (1962)
- (16) J.A.C. MARPLES. - Intern. Conf. on plutonium, Inst. Met.
Londres (1965)
- (17) A. LUCASSON, P. LUCASSON y R.M. WALKER. - Conference
de Berkeley (G-B) (1961)
- (17a) E.A. BURKE, C.M. JIMENEZ y L.F. LOWE. - Phys Rev.,
141, 629 (1966)
- (17b) G.W. ISELER, H.I. DAWSON, A.S. MEHNER y J.W. KAUFFMAN -
Phys. Rev., 141, 468 (1966).
- (18) M.L. SWANSON y G.R. PIERCY. - Can. J. Phys., 42, 1605
(1964)
- (19) M.W. THOMPSON. - Phil. Mag., 5, 278 (1960)
- (20) G. BURGER, K. ISEBECK, H. WENZL, J.C. JOUSSET y
Y. QUERE. - Phil. Mag., 11, 621 (1965)
- (21) G. BURGER, K. ISEBECK, H. WENZL, J.C. JOUSSET y
Y. QUERE. - 10^e colloque de métallurgie, Saclay (1966)
- (22) C. BUDIN y P. LUCASSON. - Phys. Letters, 16, 229 (1965)
- (22a) A. CORCIOVEI y A. BARCENCO. - Phys. Stat. Sol., 4, 281
(1964)
- (23) G. BURGER, H. MEISSNER y W. SCHILING. - Phys stat. Sol.,
4, 281 (1964)
- (23a) T.H. BLEWITT, J.A. HORAK y M.W. LUCAS. - Rapport
américain T.I.D. 4005 (1966)
- (24) G. BURGER, H. WENZL, K. ISEBECK, J.C. JOUSSET y
Y. QUERE. - Phys. Letters, 16, 240 (1965)

- (25) K. MENDELSSOHN y D.A. WIGLEY - Phys Letters, 20, 483 (1963)
- (26) C.E. OLSEN, R.O. ELLIOT y T.A. SANDENAW. - Symposium A.I.E.A., Venise (1962)
- (27) J.A. LEE, K. MENDELSSOHN y D.A. WIGLEY. - Phys. Letters, 1, 325 (1962) D.A. WIGLEY, Thesis, University of Oxford (1963)
- (28) R. LALLEMENT. - Intern Conference on plutonium, Inst. Met., Londres (1965)
- (29) L. NEEL. - J. Phys. Rad., 13, 249 (1952)
- (30) P. MOSER. D. DAUTREPPE y P. BRISSONEAU. - Comptes rendus, 250, 3963 (1960)
- (31) P. MOSER. - These, Université de Grenoble (1965)
- (32) A. SEEGER, H. KRONMULLER, P. SCHILLER y H. JAGER. Proc. of. the 18th summer school "Enrico Fermi", Academic Press, New York (1962)
- (33) J.W. CORBETT, R.B. SMITH y R.M. WALKER. - Phys Rev., 114, 1452 (1959)
- (34) R.M. WALKER. - Proc. of the 18 th summer school "Enrico Fermi" Academic Press, New York (1962)
- (35) C.J. MEECHAN, A. SOSIN y J.A. BRINKMAN. - Phys Rev., 120, 411 (1960)
- (36) A. SEEGER. - Symp. A.I.E.A., (Venise) 1, 120 (1962)
- (37) J.A. TESK, E.C. JONES y J. W. KAUFFMAN. - Phys Rev., 133, A 288 (1964)
- (38) J.C. JOUSSET, A. LUCASSON y P. LUCASSON. - Phil Mag., 13, 887 (1966)
- (39) G. BURGER, K. ISEBECK, I. VOLKL y H. WENZL. - J. appl. Phys. 36, 3356 (1965)
- (40) J.W. CORBETT. - Phys. Rev., 137, 1806 (1965)
- (41) J.S. KOEHLER y G. LEIBFRIED. - J. phys. Soc. Jap. 18, suppl. III, 266 (1963)
- (42) A. SEEGER, E. MANN y R. VON JAN. - J. Phys. Chem. Sol., 23, 639 (1962)
- (43) A.V. GRANATO y T.G. NILAN. - Bull. Am. Phys. Soc., 6, 419 (1961)
- (44) A. SOSIN. - J. Phys. Soc. Jap., 18, suppl. III, 277 (1963)
- (45) G. BURGER, K. ISEBECK, H. MEISSNER, W. SCHILLING y H. WENZL. - Phys. Letters, 20, 124 (1966)
- (46) C.J. MEECHAN y J.A. BRINKMAN. - Phys Rev., 103, 1193 (1956)
- (47) P. LUCASSON y R.M. WALKER. - Phys. Rev., 127, 1130 (1962)
- (48) W. BAUER, J.W. DE FORD, J.S. KOEHLER y J.W. KAUFFMAN - Phys. Rev., 128, 1497 (1962)
- (49) W. BAUER y A. SOSIN. - Phys. Rev., 136, 474 (1964)
- (50) C.L. SNEAD y P.E. SHEARIN. - Phys. Rev., 140, A 1781 (1965)
- (51) R. PICHON, C. MINIER-CASSAYRE, V. HIVERT y P. MOSER - Phys. Stat. Sol., 17 K 33 (1966)

- (52) C. MINIER-CASSAYRE. - These, Université de Grenoble (1965)
- (53) T.H. BLEWITT, R.R. COLTMAN, C.E. KLABUNDE y T.S. NOGGLE. - J. appl. Phys., 28, 639 (1957)
- (54) C. FROIS y O. DIMITROV. - Mém. Scient. Rev. Metal. LXII, 10, 697 (1965)
- (55) D.G. MARTIN. - Phil. Mag., 7, 803 (1962)
- (56) M.W. THOMPSON. - Phil. Mag., 5, 278 (1960)
- (57) G. PERRIOT y A. P. SCHMITT. - Rapport C.E.A., 2296 (1962)
- (58) G.H. KINCHIN y M.W. THOMPSON. - J. nucl. Energy, 6, 275 (1958)
- (59) J. NIHOUL. - Radiation damage in solids Symposium A.I.E.A. (1962)
- (60) G.D. MAGNUSON, W. PALMER y J. S. KOEHLER. - Phys. Rev., 109, 1990 (1958)
- (61) A.V. GRANATO y T.G. NILAN. - Phys. Rev., 137, 1233 (1965)
- (62) K. ISEBECK, F. RAU, W. SCHILLING, K. SONNENBERG, P. TISCHER y H. WENZL. - Phys. Stat. Sol. 17, 259 (1966)
- (63) T.H. BLEWITT, R.R. COLTMAN y C.E. KLABUNDE. - J. Phys. Soc. Jap., 18, 288 (1963)
- (64) H.G. COOPER, J.S. KOEHLER y J.W. MARX. - Phys. Rev., 97, 599 (1955)
- (64a) E. BONJOUR, C. FROIS y O. DIMITROV. - Comptes rendus, 259, 4027 (1964)
- (65) T.H. BLEWITT. - Radiation damage in solids. Proc. of the 18 th summer school "Enrico Fermi" p. 630, Academic Press (1962)
- (65a) A. SEEP, U. HIMMLER, H. PEISL, H. WENZL y W. WAIDELICH - Phil. Mag., 14, 131 (1966)
- (66) J.A. VENABLES y R.W. BALLUFFI. - Phil. Mag., 11, 1021 et 1039 (1965)
- (67) P. PERETTO, J.L. ODDOU, C. MINIER-CASSAYRE, D. DAUTREPPE y P. MOSER. - Phys. Stat. Sol., 16, 281 (1966)
P. PERETTO. - These, Université de Grenoble (1967)
- (68) G.J. DIENES y A.C. DAMASK. - J. appl. Phys., 29, 1713 (1958).
- (69) A.C. DAMASK. - Symposium A.I.E.A., Venise (1962)
- (70) M.S. WECHSLER y R.H. KERNOHAN. - Radiation damage in solids, Symposium A.I.E.A. (1962)
- (71) W. SCHULE. - Phys. Letters, 14, 81 (1965)
- (72) J.A. HORAK y T.H. BLEWITT. - Bull. Am. Phys. Soc., 11, 2, 210 (1966)
- (73) J. PAULEVE, P. DAUTREPPE, J. LAUGIER y L. NEEL. - Comptes rendus, 254, 965 (1962)
- (74) A. MARCHAND y A. CHAMBEROD. - Comptes rendus, 261, 3113 (1965)
- (75) L.R. ARONIN - Rapport M.I.T., n° 1107 (1953)
- (76) J. BLOCH, J. DOULAT y J. BLIN. - J. Matér. nucl., 3, 327 (1961)

- (77) J. BLOCH . - J. Matér. nucl., 6, 203 (1962)
- (78) D.O. THOMPSON y D.K. HOMES. - J. Appl. Phys., 27, 713 (1956)
- (79) J.N. LOMER. - Phil. Mag., 8, 951 (1963)
- (80) D.O. THOMPSON, T.H. BLEWITT y D.K. HOLMES. - J. appl. Phys., 28, 275 (1957)
- (80a) T.H. BLEWITT, R.R. COLTMAN, R.E. JAMISON y J.K. REDMAN. - J. Matér. nucl., 2, 277 (1960)
- (81) J. MALKIN y N. MILASIN. - 10^e colloque de métallurgie, Saclay (1966)
- (81a) R.L. FLEISCHER. - Acta Met. 10, 935 (1962)
- (82) A. SEEGER. - 2^e conf. de Geneve sur l'Energie atomique, 6, 250 (1958)
- (83) J. DIEHL, C. LEITZ y W. SCHILLING. - Phys Letters, 4, 236 (1963)
- (83a) D.O. THOMPSON y V.K. PARE. - Rapport américain O.R.N.L., n^o 3480 (1963)
- (84) R. CASTAING y B. JOUFFREY. - J. Microscopie, 1, 201, (1962) B. JOUFFREY. - These , Université de Paris (1962)
- (84a) V. LEVY. - Communication personnelle
- (85) B.A. LOOMIS. - Symposium A.I.E.A., Venise (1962)
- (86) W.A. HOLLAND. - Trans.amerc. nucl.Soc., 4, 337 (1961)
- (87) J.P. MUSTELIER. - Symposium A.I.E.A., Venise (1962)
- (88) H. MICAIOFF. - Rapport C.E.A., n^o R 2601 (1964)
- (89) R.S. BARNES y D.J. MAZEY. - Proc. Roy Soc., 275, 47 (1963)
- (89a) Y. QUERE. F.PHAM y J. BLIN. - Reactor Sc. and Techn. 17, 15 (1963)
- (90) J. FRIEDEL. - Les dislocations, Gauthier-Villars, Paris (1956)
- (91) W.T. READ- -Dislocations in crystals, Mc.Graw Hill, New York (1953)
- (92) G. SAADA. - Microscopie électronique des lames minces cristallines, Masson, Paris (1966) J. Phys. Rad., 24, 426 (1963) Acta Met. 8, 841 (1960).