

PRECIPITADOS INCOHERENTES COMO SUMIDEROS DE DEFECTOS PUNTUALES.

A. Sarce

*Departamento Ciencia de Materiales, Comisión Nacional de Energía Atómica,
Libertador 8250, 1429 Buenos Aires.*

Se calculan las potencias de precipitados para el atrapamiento de defectos puntuales creados por irradiación en redes hexagonales. Se muestra que dependen de la forma y tamaño de los precipitados, de la orientación de sus caras con respecto a la red, del estado metalúrgico de la matriz y del factor de anisotropía de la difusión de los defectos (D_c/D_a).

INTRODUCCION

Los defectos puntuales, intersticiales y vacancias, creados fuera del equilibrio térmico, migran en la red por activación térmica y pueden ser atrapados por otros defectos como dislocaciones¹, bordes de grano² e intercaras^{3,4}. La capacidad de estos defectos extendidos para actuar como sumideros de los defectos puntuales es medida por el valor de la correspondiente potencia de atrapamiento del sumidero.

El conocimiento de la potencia de atrapamiento de precipitados incoherentes, en particular, es importante para poder analizar la evolución de la microestructura de un material irradiado. Esta potencia es calculada en el presente trabajo, considerando los precipitados formados en una matriz anisotrópica, y usando la teoría de los procesos de reacción^{3,5} para asociar la micro y macro evolución del cristal.

POTENCIA DE ATRAPAMIENTO DEL PRECIPITADO

Precipitados cúbicos de volumen v , separados por distancias b_x , b_y y b_z en las direcciones x , y , z de coordenadas rectangulares respectivamente, son considerados como sumideros de los defectos puntuales.

En estado estacionario, y cuando un solo tipo de defecto puntual está presente en el cristal, la corriente de defectos J al precipitado satisface la ecuación:

(1)

$$\nabla \cdot J + I_{sc} = K$$

donde K es la densidad de daño producida por la

irradiación dentro del volumen $(V-v)$, donde $V = b_x \times b_y \times b_z$, e I_{sc} es la velocidad de absorción de defectos puntuales por otros sumideros alternativos que se consideran distribuidos uniformemente dentro del mismo volumen. Para resolver la ecuación (1), la densidad de corriente de defectos J en un sitio i , localizado en la red en r_i , es expresada dentro de un modelo discreto. Su dependencia con la densidad de defectos puntuales, $c(r)$, es una función de la simetría del cristal y del defecto⁶. Las condiciones de contorno se toman:

$$c(x_j = \pm d_j / 2) = 0 \quad (2)$$

$$J(x_j = \pm d_j / 2) = 0 \quad (3)$$

donde $j=x, y, z$ y d_j es el tamaño del precipitado en la dirección j (figura 1). La primera condición de contorno implica considerar el precipitado como un sumidero ideal (todo defecto que llega a las proximidades del precipitado es atrapado por éste), que es compatible con la suposición que la interfase matriz-precipitado es incoherente, y la segunda tiene en cuenta la distribución periódica suelta.

Como el problema de difusión de defectos en un cristal bajo irradiación es muy complejo, es aproximado por la teoría de los procesos de reacción^{3,7}. En esta teoría se supone la existencia de un medio efectivo en el cual los sumideros de defectos (en este caso los precipitados) están continua y uniformemente distribuidos, y se considera que cada unidad de volumen atrapa defectos a una velocidad⁵:

$$I_{pr} = k_{pr}^2 \langle D_i, v \rangle \langle c_i, v \rangle \quad (4)$$

donde K_{pr}^2 es la potencia de acaptura del precipita-

do y $\langle D \rangle$ el valor medio de la difusividad, definido como un invariante del tensor difusividad⁸:

$$\langle D \rangle = [D_1 D_2 D_3]^{1/3} \quad (5)$$

donde D_j , $j=1, 2, 3$, son los autovalores del tensor difusividad en los ejes coordenados del cristal, y $\langle c \rangle$ la concentración media de intersticiales (i) o de vacancias (v) en el medio. Considerando esta velocidad de absorción en el medio efectivo igual al flujo total de defectos hacia los precipitados presentes en una unidad de volumen, queda definida la potencia de captura como:

$$k_{pr}^2 = \rho_{pr} \int_A \mathbf{J} \cdot d\mathbf{A} / \langle D \rangle \langle c \rangle \quad (6)$$

donde ρ_{pr} es la densidad de precipitados y A el área total de cada uno.

La influencia de la anisotropía del tensor difusividad de intersticiales y vacancias sobre la captura de los defectos, es mejor analizada en términos de las potencias de captura parciales definidas como:

$$k_j^2 = \rho_{pr} \int_S J_j dS / \langle D \rangle \langle c \rangle \quad (7)$$

donde J_j es el flujo de defectos que llega a las caras cuya normal es paralela a la dirección j, cada una de área S.

De (6) y (7) resulta:

$$k_{pr}^2 = k_x^2 + k_y^2 + k_z^2 \quad (8)$$

CALCULO DE LA POTENCIA DE ATRAPAMIENTO DEL PRECIPITADO. RESULTADOS.

La ecuación (1) es resuelta numéricamente dentro de un esquema de diferencias finitas. Una grilla tridimensional (figura 1) es asociada con cada precipitado. Se supone, para simplicidad en el análisis de los resultados, que los precipitados son cúbicos ($d_j = d$), que el eje c de la celda hexagonal es paralelo a uno de los lados del precipitado y que éstos son, a su vez, paralelos al sistema de coordenadas x, y, z. En este caso el problema tiene simetría ortotrópica y el cálculo puede hacerse sobre 1/8 del volumen b^3 (considerando $b_j = b$) asociado. Los perfiles de concentración son calculados con las condiciones de contorno (2) y (3) impuestas en $x_j = d_j/2$ y $x_j = b_j/2$ respectivamente y la condición $\mathbf{J} = 0$ impuesta sobre los tres

planos de simetría ortotrópica que dividen el volumen (V-v).

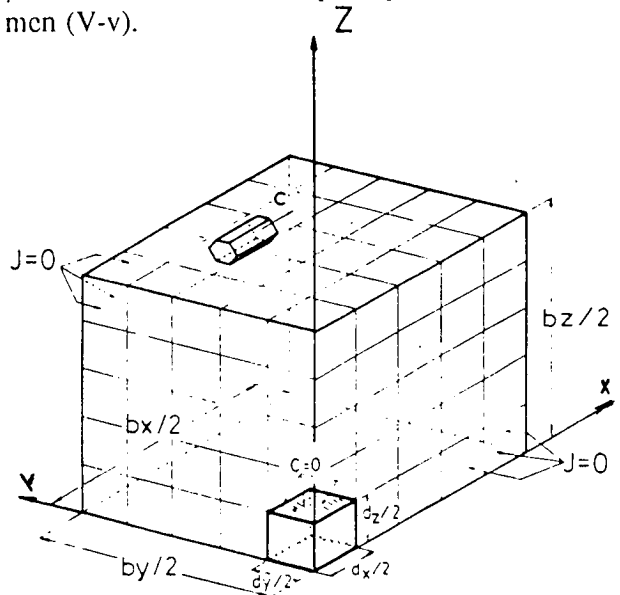


Figura 1: Representación esquemática de la región asociada con el precipitado donde se resolvió numéricamente la ecuación de difusión de los defectos puntuales.

La Tabla I muestra las potencias de captura para distintas distribuciones de precipitados, calculadas a 560K y suponiendo una densidad ρ_d de dislocaciones como sumideros alternativos. Puede verse que variaciones en el tamaño y la densidad de los precipitados introducen importantes variaciones en los valores de las potencias de captura.

La figura 2 muestra, por otra parte, que en materiales fuertemente deformados (simulados suponiendo altas concentraciones de dislocaciones

| d [10 ⁻⁶ m] | ρ_{pr} (m ⁻³) | k_{pv}^2 (m ⁻²) | k_{pi}^2 (m ⁻²) |
|------------------------|--------------------------------|-------------------------------|-------------------------------|
| 0.3 | 0.1 x 10 ¹⁸ | 0.04 x 10 ¹³ | 0.04 x 10 ¹³ |
| 0.1 | 0.3 x 10 ¹⁹ | 0.33 x 10 ¹³ | 0.33 x 10 ¹³ |
| 0.03 | 0.9 x 10 ²⁰ | 2.90 x 10 ¹³ | 2.90 x 10 ¹³ |

Tabla I Potencias de captura; T=560K ; $\rho_d = 10^{12} \text{ m}^{-2}$.

ρ_d como sumideros alternativos), la intensidad de la captura de los defectos puntuales por parte de los precipitados es diferente, según es el grado de deformación de la matriz.

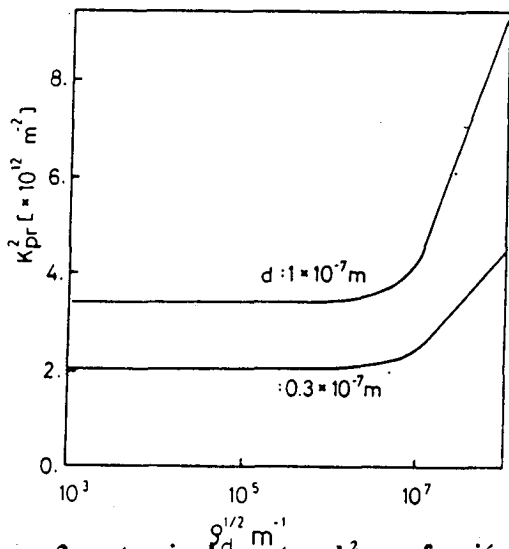


Figura 2: potencia de captura k^2_{pr} en función de la densidad de dislocaciones presente en el material. $Dc/Da=0.8$; $d=0.1 \times 10^{-6}$ m; $\rho_{pr}=3 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$.

Finalmente, la figura 3 muestra el comportamiento de las potencias de atrapamiento total y parciales en función del factor de anisotropía Dc/Da^9 , donde Dc (Da) es la difusividad paralela (perpendicular) al eje c de la celda hexagonal.

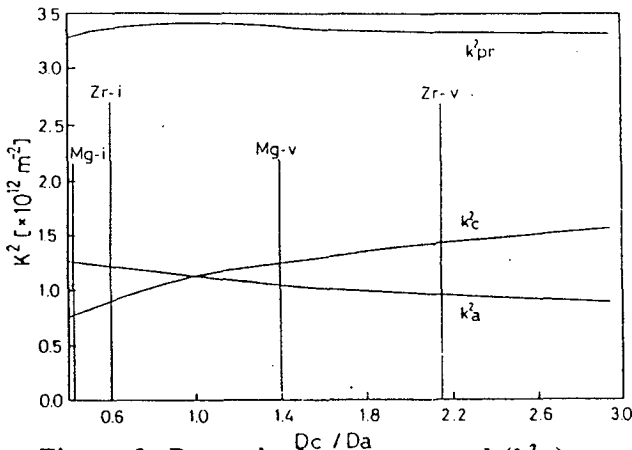


Figura 3: Potencia de captura total (k^2_{pr}) y parciales (k^2_c y k^2_a) versus el factor de anisotropía Dc/Da . $d=0.1 \times 10^{-6}$ m; $\rho_{pr}=3 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$; $\rho_d=10^{12} \text{ m}^{-2}$.

Puede verse que las potencias parciales son más sensibles a la anisotropía de la difusión. Además, las caras cuya normal es paralela al eje c atrapan más defectos (k^2_c) que las caras cuya normal es perpendicular al eje c (k^2_a) cuando $(Dc/Da) > 1$, sucediendo lo contrario cuando $(Dc/Da) < 1$. Por otra parte, para un dado material, descrito por un dado potencial interatómico, Dc/Da tiene un valor para intersticiales y, en general, otro distinto para vacancias. Esto implica que cada cara del precipitado atraparé más vacancias o intersticiales según sea el correspondiente valor Dc/Da . Se es-

tablece así un atrapamiento preferencial en cada cara del precipitado de un defecto u otro debido a la anisotropía de la difusión (*Diffusional Anisotropy Difference*⁵). Como ejemplo, se indican con líneas verticales los correspondientes valores de Dc/Da a 560K para Mg y Zr, cuando ambos materiales están descritos por un potencial de 6 cubicas ajustado a energías de formación de la vacancia de 0.8 eV y 1.8 eV respectivamente⁹.

DISCUSION Y CONCLUSIONES.

Los resultados obtenidos en este trabajo muestran que las potencias de precipitados incoherentes para el atrapamiento de los defectos puntuales dependen de la medida de los precipitados y de la densidad de precipitados presentes en el material (Tabla I), de la orientación geométrica del precipitado con respecto a la red de la matriz (Figura 3) y del estado metalúrgico de la matriz (Figura 2). Si todos estos parámetros son fijados, las potencias totales o parciales dependen sólo del factor de anisotropía Dc/Da para cada defecto, el cual, a su vez, depende del material y del potencial elegido para describirlo, de la temperatura, y de la deformación de la red⁹. Este comportamiento, encontrado también para la potencia de atrapamiento de dislocaciones⁹, de bordes de grano^{9,10}, y cavidades¹¹, enfatiza el hecho de que la anisotropía de la difusión determina el atrapamiento preferencial (de vacancias o intersticiales) del precipitado y de cada una de sus caras. Esto, a su vez, permite predecir anisotropías microestructurales observadas experimentalmente como, por ejemplo, la forma de placas paralelas al plano basal de la celda hexagonal (0001) de los precipitados β - 85 % wtNb formados en Zr - α bajo irradiación¹².

REFERENCIAS

1. P.T. Heald and M.V. Speight, Acta Met. 23 (1975) 1389.
2. R.Bullough, M.R. Haynes and C.H. Wood, J.Nucl. Mat. 90 (1980).
3. A.D. Brailsford and R.Bullough, J.Nucl. Mat. 44 (1972) 121.
4. A.D.Brailsford and L.K.Mansur, J.Nucl. Mat. 103 - 104 (1981) 1403.
5. C.H.Woo, J.Nucl. Mat. 159 (1988) 237.
6. E.J. Savino, Phil. Mag. 36 (1977) 323.
7. H.Wiedersich, en "Physical Metallurgy of Reactor Fuel Elements". Eds. J.E.Harris y E.C.-

- Sykes. Berkeley Nuclear Laboratories (1973) 142.
8. U. M. Goesele, Prog. Reaction Kinetics 13 (1984) 63.
9. A. M. Monti, A. Sarce, N. Smetniansky-De Grande, E. J. Savino and C. N. Tomé, Phil. Mag. 63 (1991) 925.
- 10 A. Sarce and E. J. Savino, phys. stat. sol. (b) 159 (1990) 557.
- 11 N. Smetniansky- De Grande, C. N. Tomé and E. J. Savino, phys. stat. sol. (b) (1991), en impresión.
- 12 A. Sarce, J. Nucl. Mat. (1991), en impresión.

CEILAP
CITEFA CONICET
ZUFRIATEGUI Y VARELA
1603 VILLA MARTELLI
REPUBLICA ARGENTINA