

Tesis de Posgrado

El recuperado térmico de los aglomerados de defectos producidos por irradiación neutrónica en monocristales de cobre Thermal annealing of defect clusters induced by neutron irradiation in copper single crystals

Miralles, Mónica T.

1998

Tesis presentada para obtener el grado de Doctor en Ciencias Físicas de la Universidad de Buenos Aires

Este documento forma parte de la colección de tesis doctorales y de maestría de la Biblioteca Central Dr. Luis Federico Leloir, disponible en digital.bl.fcen.uba.ar. Su utilización debe ser acompañada por la cita bibliográfica con reconocimiento de la fuente.

This document is part of the doctoral theses collection of the Central Library Dr. Luis Federico Leloir, available in digital.bl.fcen.uba.ar. It should be used accompanied by the corresponding citation acknowledging the source.

Cita tipo APA:

Miralles, Mónica T.. (1998). El recuperado térmico de los aglomerados de defectos producidos por irradiación neutrónica en monocristales de cobre Thermal annealing of defect clusters induced by neutron irradiation in copper single crystals. Facultad de Ciencias Exactas y Naturales. Universidad de Buenos Aires.
http://digital.bl.fcen.uba.ar/Download/Tesis/Tesis_3056_Miralles.pdf

Cita tipo Chicago:

Miralles, Mónica T.. "El recuperado térmico de los aglomerados de defectos producidos por irradiación neutrónica en monocristales de cobre Thermal annealing of defect clusters induced by neutron irradiation in copper single crystals". Tesis de Doctor. Facultad de Ciencias Exactas y Naturales. Universidad de Buenos Aires. 1998.
http://digital.bl.fcen.uba.ar/Download/Tesis/Tesis_3056_Miralles.pdf

EXACTAS UBA

Facultad de Ciencias Exactas y Naturales



UBA

Universidad de Buenos Aires

UNIVERSIDAD NACIONAL DE BUENOS AIRES
FACULTAD DE CIENCIAS EXACTAS Y NATURALES
TESIS DE DOCTORADO

Título

**EL RECUPERADO TÉRMICO DE LOS AGLOMERADOS
DE DEFECTOS PRODUCIDOS POR IRRADIACIÓN
NEUTRÓNICA EN MONOCRISTALES DE COBRE**

Autora

Lic. Mónica T. Miralles

Director

Dr. H. C. González

**COMISIÓN NACIONAL DE ENERGÍA ATÓMICA
CENTRO ATÓMICO CONSTITUYENTES**

1998

Nº 3056

52

UNIVERSIDAD NACIONAL DE BUENOS AIRES
FACULTAD DE CIENCIAS EXACTAS Y NATURALES

Ph. D. THESIS

Title

**THERMAL ANNEALING OF DEFECT CLUSTERS INDUCED BY
NEUTRON IRRADIATION IN COPPER SINGLE CRYSTALS**

Authoress

Lic. Mónica T. Miralles

Director

Dr. H. C. González

COMISIÓN NACIONAL DE ENERGÍA ATÓMICA
CENTRO ATÓMICO CONSTITUYENTES

1998

*Un experimento bien hecho,
es siempre un experimento positivo (...)*

G. Bachelard

*A Max y Victoria
que se gestaron y crecieron junto a esta Tesis
A Alfred, que hizo posible las tres cosas
A Coco, que está de nuevo entre nosotros
A Gustavo, que conoce el punto de partida.*

Agradecimientos:

*Gracias quiero dar al divino
laberinto de los efectos y de las causas
por la diversidad de las criaturas
que forman este singular universo (...)*

J. L. Borges

Incluido dentro del Universo al que hace referencia J. L. Borges se encuentra otro, no menos singular, que es el Centro Atómico Constituyentes a cuyas "criaturas" quiero expresar mi más sincero agradecimiento.

En primer lugar a las autoridades de la Comisión Nacional de Energía Atómica por el otorgamiento de la ayuda económica a lo largo de todos estos años, que posibilitó la exclusiva dedicación a este trabajo.

En segundo lugar al Dr. H. C. González, Director de esta Tesis, la generosa transmisión de sus conocimientos, su contagiosa "pasión" por la física experimental y sobre todo su infinita paciencia y tolerancia. Gracias por haberme dejado cometer todos los errores.

En tercer lugar a mis "primeros vecinos", es decir a todos los integrantes del grupo Daño por Radiación, con quienes, a lo largo de todos estos años, me liga el respeto y un gran cariño. A la Dra. A. M. Fortis, y al Lic. F. J. W. Justus, a los Sres. V. Olano, F. Añasco y al siempre presente Ing. E. Mezzabolta.

Un agradecimiento muy especial merecen la Dra. G. D. H. Cocoz a quien debo, entre otras infinidad de cosas, la minuciosa lectura del manuscrito de esta Tesis, cuya redacción y presentación fue sucesivamente mejorada gracias a sus agudas sugerencias y el Sr. C. D. Anello por su incondicional apoyo técnico en cada una de las etapas del trabajo.

Los cursos de postgrado realizados a lo largo del Doctorado, motivaron muchas inquietudes adicionales. Agradezco al Dr. R. Passianot el enorme tiempo dedicado a responder mis "graves dudas" en temas ligados a la Física del Sólido como así también al Lic. P. Bruzzoni el descifrar el criptográfico lenguaje de la catálisis heterogénea en una interfase modelo.

Un Tesista pasa por diferentes etapas. La lectura bibliográfica conduce muchas veces a la sensación de estar en un enorme laberinto del que se desconoce su topología, es decir si la salida es única o hay varias, o si se camina dentro de un enorme ribozoma. Es en estos momentos cuando se dan las ricas discusiones científicas, con el Director y con profesionales formados en disciplinas afines. Agradezco muy especialmente a los "teóricos" como el Dr. M. Alurralde y al Dr. J. Fernández el esclarecimiento de muchos aspectos ligados a modelos de cálculo y simulaciones por computadora utilizadas en Daño por Radiación, el entusiasmo y ricos aportes del Lic. S. Serebrinsky en temas ligados a la difusión. Dentro de este grupo se encuentra la Dra. N. Smeniantzky y la Dra. H. Forlerer a quienes debo, además de sus conocimientos generosamente brindados, el empuje y aliento, tan necesario, en esta larga etapa de formación. Lo mismo respecto a la Dra. A. Denis y la Dra. R. Pietrkowsky con quien tuve el gusto de aprender Difusión en Ciencias Exactas. A la Lic. S. Balart y a la Dra. M. Ortiz.

Quiero agradecer muy especialmente a todos aquellos que han contribuido en el aspecto "informático", rescatando archivos, sugiriendo programas, etc. Agradezco a la Dra. C. Oviedo la PC puesta a mi disposición para realizar el trabajo de escritura, al Ing. S. Terlisky el dominar el silencioso lenguaje de los "bits" y al Lic. E. Vicente su inagotable curiosidad.

Debido al carácter experimental de esta Tesis la misma hubiera sido imposible sin la asistencia de los distintos Talleres de excelencia con los que cuenta la CNEA. Quiero agradecer especialmente a los Sres. J. Caggiano, y E. R. Alonso, al "maestro vidriero" J. Papalia, al Sr. H. Rafaelli y al Ing. C. Ziobrosky del grupo de fundición.

A todo el personal del Reactor Experimental RA-1, pero especialmente al Ing. H. Scolari, y a los Sres. P. Uccelli, C. Grizzutti, J. Castillo y V. Pereyra.

Al personal de biblioteca y muy especialmente a M. Bavio y a M. E. Caraballo.

A la Dra. Bekeris, Consejera de Estudios, su permanente interés en las distintas fases del trabajo.

Para finalizar, quiero presentar a modo de humilde homenaje, a los pioneros y fundadores del Daño por Radiación a bajas temperaturas sin los cuales esta tesis tampoco hubiera sido posible. A lo largo de sus publicaciones han quedado escritas páginas memorables de la Física Experimental de este siglo, no sólo por el refinamiento de los dispositivos y por la originalidad de las ideas, sino también por la claridad didáctica y formativa de las mismas.



Participants in the Round-Table Meeting on Lattice Defects in the Noble Metals

Left to right: (1) A. Sosin, Atomics International; (2) J. W. Corbett, GE Research Laboratory; (3) T. H. Blewitt, Oak Ridge National Laboratory; (4) C. J. Meehan, Atomics International; (5) R. R. Hasiguti, University of Tokyo; (6) R. M. Walker, GE Research Laboratory; (7) R. R. Coltman, ORNL; (8) J. A. Brinkman, Atomics International; (9) D. K. Holmes, ORNL; (10) G. H. Vineyard, Brookhaven National Laboratory; (11) H. B. Huntington, Rensselaer Polytechnic Institute; (12) H. B. Van Bueren, Philips Laboratories, Eindhoven; (13) A. Seeger, Max Planck-Institut für Metallforschung, Stuttgart; (14) D. K. Stevens, Division of Research, USAEC; (15) J. S. Koehler, University of Illinois.

(Physics Today, p.33, June 1959)

A todos, muchas gracias

ÍNDICE GENERAL

Resumen.....	1
Abstract.....	2
I. PRIMERA PARTE: INTRODUCCIÓN TEÓRICA.....	3
CAPITULO 1. 1: LAS PROPIEDADES MECÁNICAS EN MONOCRISTALES METÁLICOS CÚBICOS CENTRADOS EN LAS CARAS.....	5
§ I. 1. 1 La Tensión Crítica Resuelta de Corte.....	5
§ I. 1. 2 La Deformación en Monocristales CCC, Favorablemente Orientados para el Deslizamiento Simple en Tensión.....	7
§ I. 1. 3 La Deformación Resuelta en Monocristales CCC.....	8
§ I. 1. 4 Otras Dependencias de la Tensión Crítica Resuelta de Corte.....	9
1. 1. 4. 1 Dependencia de la Tensión Resuelta de Corte con la Foresta de Dislocaciones Presentes en Monocristales de Cobre.....	9
1. 1. 4. 2 Dependencia de la Tensión Crítica Resuelta de Corte con la Pureza del Material.....	9
§ I. 1. 5 Curvas de Tensión Resuelta vs Deformación Resuelta para Monocristales de Cu Deformados a 77 K.....	10
1. 1. 5. 1 La Microplasticidad en Monocristales de Cu Favorablemente Orientados para el Deslizamiento Simple, a 77 K.....	11
1. 1. 5. 2 La Macroplasticidad en Monocristales de Cu, Favorablemente Orientados para el Deslizamiento Simple, a 77 K.....	13
§ I. 1. 6 Los Recuperados Térmicos y la TCRC en Monocristales de Cu.....	14
CAPITULO 1. 2 : LA PRODUCCIÓN DE DEFECTOS EN MONOCRISTALES DE COBRE IRRADIADOS CON NEUTRONES DE FISIÓN A BAJAS DOSIS Y TEMPERATURA....	16
§ I. 2. 1 El Espectro Neutrónico.....	16
§ I. 2. 2 El Camino Libre Medio de los Neutrones en Cu.....	18
§ I. 2. 3 El Átomo Desplazado Primario.....	19
§ I. 2. 4 Mecanismos de Disipación de la Energía del PKA: El Modelo LSS.....	23
1. 2. 4. 1 Poder Frenador Electrónico y Nuclear.....	24
CAPITULO 1. 3: EL ENDURECIMIENTO POR IRRADIACIÓN NEUTRÓNICA.....	28
§ I. 3. 1 El Fenómeno de Endurecimiento: Las Curvas de Tensión Resuelta-Deformación Resuelta de Monocristales de Cobre Irradiados con Neutrones Rápidos.....	28

§ 1. 3. 2 Dependencia de la TCRC _{77K} con la Dosis en Cu Irradiado con Neutrones de Fisión a 77 K..	30
§ 1. 3. 3 Mecanismo de Fricción de Corto Alcance.....	
§ 1. 3. 4 Endurecimiento por Zonas Desnudas (Modelo de Seeger).....	34
1. 3. 4. 1 La Teoría de Seeger y la Irradiación Neutrónica en Cu.....	37
§ 1. 3. 5 El Problema de la Aditividad de los Mecanismos de Endurecimiento.....	40
CAPITULO I. 4: LAS ETAPAS DE RECUPERACIÓN TÉRMICA EN CU IRRADIADO CON NEUTRONES.....	43
§ 1. 4. 1 La Naturaleza de las Barreras Planares: Los Defectos Aglomerados.....	43
§ 1. 4. 2 Las Etapas de Recuperación Térmica en Cobre irradiado con Neutrones a Baja Temperatura.....	45
§ 1. 4. 3. Las Irradiaciones con Electrones y con Neutrones para el Estudio de la Etapa V.....	48
§ 1. 4. 4. Comparación de las Curvas de Recuperación en Cu irradiado con Electrones y con Neutrones.....	50
1. 4. 4. 1 La Etapa I en Cu.....	50
1. 4. 4. 2 La Etapa I luego de irradiar con Neutrones Térmicos.....	53
1. 4. 4. 3 Irradiación a Altas Dosis cercanas a la de Saturación.....	54
1. 4. 4. 4 La Etapa II en Cu.....	55
1. 4. 4. 5 La Etapa II en Cobre a Dosis Cercanas a la de Saturación.....	57
1. 4. 2. 6 La La Etapa III en Cu.....	57
1. 4. 2. 7 Las Etapas I, II y III en Cu, a partir de la Recuperación de la Tensión Crítica Resuelta de Corte.....	59
1. 4. 2. 8 La Etapa IV en Cu.....	60
1. 4. 2. 9 La Etapa V en Cu.....	61
NOTAS.....	65
§ 1. 5 Fundamentación del Presente Trabajo de Tesis.....	84
§ 1. 5. 1 Importancia del Tema.....	84
§ 1. 5. 2 Antecedentes en el Tema del Grupo Daño por Radiación (DxR-CNEA).....	84
§ 1. 5. 3 Aspectos Discutidos de la Etapa V.....	85
§ 1. 5. 4 Elección de las Condiciones Experimentales del Presente Trabajo.....	86
§ 1. 5. 5 Plan de Trabajo.....	87
§ 1. 5. 6 Aporte Original más Relevante del Presente Trabajo de Tesis.....	89
REFERENCIAS.....	90

II. SEGUNDA PARTE: DESARROLLO EXPERIMENTAL.....	97
CAPITULO II.1: LAS PROBETAS MONOCRISTALINAS DE COBRE.....	98
§ II. 1 La Fabricación de las Probetas.....	98
§ II. 1. 1 El Material de Base.....	98
§ II. 1. 2 Los Crisoles.....	98
§ II. 1. 3 El Equipo de Crecimiento de Monocristales.....	100
§ II. 1. 4 Caracterización de las Probetas.....	102
II. 1. 4. 1 La Orientación de las Probetas.....	102
II. 1. 4. 2 Medición de las Secciones.....	102
§ II. 1. 5 El Recocido Preirradiación.....	103
§ II. 1. 6 La Medición de la Tensión Crítica Resuelta de Corte.....	103
II. 1. 6. 1 El Ensayo de Tracción a 77 K.....	103
II. 1. 6. 2 La Velocidad de Deformación.....	103
II. 1. 6. 3. La Tensión Crítica Resuelta de Corte Preirradiación.....	104
II. 1. 6. 3. 1 Análisis de un Ensayo Tipo.....	104
CAPITULO II. 2: LA PRODUCCIÓN DE DEFECTOS.....	108
§ II. 2 Facilidades de Irradiación.....	108
§ II. 2. 1 El Reactor RA-1.....	108
§ II. 2. 2. El Criostato.....	110
§ II. 2. 3 Decaimiento Nuclear del Cu Irradiado con Neutrones.....	112
CAPITULO II. 3: EL RECUPERADO TÉRMICO.....	113
§ II. 3 Los Dispositivos de Recuperado Térmico.....	113
§ II. 3. 1 Descripción del Equipo de Recocidos Utilizado en esta Tesis.....	113
II. 3. 1. 1 El Equipo de Recocidos para Recuperados Isócronos e Isotérmicos a Baja Temperatura.....	113
II. 3. 1. 2 La Modificación del Equipo de Recocidos para el Estudio de la Etapa V.....	114
II. 3. 1. 3 Diseño de un Horno para el Recuperado Térmico de Probetas de Tracción entre 70 y 700 K.....	115
§ II. 3. 2 Estudio de los Pulsos de Temperatura.....	116
II. 3. 2. 1 Criterio de Corrección para los Pulsos de Temperatura.....	121

§ II. 3. 3 El Recuperado Isócrono y la Tensión de Fluencia.....	123
NOTAS.....	126
REFERENCIAS.....	128
 III. RESULTADOS EXPERIMENTALES.....	 130
§ III. 1 Primera Serie.....	132
§ III. 1. 1 Recuperado Isócrono correspondiente a la Etapa V de la TCRC _{77K} en Cu Irradiado con Neutrones a 350 K y Dosis $\sim 10^{22}$ n m ⁻²	132
§ III. 1. 2 Comparación de las Probetas Cu 29-2 y Cu 26-1.....	134
§ III. 2 Segunda Serie.....	135
§ III. 2. 1 Recuperado Isócrono correspondiente a la Etapa V de la TCRC _{77K} en Cu Irradiado con Neutrones a 77 K y Dosis $\sim 4.5 \times 10^{20}$ n m ⁻²	135
§ III. 2. 2. La Probeta Cu 26-2 (Recuperación desde 200 hasta 623 K (- 73 a 50 °C)).....	136
§ III. 2. 3 La Probeta Cu 32-1 (Recuperación desde 453 hasta 593 K (180 a 320 °C)).....	137
§ III. 2. 4 Comparación entre las Probetas Cu 26-1 y Cu 32-1.....	139
§ III. 2. 5 Comparación de la Probeta Cu 32-1 con las probetas de la Primera Serie (Cu 29-2 y Cu 26-1).....	139
§ III. 3 Tercera Serie.....	140
§ III. 3. 1 Recuperado Isócrono correspondiente a la Etapa V de la TCRC _{77K} en Cu Irradiado con Neutrones a 77 K y a Dosis $\sim 4.5 \times 10^{20}$ n m ⁻² . Etapas Va, Vb y Vc	140
§ III. 3. 2 La Probeta Cu V-2 (Etapa Va).....	141
§ III. 3. 3 La Probeta Cu V-8 (Estudio de Etapas Vb y Vc).....	142
§ III. 3. 4 La Probeta Cu V-1 (Estudio de Etapas Vb y Vc).....	143
§ III. 3. 5 Comparación entre las Probetas Cu V-2, Cu V-8 y Cu V-1.....	144
§ III. 3. 6 Comparación con las Probetas Anteriores.....	144
§ III. 4 Cuarta Serie.....	145

§ III. 4. 1 Recuperado Isócrono correspondiente a la Etapa V de la TCRC _{77K} de la Probeta Cu 4 Irradiada con Neutrones a Bajas Dosis y Temperatura (involuntariamente calentada a temperatura ambiente).....	145
§ III. 4. 2 Los Recuperados Isotérmicos.....	147
III. 4. 2 1 Determinación de la Energía de Activación Aparente de la Etapa Vc.....	148
§ III. 5. Quinta Serie.....	154
§ III. 5. 1 Recuperado Isócrono correspondiente a la Etapa V de la TCRC _{77K} de la Probeta Zn 8-2, Irradiada con Neutrones a Bajas Dosis y Temperatura	154
REFERENCIAS.....	156
IV. DISCUSIÓN DE LOS RESULTADOS EXPERIMENTALES.....	157
NOTAS.....	169
REFERENCIAS.....	170
CONCLUSIONES.....	172
PERSPECTIVAS FUTURAS.....	173
PUBLICACIONES Y PRESENTACIONES A CONGRESOS.....	174

Resumen

La irradiación con partículas energéticas es una de las técnicas más utilizadas para introducir, en forma controlada, *defectos*, en las redes cristalinas metálicas.

La presencia de *defectos* altera sensiblemente las propiedades físicas de los materiales. Si se eligen *observables físicos* lo suficientemente sensibles a estas estructuras de defectos, se puede obtener información acerca del tipo, de la configuración espacial, de la concentración, y de las cinéticas de reacción, entre los mismos.

La aplicación de tratamientos térmicos postirradiación permite proporcionar, en forma gradual, las energías de activación necesarias para lograr la recombinación de los defectos y la consecuente recuperación de la propiedad física elegida. De este modo se obtienen las llamadas "*Etapas de Recuperación*" del observable físico en cuestión, cuyos rasgos generales, si bien son comunes a todos los metales, identifican en forma unívoca a cada uno de ellos.

El tema del presente Trabajo de Tesis es: "El Recuperado Térmico ($T > 450\text{ K}$) de los Aglomerados de Defectos producidos por Irradiación Neutrónica a Bajas Dosis y a 77 K en Cu de alta pureza, a través de la Tensión Crítica Resuelta de Corte, medida a 77 K ".

El recuperado térmico mencionado corresponde a la última etapa de recuperación del Cu, *la Etapa V*, la cual ha sido muy poco estudiada. La misma se asocia generalmente a la *disociación de los aglomerados de vacancias con la aniquilación sistemática de los aglomerados de intersticiales por vacancias térmicas*.

Pero los detalles de este proceso no están bien establecidos y su esclarecimiento, desde un punto de vista básico, es de fundamental importancia para la comprensión y predicción de los fenómenos asociados a las inestabilidades estructurales que ocurren en los materiales expuestos a severos entornos de radiación.

En este trabajo, los aglomerados de defectos se introducen en las probetas de tracción monocristalinas de cobre, mediante la irradiación neutrónica en el criostato instalado dentro del reactor RA-1 de la CNEA, a 77 K y dosis inferiores a la de saturación ($4.5 \times 10^{16}\text{ n cm}^{-2}$). Esta elección de las condiciones experimentales asegura la no superposición de las cascadas de desplazamientos atómicos y la estabilidad de los defectos creados a la deformación plástica (ausencia de canalización de dislocaciones).

La Tensión Crítica Resuelta de Corte medida a 77 K , $TCRC_{77\text{K}}$, es un observable físico ideal para el estudio de la Etapa V. Los aglomerados de defectos actúan como obstáculos al movimiento de las dislocaciones dando lugar a un enorme incremento de esta propiedad, conocido como *fenómeno de endurecimiento*. El 75 % del daño introducido durante la irradiación es recuperado en la Etapa V, medida por esta propiedad, mientras que sólo el ~15 % es retenido en esta Etapa cuando la recuperación se mide a través del incremento de la resistividad eléctrica.

A partir de los recuperados isócronos e isotérmicos de la $TCRC_{77\text{K}}$, en el presente trabajo, se pudo establecer, por primera vez y con esta técnica, la existencia de, al menos, tres subetapas de recuperación ubicadas en los intervalos de temperatura: ~ $220\text{--}250\text{ }^{\circ}\text{C}$ (Va), ~ $250\text{--}290\text{ }^{\circ}\text{C}$ (Vb) y ~ $290\text{--}325\text{ }^{\circ}\text{C}$, demostrando en forma concluyente, que el proceso de disolución de los aglomerados que tiene lugar en esta etapa es multiactivado.

Palabras claves: Endurecimiento, Irradiación, Cobre, Recuperado Térmico, Etapas de Recuperación

Abstract

The irradiation with energetic particles is one of the most common techniques to introduce defects in a controlled way in metallic lattices.

Defects alter sensitively the physical properties of the materials. By choosing physical observables sensitive enough to these defect structures it is possible to obtain knowledge about the type, space configuration, concentration and kinetic reactions involved.

Post-irradiation thermal annealings provide the activation energies necessary to recombine defects and the consequent recovery of the choosed physical property. In this way, the so called "*Recovery Stages*" of the physical observable could be obtained, whose general characteristics identify univocally the studied metal.

The subject of this Ph. D. thesis is: "*Thermal annealing ($T > 450\text{ K}$) of the defect clusters induced by neutron irradiation at low dose at 77 K in high purity copper, through the Critical Resolved Shear Stress mesured at 77 K , $CRSS_{77K}$* ".

This thermal annealing corresponds to the least studied last recovery stage of copper: the **Stage V** which is generally associated with the dissociation of the vacancy clusters with the systematic annihilation of the interstitial clusters by thermal vacancies.

It is fundamental to know the details of this process in order to understand and to predict the phenomena associated with the structural instabilities that occur in materials exposed to severe irradiation environments.

In the present work, the defect clusters were introduced into copper single crystals by neutron irradiation at liquid nitrogen in the RA-1 reactor of the Comisión Nacional de Energía Atómica (CNEA) up to a fast neutron dose of $4.5 \times 10^{16}\text{ n cm}^{-2}$. These experimental conditions prevent any superposition of the atomic displacements cascades and the stability of the plastic deformation of the defects (absence of dislocation channeling).

The $CRSS_{77K}$ is an ideal physical observable to study the Stage V. The defect clusters act like obstacles to the dislocation movement producing an enormous increment of the CRSS: the *radiation hardening*. When the recovery is mesured through the increment of the CRSS, the 75 % of the radiation damage is recovered in Stage V, while only the 15 % is recovered when it is measured by the increment of the electrical resistivity.

From the isochronal and isothermal annealings of the $CRSS_{77K}$, it was possible to establish in the present work, for the first time and with this technique, the existence of at least three recovery substages in the temperature intervals: $\sim 220\text{-}250\text{ }^{\circ}\text{C}$ (Va), $\sim 250\text{-}290\text{ }^{\circ}\text{C}$ (Vb) y $\sim 290\text{-}325\text{ }^{\circ}\text{C}$. In this way, it is conclusively demonstrated that the dissolution of the clusters process of this stage is multiactivated, i.e., exists a spectrum of activation energies.

Keys words: Radiation Hardening, Copper Single Crystals, Annealing, Recovery Stages.

Primera Parte

Introducción Teórica

En esta Primera Parte se presenta la fundamentación teórica a lo realizado en Desarrollo Experimental, Segunda Parte, y en Resultados Experimentales, Tercera Parte.

El orden seguido en esta Introducción coincide con el de las etapas sucesivas del presente trabajo.

En el *Capítulo I. 1* se presenta la caracterización del *Estado Preirradiación*.

Se define:

- el observable físico utilizado, es decir, la Tensión Crítica Resuelta de Corte medida a 77 K (TCRC_{77K}), § I. 1. 1,
- las condiciones de orientación requeridas para asegurar la activación de un único sistema de deslizamiento durante la deformación plástica de un monocristal de Cu sometido a un ensayo de tracción uniaxial a 77 K, que son las buscadas en este trabajo, § I. 1. 2,
- la Deformación Resuelta de Corte, § I. 1. 3.

A partir de la dependencia de la TCRC con la foresta de dislocaciones iniciales se fundamentan los recocidos preirradiación, I. 1. 4. 1 y, a partir de su dependencia con la pureza del material, la elección de cobre (99 999 %) como material base, I. 1. 4. 2.

El estado preirradiación se caracteriza a partir de las *curvas de tensión-deformación resuelta*, § I. 1. 5, que sirven de referencia para caracterizar, luego, al estado postirradiación.

Se presentan los estudios de *micro y macroplasticidad* en monocristales de Cu, similares a los utilizados en el presente trabajo, I. 1. 5. 1 y I. 1. 5. 2, que fundamentan el criterio elegido para la introducción de la menor perturbación posible en los ensayos realizados durante el recuperado térmico de las probetas.

La validez de la realización de los recuperados isócronos e isotérmicos para estudiar la disolución de los aglomerados de defectos introducidos durante la irradiación neutrónica se presenta en § I. 1. 6.

En el *Capítulo I. 2* se fundamenta la necesidad de *introducir los defectos en la red cristalina mediante la irradiación neutrónica* a baja temperatura para lo cual es necesario conocer la distribución de la energía de los neutrones en un reactor similar al RA-1-CNEA, § I. 2. 1, y el camino libre medio de los neutrones en Cu, § I. 2. 2.

Discutida la elección del proyectil, se continúa luego con el análisis de las cascadas de desplazamientos atómicos, inicializadas por los átomos desplazados primarios (PKAs), originados por los neutrones § I. 2. 3.

El proceso de disipación de la energía cinética de un átomo de la red al que le ha sido transferida suficiente energía, pasa por distintas etapas de frenado (disipación inelástica, fase balística y etapa de colisiones colectivas) cada una de las cuales se puede caracterizar con diferentes valores de energía. El modelo LSS es el adoptado en el presente trabajo, § I. 2. 4, para el cálculo de estas energías umbrales.

En el *Capítulo I. 3* se presenta el *fenómeno de endurecimiento* a partir de la modificación ocurrida en las curvas de Tensión Resuelta-Deformación Resuelta de monocristales de Cu irradiados con neutrones a dosis crecientes y a temperatura de reactor § I. 3. 1.

La inestabilidad de los defectos creados por irradiación neutrónica a la deformación plástica, *canalización de dislocaciones*, se manifiesta en la indefinición de la Tensión Crítica Resuelta de Corte a dosis por encima de la cual se inicia el fenómeno de canalización (*dosis de transición*). Luego es necesario analizar la dependencia del endurecimiento con el tiempo de irradiación en cobre irradiado a baja temperatura, § I. 3. 2.

Para las condiciones experimentales de este trabajo, el modelo teórico que mejor explica el endurecimiento a bajas dosis y temperatura es el de *endurecimiento debido a las zonas desnudas*, de Seeger, § I. 3. 4. En I. 3. 4. 1 se presentan las predicciones más importantes del mismo y las contrastaciones experimentales, en Cu.

La baja tensión de fluencia inicial requerida para los monocristales producidos para este trabajo, ya analizada en el capítulo I. 1, es necesaria para que valga la aditividad simple de los mecanismos de endurecimiento y sea lícito el uso de los resultados teóricos adoptados en este trabajo, § I. 3. 5.

El *Capítulo I. 4* corresponde a *las Etapas de Recuperación Térmica en Cu irradiado con neutrones*. En el presente trabajo la atención está dirigida a la disolución térmica de los aglomerados de vacancias originados durante la irradiación neutrónica, que ocurre en el intervalo de temperatura correspondiente a la Etapa V. Se presentan, § I. 4. 1, conceptos básicos referidos a la naturaleza de estos aglomerados con el único objetivo de fundamentar la alta estabilidad térmica de los mismos. Los recuperados isócronos de alguna propiedad física, sensible a los defectos creados por irradiación, permiten determinar las distintas etapas de recuperación en los metales. Una presentación general de los mismos se realiza en § I. 4. 2 que permite fundamentar la mayor parte de lo realizado en la Tercera Parte de este trabajo y la elección del cobre como el metal ideal para el estudio de la misma. En § I. 4. 3 se fundamenta la elección de la TCRC para el estudio de esta Etapa V.

Debido a que la Etapa V es la última etapa de recuperación, en § I. 4. 4 se realiza una revisión de las etapas previas comparando los resultados obtenidos en Cu de alta pureza, luego de irradiar a baja temperatura ya sea con electrones o con neutrones. Se pone especial atención al efecto de saturación que está íntimamente ligado a lo discutido en § I. 3. 2.

El Capítulo finaliza con la presentación de la Etapa V en Cu, la cual ha sido muy poco estudiada. Se muestran, para su comparación, los resultados de la recuperación isócrona del incremento de la resistividad eléctrica y de la TCRC obtenidos en dos trabajos clásicos, independientes. El último, en particular, fue realizado en las condiciones experimentales que fueron seriamente discutidas en el capítulo I. 3.

Cada capítulo presenta los aspectos relevantes de cada uno de los temas necesarios para la justificación y comprensión de lo realizado en el presente Trabajo.

A lo largo de los mismos, y para agilizar su lectura se ha incluido:

- una serie de *notas*, cada una de las cuales se indica con un supraindice en el texto, que se desarrolla al final de la sección. Las notas contienen definiciones de conceptos utilizados, cálculos adicionales, comentarios ilustrativos, valores característicos de las magnitudes, etc. La no lectura de las mismas no representa pérdida alguna de continuidad de los temas presentados
- Abundancia de figuras a partir de las cuales se presentan o discuten distintos conceptos y resultados

Al final de esta Primera Parte se encuentra la fundamentación del presente trabajo, § I. 5, que incluye la importancia del tema de estudio, los antecedentes y aspectos discutidos de la Etapa V, la elección de las condiciones experimentales y el Plan de Trabajo. Las referencias bibliográficas -indicadas en el texto con números entre corchetes- cierran la sección.

Capítulo 1

“El estado pre-irradiación”

CAPITULO I. 1: LAS PROPIEDADES MECÁNICAS EN MONOCRISTALES METÁLICOS CÚBICOS CENTRADOS EN LAS CARAS

§ I. 1. 1 La Tensión Crítica Resuelta de Corte

Para un *monocristal* ensayado *uniaxialmente en tensión*, el deslizamiento comienza cuando la tensión de corte, sobre el plano de deslizamiento, alcanza un valor umbral llamado *Tensión Crítica Resuelta de Corte*, τ . Esta magnitud se expresa analíticamente mediante la Ec. I. 1. 1 [1].

$$\tau = \frac{P}{A} \cos \phi \cos \lambda \quad \text{Ec. I. 1. 1.}$$

Siendo:

P la carga externa aplicada

A el área de la sección transversal del cristal

ϕ el ángulo entre la normal al plano de deslizamiento y el eje de tracción

λ el ángulo que forma la dirección de deslizamiento con el eje de tracción.

La Fig. I. 1. 1. muestra un esquema ilustrativo del cálculo de la Tensión Resulta de Corte en monocristales, expresada en la Ec. I. 1. 1.

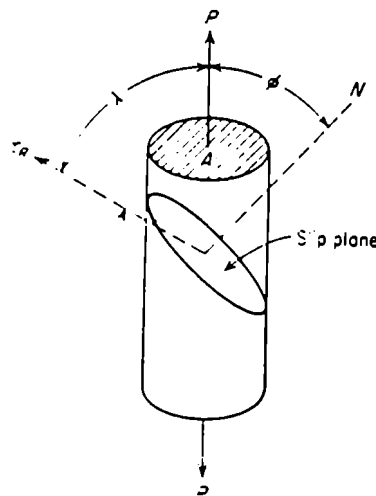


Fig. I. 1. 1. Diagrama ilustrativo del cálculo de τ en probetas de tracción monocristalinas [1a]

La dependencia angular de la Ec. I. 1. 1. es el llamado *factor de Schmidt*, m . Representa el cociente entre τ y la tensión axial.

El análisis de *la relación general entre τ y m* es sencillo cuando el deslizamiento ocurre en un único sistema. Este es el caso de los metales hexagonales. Los mismos deslizan en el sistema basal $T = \{0001\}$; $t = \langle 11\bar{2}0 \rangle$, donde T indica planos de traslación fundamentales y t direcciones de traslación. La influencia de la orientación para el caso del cinc se ilustra en la Fig. I. 1. 2 (a)

Los puntos marcados con cruces representan los valores obtenidos experimentalmente, y los ángulos indicados en las abscisas se refieren a los valores correspondientes al ángulo χ° .

complementario a ϕ° , que varían entre cero y 90° . Aceptada la constancia de τ , los valores de P/A vs m , caerán sobre una hipérbola equilátera hasta $\chi^\circ = 45^\circ$, la que luego se reproducirá invertida hasta $\chi^\circ = 90^\circ$. El factor de Schmid varía desde cero hasta alcanzar el valor máximo de 0.5, a partir del cual vuelve a cero nuevamente.

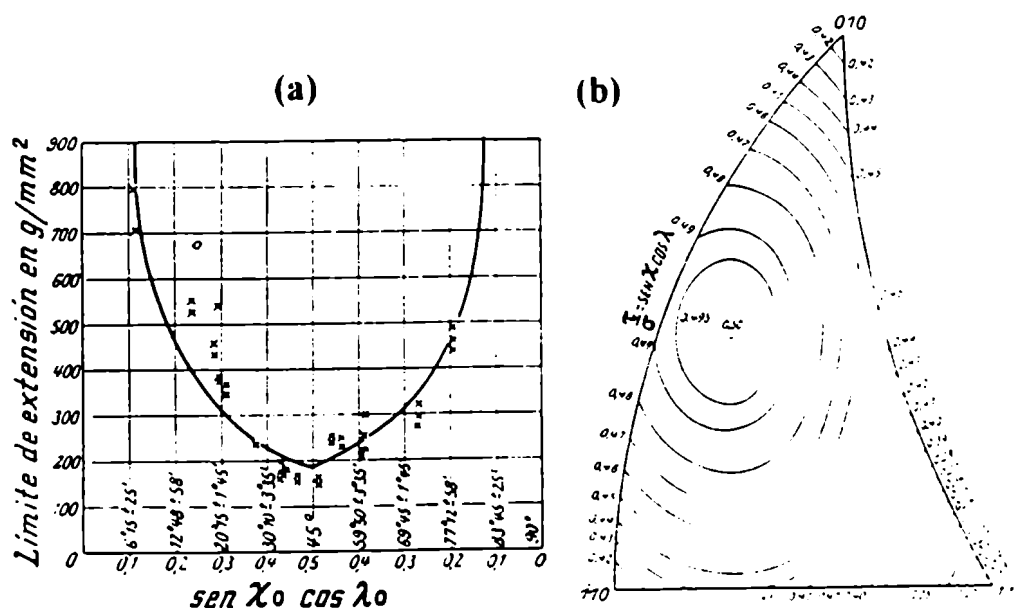


Fig. 1.1.2 Relación entre el límite de extensión y el factor de Schmidt (P/A vs m) para (a) monocristales hexagonales y (b) cristales cúbicos centrados en las caras [2].

En los metales cúbicos centrados en las caras, ccc, no se puede obtener una relación tan sencilla entre la τ y m , como la representada. En estos metales pronto aparecen los restantes sistemas de deslizamiento equivalentes¹

La Fig. 1.1.2 (b) muestra un modelo para el sistema $T/t = (111)/[011]$, del triángulo limitado por las caras $[\bar{1}10]$, $[010]$ y $[\bar{1}\bar{1}1]$. Las curvas de nivel trazadas en este modelo representan el lugar geométrico de las direcciones para las cuales m es constante. A partir de la Ec. 1.1.1, el punto señalado como cota máxima, 0.50, indica la dirección en que el P/A es un mínimo según lo exige la constancia de τ . A partir de este punto, las curvas señalan valores decrecientes, o sea que P/A aumenta, hasta alcanzar el máximo absoluto en la dirección $[\bar{1}\bar{1}1]$, de la diagonal del cubo en que el valor es 0.27. Si se llevan estos resultados a una figura sólida, que represente en coordenadas polares la variación de P/A , el resultado se muestra en la Fig. 1.1.3

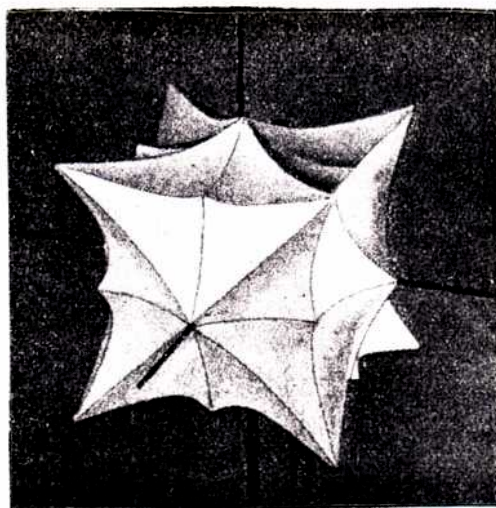


Fig. I. 1. 3 Sólido que representa en coordenadas polares la variación del límite de extensión (P/A) en la celda primitiva de un cristal ccc [2a].

En ella se ven los máximos correspondientes a las diagonales del cubo, $\langle 111 \rangle$, los que corresponden a las diagonales de las caras, $\langle 110 \rangle$, y a las aristas $\langle 100 \rangle$, que señalan las tres direcciones límites del triángulo. Si se divide 0.50 por 0.27, se obtiene la relación de 1.84, que se atribuye entre los valores máximo y mínimo de P/A en este sistema. Esta relación es muy inferior a la del sistema hexagonal, donde para el caso del cadmio (Cd) y el magnesio (Mg) el factor llega a 40.

§ I. 1. 2 La Deformación en Monocristales CCC, Favorablemente Orientados para el Deslizamiento Simple en Tensión

De los 12 sistemas de deslizamiento posibles para los metales ccc, *el sistema de deslizamiento primario* será aquél de los $T = \{111\}$ $t = \langle 110 \rangle$ que maximice el factor de Schmid, es decir, minimice la relación P/A, según lo explicado en § I. 1. 1. La determinación del mismo se realiza ubicando el polo del eje de tracción, cuya dirección es la del eje de la probeta, en el correspondiente triángulo esférico de la proyección estereográfica "standard" para el sistema cúbico².

La Fig. I. 1. 4, ilustra el caso en que el polo del eje de tracción cae en el triángulo formado por los polos $[001]$, $[\bar{1}11]$, $[011]$. El mismo tiene por sistema al plano (111) y la dirección $[\bar{1}01]$ que se indica $(111)/[\bar{1}01]$. Los polos A, B, C y D representan las normales de los planos $\{111\}$. Las direcciones están indicadas de I a IV. En el caso particular ilustrado, con el polo del eje tracción ubicado en el punto P, el sistema operativo es B-IV. Los ángulos ϕ° y λ° , están dados por los grandes círculos B-P-IV. A medida que progresa el ensayo, el espécimen se alarga. El eje P alcanza el borde $[001]$ - $[\bar{1}11]$ en P'. Ahora se vuelven operativos dos sistemas de deslizamiento, el primario y *el conjugado* $(\bar{1}\bar{1}1)[011]$. En este punto la deformación procede en dos sistemas de deslizamiento simultáneos produciendo el llamado *deslizamiento doble o múltiple*³. Alcanzado el punto medio entre las dos direcciones operativas, $[\bar{1}12]$, el espécimen se angosta y fractura. La introducción del deslizamiento doble interrumpe la rotación libre del sistema de deslizamiento.

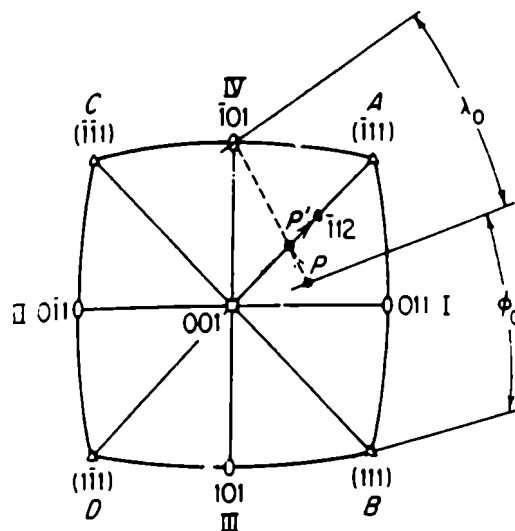


Fig. 1.1.4 Esquema que representa el avance de la deformación plástica, sobre la proyección estereográfica [001] de cristales orientados favorablemente para el deslizamiento simple en tensión [1a].

§ 1.1.3 La Deformación Resuelta en Monocristales CCC

Debido a que las mordazas deben permanecer alineadas cuando la probeta está en tensión, el espécimen no deforma libremente por deslizamiento uniforme. En su lugar los planos de deslizamiento rotan hacia el eje de tracción que permanece fijo. El aumento de longitud medida en el espécimen, para una dada cantidad de deslizamiento, dependerá de la orientación del plano de deslizamiento y de la dirección del eje del espécimen como se explicó en § 1.1.2.

La medida fundamental de deformación plástica en un monocristal, es la *Deformación Resuelta de Corte*, γ , dada por la Ec. 1.1.2.

$$\gamma = \frac{1}{\sin \chi} \left(\frac{L_1}{L} - \sin^2 \lambda'' \right) \quad \text{Ec. 1.1.2}$$

La misma puede determinarse a partir de ϕ° , λ° y de la extensión $L_1 = L_0 + \Delta l$. La deducción de esta expresión se puede ver en [1a]. Si es posible determinar la orientación durante la deformación, γ se calcula a partir de la Ec. 1.1.3.

$$\gamma = \frac{\cos \lambda_1}{\sin \chi_1} - \frac{\cos \lambda''}{\sin \chi''} \quad \text{Ec. 1.1.3}$$

§ I. 1. 4 Otras Dependencias de la Tensión Crítica Resuelta de Corte

El valor de τ en monocristales depende, además de la geometría de la probeta, de la orientación del eje de tracción y de la carga externa aplicada, como ya se discutió a partir de la Ec. I. 1. 1, de la *densidad de dislocaciones* presentes en el monocristal, y de la *pureza* del material. El resultado se refleja en importantes variaciones del valor de la Tensión Crítica Resuelta de Corte que va desde valores tan bajos como 50 g/mm^2 hasta centenas de g/mm^2 (MPa).

I. 1. 4. 1 Dependencia de la Tensión Resuelta de Corte con la Foresta de Dislocaciones Presentes en Monocristales de Cobre

La dependencia de τ con la foresta de dislocaciones presentes en el cristal, N_f , ajusta a la expresión analítica dada en la Ec. I. 1. 4 [3].

$$\tau''' = \tau'''' + \alpha_0 G b \sqrt{N_f} \quad \text{Ec. I. 1. 4}$$

Siendo:

$$\tau'''' = 6 \text{ g/mm}^2$$

$$\alpha_0 = 0.62$$

G el Módulo de Corte

b el vector de Burgers.

τ'''' corresponde a $N_f = 0$, es decir, la componente de τ no ligada a la foresta y debida a impurezas o tensiones de fricción. El pequeño valor de esta contribución no es sorprendente, ya que se sabe que en cobre las dislocaciones se mueven a Tensiones Resueltas de Corte de 1 g/mm^2 [4]. La Fig. I. 1. 5 ilustra esta dependencia.

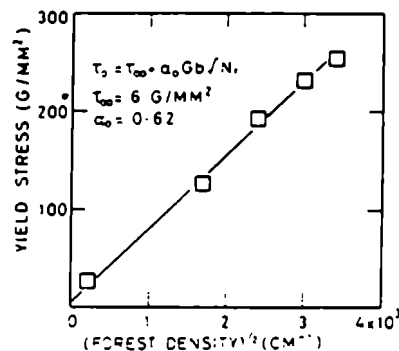


Fig. I. 1. 5 Relación entre la Tensión Resuelta de Corte τ , (que en el presentetrabajo se denota como τ''') y la foresta de dislocaciones $N_f^{1/2}$ [3].

I. 1. 4. 2 Dependencia de la Tensión Crítica Resuelta de Corte con la Pureza del Material

La dependencia de τ con la pureza de los monocristales de Cu. fue estudiada, entre otros, por F. D. Rosi [5].

La Fig. I. 1. 6 muestra la dependencia con la pureza de dos monocristales de Cu. con orientaciones similares, cercanos al polo [110]. La primer etapa de deformación, es más prominente en los metales menos puros.

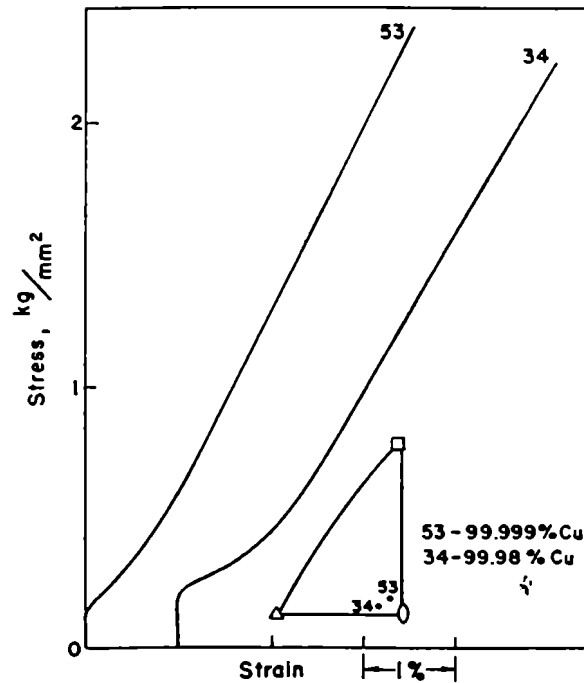


Fig. I. 1. 6 Curvas de τ vs γ % para cristales de Cu. similarmente orientados, y de diferente pureza [5].

§ I. 1. 5 Curvas de Tensión Resuelta vs Deformación Resuelta para Monocristales de Cu Deformados a 77 K.

A partir de las *curva de carga (P) vs elongación (Δx)*, que se obtienen en un ensayo de tracción, se representa, usando las Ec. I. 1. 1 y Ec. I. 1. 2 la de *Tensión Resuelta de Corte vs Deformación Resuelta*, τ vs γ , a partir de la cual se obtiene el valor de la Tensión Crítica, que es el observable utilizado en esta Tesis¹. La Fig. I. 1. 7 muestra la dependencia de las distintas regiones de la curva con la orientación del cristal.

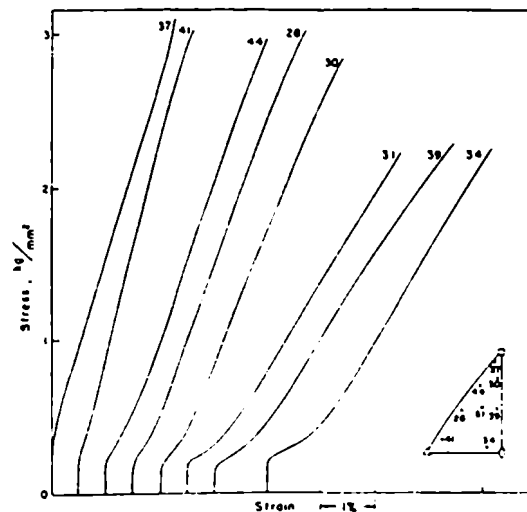


Fig. I. 1. 7 τ vs γ % para cristales de Cu 99.98% de diferentes orientaciones [5].

Para el presente trabajo, debido a las bajas deformaciones que se introducen en la probeta, sólo es de interés la primera etapa (*etapa I*) llamada de *deslizamiento fácil*. En esta etapa el cristal sufre *muy poco endurecimiento por trabajado*. Las dislocaciones son capaces de moverse distancias relativamente grandes sin encontrar *barreras*. El bajo endurecimiento por trabajado implica que la mayor parte de las dislocaciones alcanzan la superficie del metal (aparición de líneas de deslizamiento). Durante esta etapa en el cobre el deslizamiento ocurre en un único sistema, de los 12 posibles.

A continuación se presenta el comportamiento general de monocristales de Cu, similares a los utilizados en este trabajo. Se parte del estudio del comportamiento plástico a pequeñas deformaciones (*microplasticidad*) para luego presentar el comportamiento en ensayos similares a los realizados en el presente trabajo

I. 1. 5. 1 La Microplasticidad en Monocristales de Cu Favorablemente Orientados para el Deslizamiento Simple, a 77 K.

La tensión requerida para producir la deformación plástica de 2×10^{-6} (10^{-6} Yield) se ha medido desde 77 K hasta 300 K para estudiar la dependencia con la temperatura del ensayo⁵. El valor dado corresponde al resultado de cargar y descargar sucesivamente la probeta, con cargas crecientes, medir la deformación mediante la señal dada por extensómetros de alta sensibilidad colocados en los extremos de la probeta hasta observar una deformación permanente. Para analizar la dependencia con la densidad de dislocaciones se introduce una predeformación en las probetas. La Fig. I. 1. 8 muestra la tensión de fluencia " 10^{-6} Yield" en cristales de Cu, y Al y en material policristalino.

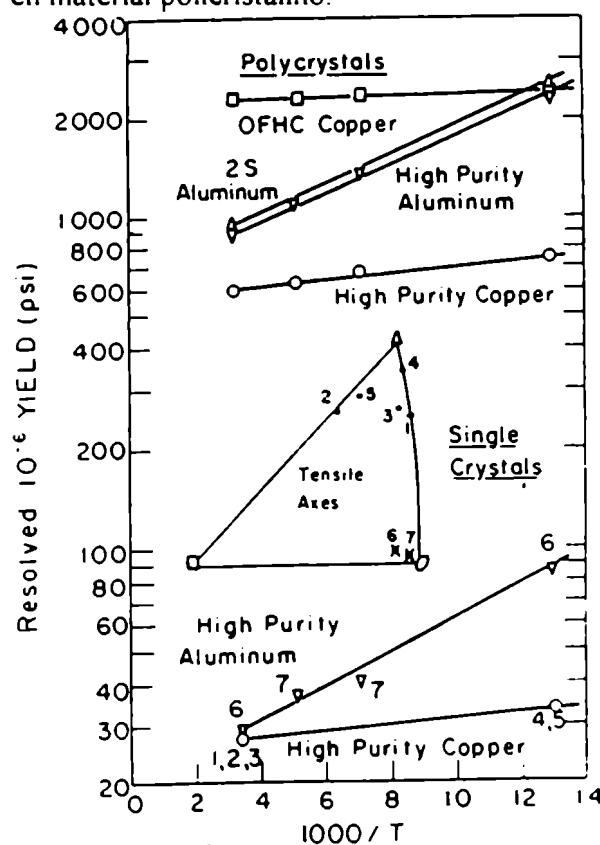


Fig. I. 1. 8. El 10^{-6} Yield en monocristales de Al y Cu y en Policristales [6]

La Tabla I. 1. 1 muestra los valores hallados del 10^{-6} Yield, el Módulo de Young (E) y la relación entre los valores de Yield (Y) y el módulo E para ensayos a temperaturas del nitrógeno líquido (-196 °C) y ambiente (25 °C) de probetas poli y monocristalinas de alta pureza [6].

	10 ⁻⁶ Yield (psi)		E (10 ⁶ psi)		Y(-196)/Y(25)	E(-196)/E(25)
	25 °C	-196 °C	25 °C	-196 °C		
Cu (99.999%) policrst.	600	750	18.5	19.4	1.3	1.05
Cu (99.999%) monocríst.	27	32	25.6	27	1.2	1.06

Tabla I. 1.1 [6].

Se observa que para estos monocristales los valores de 10^{-6} Yield (0.021 kgf/mm^2) son de un orden de magnitud menor que los obtenidos para policristales de alta pureza⁶

La influencia sobre la Tensión de Corte Resuelta del cargar y descargar repetidamente la probetas se muestra en la Fig. I. 1. 9.

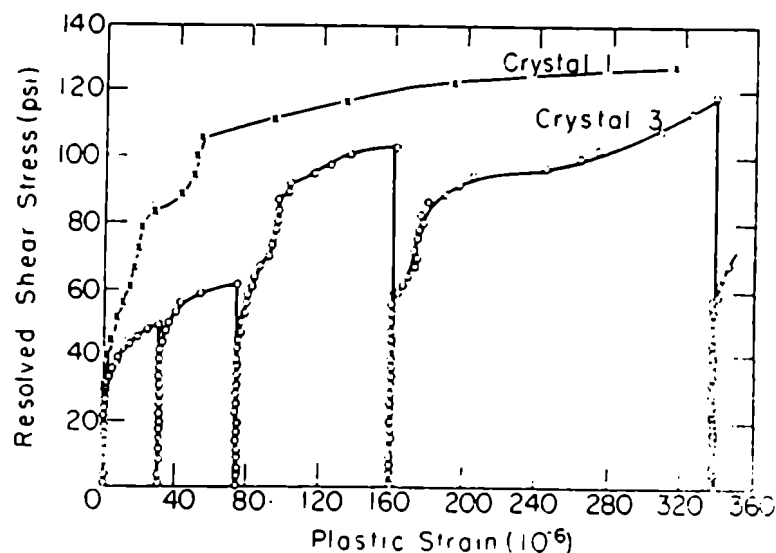


Fig. I. 1. 9 Efecto de aumentar progresivamente la deformación resuelta en monocristales de Cu a 25 °C [6]

El 10^{-6} Yield aumenta de 30 psi a 60 psi luego de una deformación plástica resuelta, $\gamma = 160 \times 10^{-6}$. Si se continúa la deformación plástica mas allá de este valor, no se observa ningún incremento adicional. Un rasgo interesante es el escalón en la temprana porción de la curva. La región de deslizamiento fácil (*easy glide*) se observa a valores de 100 psi (0.07 kgf/mm^2). Luego en monocristales muy puros y a 25 °C para deformaciones del orden de $\gamma = 2 \times 10^4$ se está en la región de deslizamiento simple y es allí donde se toma el valor clásico de la Tensión Crítica Resuelta de Corte.

I. 1. 5. 2 La Macroplasticidad en Monocristales de Cu, Favorablemente Orientados para el Deslizamiento Simple, a 77 K

La Fig. I. 1. 10 muestra la Tensión Resuelta de Corte vs la Deformación Resuelta de Corte para un par de monocristales de Cu, de alta pureza, crecidos en forma similar a los de este trabajo. Una deformación se realizó a 77 K y la otra a 300 K [7].

Para ilustrar la transición de la zona microplástica a la plástica la parte inicial de la curva se muestra en una escala expandida para pequeñas deformaciones. Las curvas de la parte inferior se muestran en el rango completo, es decir desde el inicio del ensayo hasta la tensión resuelta de corte correspondiente a la tensión de fractura (Ultimate Critical Shear Stress). Se indican con flechas los puntos donde debe ocurrir el deslizamiento doble.

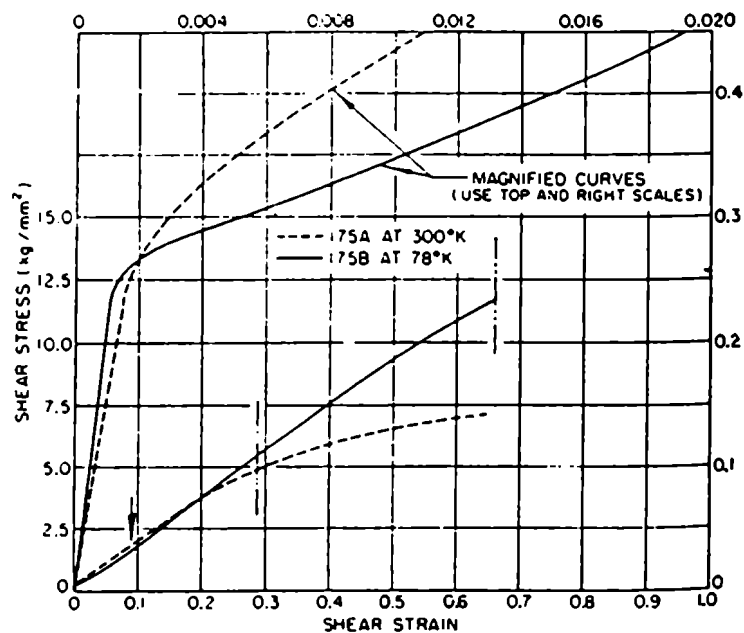


Fig. I. 1. 10. Curva de τ vs γ de los cristales 175A y 175B. La probeta 175A fue deformada a 300 K y la 175B a 78 K. Las flechas indican la deformación de corte a la cual el eje del espécimen entra en el plano dodecaédrico. Las líneas de puntos verticales denotan la deformación de corte a la cual se realizaron medidas de resistividad a temperatura ambiente [7].

A partir de estos ensayos se concluye que:

a) la Tensión Crítica Resuelta de Corte, es independiente de la temperatura de ensayo en el rango entre 78 K y 300 K. El valor medio obtenido para toda la serie de cristales estudiados es **0.237 kgf/mm^2 para 78 K y 0.269 kgf/mm^2 para 300 K**. Aquí se puede observar que el valor de τ es mucho más alto que el correspondiente a los cristales usados en los estudios de microplasticidad I. 1. 5. 1

b) para deformaciones de corte $\gamma < 0.25$, la velocidad de endurecimiento por trabajado es menor para 300 K que para 78 K. Los valores del endurecimiento por trabajado inicial fueron de **$15.35 \text{ kgf/mm}^2/\gamma$** .

c) la mayor velocidad del endurecimiento por trabajado y el valor más bajo de la tensión de fractura, se da en especímenes en los que el polo del eje de tracción está más cerca del plano dodecaédrico (§ 1. 1. 2).

d) el deslizamiento doble se inicia, dependiendo de la orientación de la probeta, para valores de $\gamma > 0,10$.

Lo interesante es que la relación entre tensión y deformación de corte resuelta, durante *la primera porción de la curva, es lineal*. Para el caso de deformaciones a 78 K, este comportamiento persiste para deformaciones más altas que para 300 K. La relación lineal extrapola al origen, como lo muestra otro estudio realizado a 78 K y 4.2 K también presentado en la Ref. [7]. La curva es lineal mientras ocurre deslizamiento, pero cuando se ha introducido un 60 % de elongación ($\gamma = 1.25$) el espécimen deforma por otro mecanismo que tiene características similares al maclaje y finalmente fractura por clivaje, luego de una elongación de 120 %.

A partir de medidas de resistividad realizadas en distintos puntos a lo largo de la deformación a 78 K y a 300 K se puede concluir que los valores aumentan a medida que la deformación progresa, pero que no hay grandes diferencias a estas temperaturas. Se concluye que *muy pocos defectos son formados cuando la deformación es pequeña*.

§ 1. 1. 6 Los Recuperados Térmicos y la TCRC en Monocristales de Cu

En este trabajo se harán *recuperados isócronos e isotérmicos* de monocristales de Cu, irradiados con neutrones de fisión a 77 K. Por lo tanto, la τ será sucesivamente medida en los mismos, luego de cada tratamiento térmico. La hipótesis implícita en estos experimentos es que el arreglo de dislocaciones del estado preirradiación dentro del espécimen, es el mismo al comienzo de la segunda extensión que al final de la primera y que el cambio observado en τ está asociado únicamente a los defectos creados por irradiación. Ello significa que no se debe producir ningún tipo de rearrreglo de las dislocaciones durante la descarga del espécimen o en los sucesivos ensayos en que media el recuperado térmico de la probeta.

La justificación experimental que valida la hipótesis mencionada se presenta a continuación. La Fig. 1. 1. 11 muestra la curva de τ vs γ para un monocristal de Cu (99.999 %), sin irradiar ensayado a 77 K y a $6 \times 10^{-5} \text{ seg}^{-1}$, con la orientación cristalográfica indicada en el extremo superior izquierdo.

Esta curva muestra con claridad que el repetido cargado y descargado de la probeta, a 77 K, no tiene ningún efecto, particularmente a deformaciones bajas que son las que interesan en el presente trabajo.

Respecto a repetir un ensayo pero luego de un tratamiento térmico a diferentes temperaturas (estudios isócronos), en la Fig. 1. 1. 12 se muestra la dependencia del cociente entre el valor de τ_b , después del tratamiento térmico, con respecto al valor previo al mismo τ_a , (τ_b/τ_a) vs temperatura de recocido.

La misma presenta un pozo profundo desde 0.986 a 0.978 entre -180 °C y -120 °C, luego se mantiene constante a 0.978 hasta temperaturas del orden de los 100 °C, para retomar finalmente los valores esperados. Como se puede apreciar las diferencias son muy pequeñas a baja temperatura.

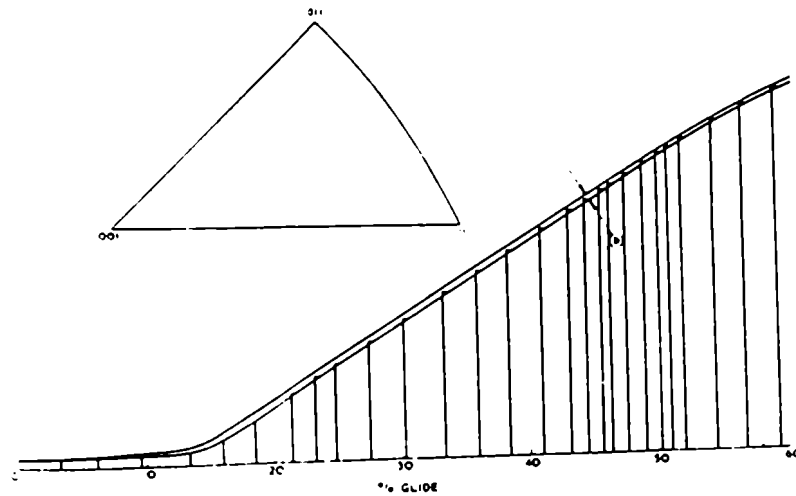


Fig. I. 1. 12 Curvas de τ vs γ % de cristales ensayados a 77 K. (a) ensayo continuo, (b) ensayo interrumpido [8].

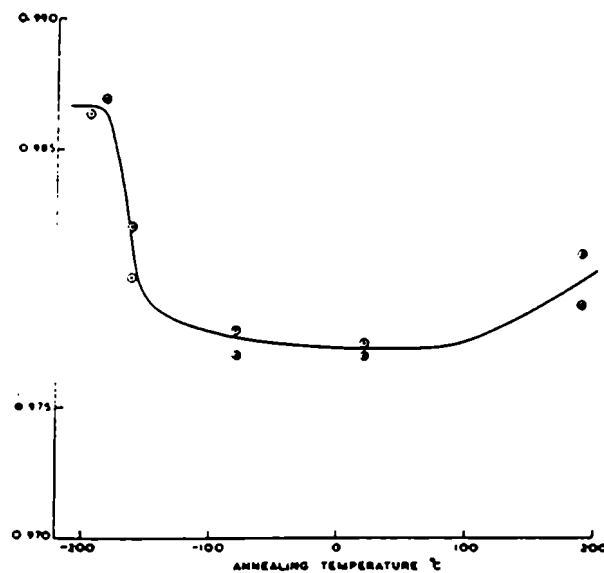


Fig. I. 1. 12. Relación τ_i/τ_a , obtenida a 77 K luego de 30 min de recocido a las temperaturas más altas [8].

Para la justificación de *estudios isotérmicos*, es decir las medida a lo largo del tiempo a una temperatura fija, la Tabla I. 1. 2 (a) muestra que la relación (τ_i/τ_a) es independiente del tiempo de recocido, para el caso de 20 °C, pero el resultado es completamente general y válido para bajas temperaturas como lo muestra la Tabla I. 1. 2 (b).

Time of annealing at 20°C in hours	Ratio of stresses
1	0.977 (19 results)
5	0.978 (8 results)
17	0.977 (4 results)
47	0.977 (11 results)

(a)

Stress kg. mm ²	Ratio σ_a/σ_b
2.89	0.983
3.33	0.976
3.52	0.979
3.75	0.976
4.30	0.978
5.19	0.978
6.11	0.977

(b)

Tabla I. 1. 2 (a) Independencia de la relacion τ_i/τ_a , medida a 77 K para diferentes tiempos de recocido, a 20 °C. (b) Efecto de la tension sobre la relación τ_i/τ_a , a -196 °C luego de un tratamiento termico durante 30 min a -78 °C [8]

Capítulo 2

“La Producción de Defectos en Monocristales de Cu irradiados con Neutrones de Fisión, a Bajas Dosis y Temperatura”

CAPITULO I. 2: LA PRODUCCIÓN DE DEFECTOS EN MONOCRISTALES DE COBRE IRRADIADOS CON NEUTRONES DE FISIÓN, A BAJAS DOSIS Y TEMPERATURA

§ I. 2. 1 El Espectro Neutrónico

En un Reactor los neutrones de fisión sufren interacciones con los materiales estructurales del núcleo y el moderador, modificando sus energías. El *flujo diferencial neutrónico* ϕ' , hace referencia al número de neutrones que atraviesan una esfera de área unitaria, por unidad de tiempo, con energías comprendidas entre E_n y $E_n + dE_n$. De este modo el *flujo total* ó *fluencia* es:

$$\phi = \int_0^{\infty} \phi'(E_n) dE_n \quad \text{Ec. I. 2. 1}$$

La unidad de ϕ es (neutrones $\text{cm}^{-2} \text{seg}^{-1}$). La *dosis*⁷ se define como ϕt , siendo t el tiempo total de irradiación y, por lo tanto, su unidad de medida es n cm^{-2}

En el presente trabajo la dosis elegida fue $\sim 4.5 \times 10^{16} \text{ n cm}^{-2}$. La elección de la misma se fundamenta en los estudios de dependencia con la dosis del endurecimiento por irradiación en Cu, que se presentan en § I. 3. 2.

La Fig. I. 2. 1 muestra la representación gráfica de ϕ vs $\log(E_n)$, para un medio absorbente bastante parecido al que corresponde a un reactor moderado con agua como el reactor R.A-1 (§ II. 2.1).

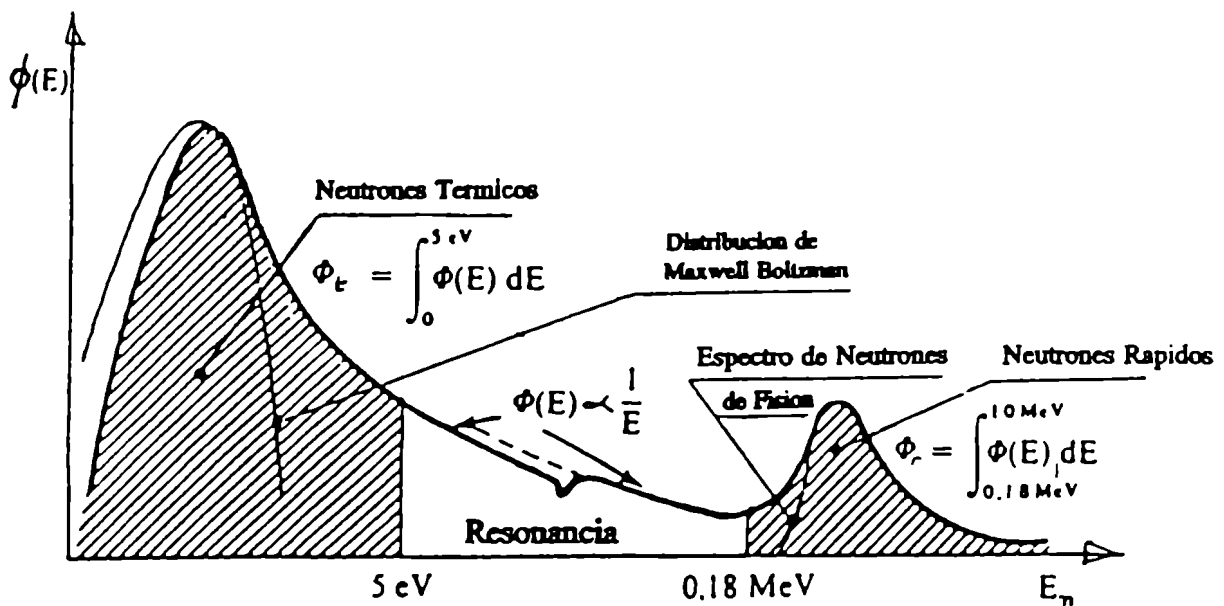


Fig. I. 2. 1 Distribución de la energía neutrónica para un medio altamente absorbente [9].

De izquierda a derecha se puede ver:

a) *La zona térmica* ($E_n < 0.5 \text{ eV}$). Los neutrones térmicos están en equilibrio térmico con los átomos del medio en el cual ellos se están moviendo. *En un medio no es absorbente de*

neutrones, un neutrón térmico puede ganar o perder energía durante una colisión con un núcleo, pero no hay intercambio de energía neta cuando se considera un gran número de colisiones. En este caso la energía cinética de los neutrones térmicos está distribuida estadísticamente acorde a la distribución de velocidad de las moléculas en la teoría cinética de los gases (Maxwell-Boltzmann). Esta distribución se señala explícitamente en el gráfico. La velocidad más probable para un neutrón térmico está dada por kT y es igual a 2200 m/seg a 20 °C y la energía promedio de los neutrones térmicos es $3/2 kT$ (0.038 eV a 20 °C). Si la temperatura del medio es inferior a la ambiente se habla de neutrones fríos. **En un medio absorbente** la distribución de energía de los neutrones térmicos difiere de la de Maxwell-Boltzmann debido precisamente a la absorción neutrónica que está ocurriendo a bajas energías. Como resultado el pico se ensancha y se extiende hasta 0.5 eV.

b) La **zona epitérmica o de resonancia**, ($0.5\text{eV} < E_n < 0.18 \text{ MeV}$). Esta zona recibe su nombre de los neutrones con energías entre 1-100 eV debido a que, en este rango, muchos nucleidos experimentan una fuerte absorción neutrónica a energías bien definidas. Es una zona de energías intermedias en la cual los neutrones con energías menores a 0,1 MeV se denominan genéricamente, **neutrones lentos**.

c) La **zona rápida**, ($0.18 \text{ MeV} < E_n < 10\text{MeV}$). Las energías de los **neutrones de fisión** están distribuidas, según una ecuación estadística, llamada "espectro de fisión" que también se indica en la Fig. 1. 2. 1. El máximo de la distribución se encuentra alrededor de **1 MeV**, y la energía promedio, en **2 MeV** (solamente el 5 % de los neutrones de fisión tiene energías mayores que 5 MeV).

El espectro neutrónico en un reactor se puede describir aproximadamente usando dos clases de neutrones: los neutrones térmicos incluyendo energías de hasta 5 eV y los neutrones rápidos con energías mayores que 0.18 MeV hasta 10 MeV. Ambas clases corresponden a las zonas sombreadas de la Fig. 1. 2. 1. Las características del RA-1 y los valores correspondientes a los flujos de neutrones térmicos y rápidos en el lugar de su núcleo donde se irradian las probetas a baja temperatura (Criostato) se presentan en § II. 2. 1. La grilla del reactor RA1 en donde se ubican los elementos combustibles se modificó para alojar el criostato de forma de no alterar el espectro descrito en la Fig. 1. 2. 1. Conociendo la energía a la que llegan los neutrones se puede calcular el número de átomos primarios desplazados y estimar el número de aglomerados de defectos inducidos en la red cristalina del metal, mediante la ecuación [10]

$$N = K \sigma_e \phi t N_0 \quad \text{Ec. 1. 2. 2}$$

siendo

K el número de barreras por cada colisión elástica

σ_e la sección eficaz de desplazamiento atómico para colisiones elásticas de los neutrones con los átomos del blanco

ϕt la dosis de neutrones rápidos

N_0 la densidad atómica del Cu

§ I. 2. 2 El Camino Libre Medio de los Neutrones en Cu

El camino libre medio es la distancia que viaja una partícula entre colisiones sucesivas. Esta distancia está dada por:

$$\lambda(T) = \frac{1}{N_a \sigma(E, T)} \quad \text{Ec. I. 2. 3}$$

donde el denominador es el producto entre la densidad atómica N_a y la *sección eficaz de desplazamiento atómico* para que una partícula de energía E , pueda desplazar átomos transfiriéndoles una energía T :

$$\sigma(E, T) = \int_{-\infty}^{\infty} dT \frac{d\sigma(E, T)}{dT} \quad \text{Ec. I. 2. 4}$$

En la Tabla I. 2. 1 se muestran valores del camino libre medio de desplazamiento para neutrones rápidos en Cu. Los mismos fueron calculados a partir de la Ec. I. 2. 3. El valor de $T(\text{keV})$ se obtiene a partir de la Ec. I. 2. 6.

$E_n (\text{MeV})$	$T (\text{keV})$	$\sigma (\text{barn})$	$N_a [\times 10^{23} \text{cm}^{-3}]$	$\lambda [\text{cm}]$
1	63	3.2	0.83	3.75
0.2	3.1	5.5	0.83	2.2

Tabla I. 2. 1 Cálculo de valores de λ_d en Cu para energías neutrónicas características [11].

El orden de magnitud de *la longitud del camino libre medio* de los neutrones en Cu es del *cm*. Esta magnitud indica que, *a diferencia de la irradiación con iones*, la interacción de los neutrones con la red cristalina de Cu es débil. Dado que la creación de átomos desplazados primarios (ver § I. 2. 3) es un proceso estocástico, se puede considerar la distribución de daño y por lo tanto la distribución de cascadas de desplazamientos atómicos, *homogénea* dentro del material. Como cada neutrón sólo colisiona con un átomo de la red⁸, las *cascadas* o grupo de átomos desplazados se encuentran aleatoriamente distribuidas. La distancia entre las mismas es función de la dosis o del tiempo de irradiación.

La Tabla I. 2. 2 muestra las secciones eficaces total σ_T , elástica σ_e , e inelástica o de absorción σ_a , para el Cu, expresadas en barn [11]:

$E_n [\text{MeV}]$	$\sigma_T [\text{barn}]$	$\sigma_e [\text{barn}]$	$\sigma_a [\text{barn}]$
10.50000-6.5000	3.70	2.10	0.040
6.50000-4.0000	3.90	2.30	0.014
4.00000-2.5000	3.40	1.94	0.005
2.50000-1.4000	3.20	2.39	0.006
1.40000-0.8000	3.50	3.29	0.010
0.80000-0.4000	3.20	4.19	0.014
0.40000-0.2000	5.00	4.98	0.020
0.20000-0.1000	5.20	5.17	0.028
0.10000-0.0465	6.00	5.96	0.040
0.04565-0.0215	8.00	7.91	0.090

Tabla I. 2. 2 Secciones eficaces de desplazamiento neutrónico en Cu [11].

A partir de la misma se puede ver que, para los neutrones rápidos del espectro de fisión ($E < 10$ MeV), la sección eficaz de desplazamiento dominante es la *elástica*. Este hecho justifica el modelo aceptado de esferas rígidas para la dispersión del neutrón por los átomos del metal [12]. La Fig. 1. 2. 2 muestra las secciones eficaces para neutrones de hasta 32 MeV [13]. En la misma se puede observar el fuerte decrecimiento de la componente elástica a partir de 10 MeV debido al advenimiento del *comportamiento inelástico*.

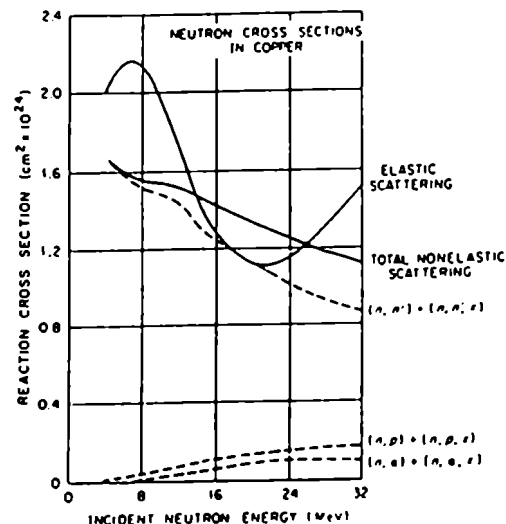


Fig 1. 2. 2 Secciones eficaces calculadas para neutrones rápidos, en Cu [13].

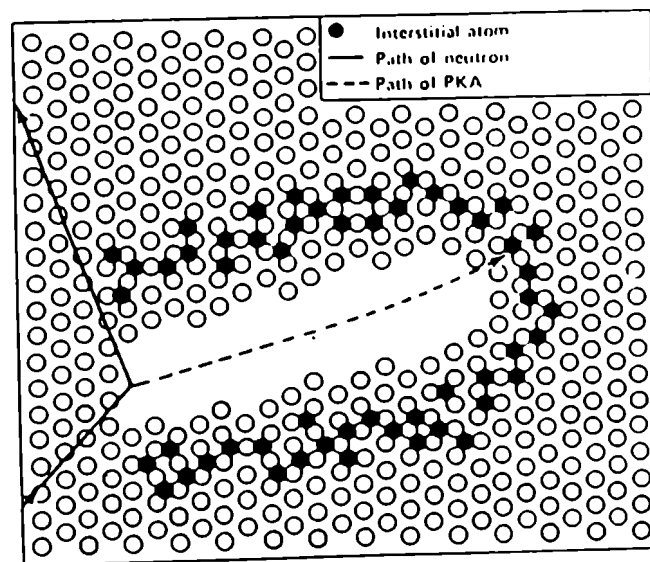
§ 1. 2. 3 El Átomo Desplazado Primario

El primer paso en la producción de daño en una red metálica cristalina, es la generación de un *átomo desplazado primario* -Primary Knock-on Atom: *PKA*- EL PKA es un átomo que ha sido desplazado de su sitio normal en la red como consecuencia de la interacción con un neutrón energético. Se considera como *desplazado* a aquél que queda en reposo lo suficientemente lejos de su sitio original en la red y no puede retornar espontáneamente a su sitio de origen. Este proceso conduce, para un PKA de baja energía, a la formación de un *Par de Frenkel (PF)*, es decir, una vacancia (el sitio de la red vacante) y un átomo intersticial (el átomo desplazado)

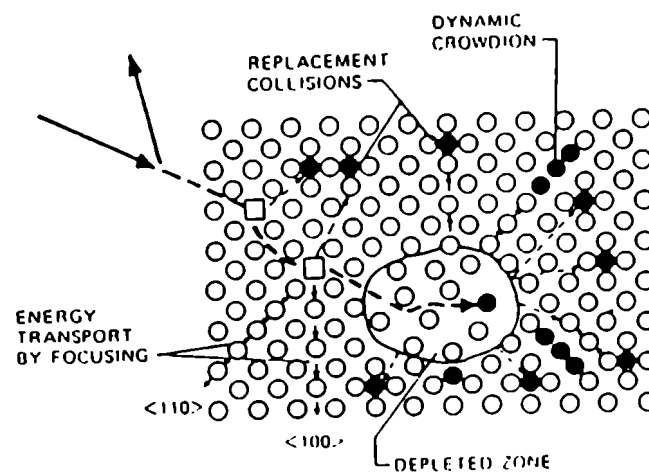
Si la energía del PKA aumenta, los átomos con los cuales éste colisiona frecuentemente reciben suficiente energía cinética (átomos desplazados secundarios) para, a su vez, producir átomos desplazados adicionales. El resultado es una *cascada de desplazamientos atómicos (CDA)* en la cual el PKA disipa su energía en 10^{-11} s [14] y produce un gran número de átomos moviéndose a velocidades cercanamente térmicas y con algún grado de excitación electrónica que, en los metales, se disipa en forma de calor.

La Fig. 1. 2. 3(a) es un esquema de la primer CDA propuesta por Brinkman en 1954 para un PKA de energía entre 5-20 keV [15,16]. La alta densidad de colisiones a lo largo del camino del PKA produce un volumen rico en vacancias rodeado de una capa formada por los átomos intersticiales eyectados hacia el exterior. Brinkman llamó a este modelo de cascada *pico de desplazamiento* (displacement spike) [16]. Seeger [17] elaboró la cascada de Brinkman definiendo mecanismos que permiten el transporte de los átomos eyectados a distancias mayores (Secuencias de Colisiones de Reemplazo, Focalización, Crowdions Dinámicos). El

rasgo distintivo es la mayor separación de la capa anular de intersticiales respecto al núcleo central de vacancias, llamado por Seeger *zona desnuda* o *zona diluida (ZD)*. La Fig. 1. 2. 3 (b) ilustra la cascada de Seeger indicando los conceptos mencionados. Desde ese entonces, la simulación por computadora ha tratado de entender la producción de CDA en cristales suficientemente grandes para contener átomos desplazados primarios (5 a 100 keV) [13] y secundarios, ha permitido obtener una imagen semicuantitativa de los parámetros que caracterizan los procesos precedidos por Seeger así como también sugerir nuevos mecanismos [13]. Las predicciones de Brinkman [16] relativas al tamaño del pico de desplazamiento, a la similitud entre las zonas desnudas en Cu y Zn y al hecho que en Mg deberían ser de menor tamaño que en estos últimos, fueron confirmadas experimentalmente a través de medidas de plasticidad en probetas simultáneamente irradiadas con neutrones a bajas dosis y temperatura [10].



(a)



(b)

Fig. 1. 2. 3 (a) Versión original del pico de desplazamiento o *displacement spike* [15]; (b) Version de Seeger [17]. ○ vacancia, • átomo intersticial, — trayectoria del neutrón, ----- trayectoria del PKA

La Fig. 1. 2. 3 (c) muestra un esquema de la imagen actualizada de una CDA, resumiendo muchas de las predicciones de las simulaciones [18]. La ZD está rodeada de una capa rica en mono-, di-, tri-, etc., intersticiales o incluso pequeños aglomerados. $\langle R_{dt} \rangle$ y $\langle R_i \rangle$ indican el radio promedio de la ZD y la distancia promedio a la cual se concentran los intersticiales respecto del centro de la CDA respectivamente. Los posibles efectos de las movi­lidades entre defectos son: la recombinación intracascada (R), reacciones de aglomeración (C) y deslizamiento de pequeños aglomerados de intersticiales hacia la ZD (G), que conducen a una recombinación o la evitan conduciendo a intersticiales que logran escapar de la cascada. Con EI y EV se denota a los intersticiales y a las vacancias que logran escapar de la cascada respectivamente. Comparando con los anteriores esquemas se observa que en los últimos 40 años se ha avanzado muy poco con respecto a la representación de la cascada original.

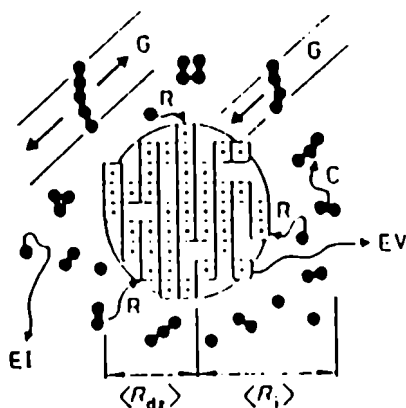


Fig. 1. 2. 3 (c) Representación Esquemática del arreglo de defectos en una CDA, mostrando un núcleo rico en vacancias (DZ) y una capa de intersticiales conteniendo mono-, di-, tri-, etc., intersticiales y pequeños aglomerados. El significado de las letras se detalla en el texto [18].

El problema acerca de la estabilidad de los defectos, conduce al criterio de definir una **energía umbral de desplazamiento**, E_d , de modo que si un neutrón transfiere a un átomo del blanco una energía mayor o igual que E_d , este será permanentemente desplazado”

Los **neutrones térmicos** producen desplazamientos atómicos mediante la producción de reacciones (n, γ) . Cuando un neutrón térmico es capturado por un núcleo, queda ligado con una energía de 8 MeV. Esta energía es radiada, luego, en forma de fotones. La energía cinética de un átomo desplazado luego de emitir un fotón γ de energía E_γ es¹⁰:

$$T = E_\gamma^2 / 2Mc^2$$

Ec 1.2.5

El cálculo de la energía del átomo desplazado es complejo, debido al hecho que luego de la captura térmica, los núcleos emiten una serie de fotones con diferentes correlaciones angulares y temporales. En general se supone que la emisión es isotrópica y descorrelacionada.

La mayor fuente de producción de PKAs se origina en la **dispersión elástica de los neutrones rápidos** por los átomos del blanco que da lugar a las denominadas reacciones (n, n) . La energía cinética transferida a los átomos desplazados del blanco es:

$$T = (1-\mu) E_n/2 = T_m \sin^2 (\theta/2) = (1-\mu) T_m/2 \quad \text{Ec. I. 2. 6}$$

donde:

$\mu = \cos \theta$, siendo θ el ángulo de dispersión medido desde el sistema centro de masa

T_m es la energía máxima transferida dada por

$$T_m = 4 A E_n/(1+A)^2 \quad \text{Ec. I. 2. 7}$$

La distribución angular de neutrones dispersados elásticamente muestra el siguiente comportamiento general:

Para $E_n < 1$ MeV, la distribución es típicamente isotrópica o sea, todos los valores de μ son igualmente probables. a medida que aumenta la energía del neutrón, los neutrones dispersados se distribuyen en una dirección incidente, o sea, $\mu \sim 1$. La energía cinética media es

$$\langle T \rangle = T_m/2 \quad \text{Ec. I. 2. 8}$$

Los neutrones con energías dentro de la *zona epitérmica* originan PKAs con la energía adecuada para iniciar *colisiones colectivas*, sin producir defectos puntuales aislados. En forma general, se puede suponer que todo el resto del espectro neutrónico, puede originar PKAs que, a su vez, generen zonas diluidas.

A modo de ilustración se presentan el caso de un PKA de 50 eV.

La Fig. I. 2. 4 muestra el movimiento de los átomos sobre el plano (100) de una red ccc, originado por un PKA de 50 eV ($E_n=1.5$ keV), y una dirección de 10° respecto a la dirección [110]. El PKA sombreado en su posición inicial queda en reposo cerca de la vacancia generada. (*Pur de Frenkel*). El intersticial se produce en la posición ocupada por el segundo átomo sombreado donde finaliza la Secuencia de Colisiones de Reemplazo. SCR¹¹

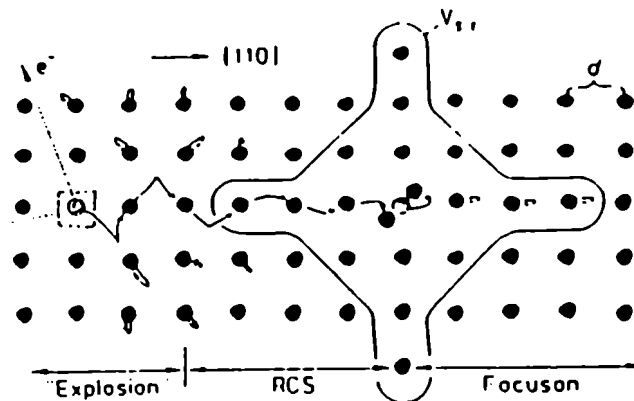


Fig I. 2. 4 Desplazamientos originados por un PKA de 50 eV en Cu [18a]

Primero se produce la distribución en forma aleatoria de la energía del PKA entre los átomos más cercanos. En esta region la cual representa una *explosión local*, las SCR se establecen, como ondas de choque viajando a velocidades supersónicas (Mach 2) a lo largo de una fila atómica. En Cu el átomo intersticial estable tiene configuración de *dumbell*, en la cual dos átomos comparten un sitio de la red, cuyo eje para los metales ccc, es el $\langle 100 \rangle$ [19] La

Fig. 1. 2. 4 también muestra a los átomos que estaban frontales al sitio en el cual el autointersticial fue depositado por la SCR, éstos relajan hacia atrás a sus sitios originales, este movimiento colectivo forma el llamado “focus”¹²

Para simulaciones de dinámica molecular (DM) en Cu. con PKA de energías por debajo de los **20 eV** no se forman defectos permanentes [18]. El **volumen de recombinación espontánea**, V_{cr} , se define como el ocupado por todos los sitios de la red alrededor del autointersticial, el cual, en el caso de estar ocupado por una vacancia, conduce a un par de Frenkel inestable. Los resultados de simulaciones sugieren que ese volumen es de **50-100 volúmenes atómicos** en los metales ccc [18].

Para CDAs producidas por un PKA de alta energía, el estado de la **cascada naciente** evoluciona mediante complejos procesos de interacción de muchos cuerpos, similares a los que ocurren bajo condiciones térmicas. Los defectos inestables se reacomodan en configuraciones más estables, aniquilándose o formando **aglomerados**. La duración de estos procesos de recombinación dependen de la concentración de defectos, **dosis**, y de la **temperatura del blanco**, y es de algunos picosegundos (10^{-12} s) hasta ~ 1 s [18c]. El valor de los parámetros espacio-temporales que caracterizan a las distintas fases de la CDA fueron determinados a partir de medidas experimentales de trazas de fragmentos de fisión en aislantes durante la década del 50’

Si se aumenta aún más la energía, el resultado es la partición de las cascadas en **subcascadas** (cascadas no lineales)

En el presente trabajo de tesis, interesan los PKA producidos por neutrones de fisión cuya energías van de unos pocos eV a 2 MeV (§ 1. 2. 1) y a dosis en que las cascadas están localizadas y son independientes entre si.

Las **características** de la cascada depende fundamentalmente de la forma en la cual el PKA disipa su energía cinética inicial. En forma esquemática y desde el punto de vista de la disipación de la energía de un PKA altamente energético, se puede hablar de tres fases sucesivas en la formación de una cascada [14]:

i) fase disipativa inelástica: el PKA inicialmente pierde energía en forma continua, por **excitación electrónica o ionización** de los átomos del medio o de si mismos, sin producción de desplazamientos, es decir, **sin producción de daño**

ii) fase balística elástica: El PKA inicia la serie de colisiones binarias discretas con los átomos del blanco, produciendo los desplazamientos atómicos. Esta etapa, representa la fuente principal de daño en la red cristalina. Durante la misma se acepta la conservación de la energía durante las colisiones

iii) fase colisional cooperativa (spike) Cuando la distancia entre colisiones sucesivas de un átomo desplazado con los átomos de la red estacionaria se aproximan a la **distancia interatómica**, se inicia la fase cooperativa. El PKA comienza a colisionar en forma **colectiva** con los átomos de la red, dando lugar a la **zona desnuda**

§ 1. 2. 4 Mecanismos de Disipación de la Energía del PKA: El Modelo LSS

La forma en la cual el PKA disipa su energía en la red metálica determina la CDA. Las tres fases presentadas en el párrafo precedente deben ser precisadas dando valores de energías umbrales para el inicio de cada una de ellas

A continuación se calculan esos valores para la cascada en Cu a partir del modelo LSS (Lindhard- Scharff- Schiøtt) [nota 13.13]. Este modelo se basa en la definición de tres variables reducidas adimensionales:

energía: $\epsilon = E/E_1$ Ec. I. 2. 9

con $E_1 = \left(\frac{Z_1 Z_2 e^2}{a_{12}} \right) \left(\frac{1+A}{A} \right)$ Ec. I. 2. 10

distancia: $\rho = x/R_1$ Ec. I. 2. 11

con $R_1 = \left(\frac{(1+A)^2}{4A} \right) \left(\frac{1}{n \pi a_{12}^2} \right)$ Ec. I. 2. 12

tiempo: $\tau = t/T_1$ Ec. I. 2. 13

con $T_1 = \left(\frac{M_1}{2E_1} \right)^{1/2} R_1$ Ec. I. 2. 14

donde,

Z_i y M_i son el número atómico y la masa atómica de los átomos, $i=1$ para el proyectil y 2 para el átomo blanco

$A = M_2/M_1$

“ e ” es la carga del electrón ($e^2=1.4399$ eV nm)

n es la densidad atómica del blanco

a_{12} es una longitud de apantallamiento dada por

$$a_{12} = \left(\frac{9 \pi^2}{128} \right)^{1/3} \left(\frac{a_{11}}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}} \right)$$
 Ec. I. 2. 15

donde $a_{11} = 52.92$ pm es el radio de Bohr. La Tabla I. 2. 3 muestra los valores de los parámetros LSS para pares de átomos de Cu¹³

Átomo	Z	E ₁ [keV]	R ₁ [nm]	T ₁ [fs*]	k ₁
Cu	29	225	32.3	39.6	0.158

Tabla I. 2. 3: Parámetros LSS para Cu [13]. (* 1 fs = 10⁻¹⁵ s)

1. 2. 4. 1 Poder Frenador Electrónico y Nuclear

La velocidad a la cual un átomo desplazado se frena en el material se define como *el poder frenador*. El mismo se forma a partir de la contribución debida a la disipación

electrónica y a la pérdida de energía por colisiones elásticas. Usando las variables adimensionales LSS, *el poder de frenado electrónico* se define como:

$$\left(\frac{d\varepsilon}{d\rho}\right)_e = k_1 \varepsilon^{1/2} \quad \text{Ec. 1.2.16}$$

donde

$$k_1 = \frac{32}{3\pi} \left(\frac{m_e}{M_2}\right)^{1/2} \frac{(1+A)^{3/2}}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/4}} Z_1^{2/3} Z_2^{1/2} \quad \text{Ec. 1.2.17}$$

con m_e la masa del electrón.

El poder de frenado nuclear se define como:

$$\left(\frac{d\varepsilon}{d\rho}\right)_n = (9/8 \varepsilon) \left\{ \ln \left[\xi + (1 + \xi^2)^{1/2} \right] - \xi (1 + \xi^2)^{-1/2} \right\} \quad \text{Ec. 1.2.18}$$

donde

$$\xi = 1.378 \varepsilon^{1/3} \quad \text{Ec. 1.2.19}$$

La Fig. 1.2.5 muestra el poder de frenado electrónico y nuclear en función de la energía LSS, ε :

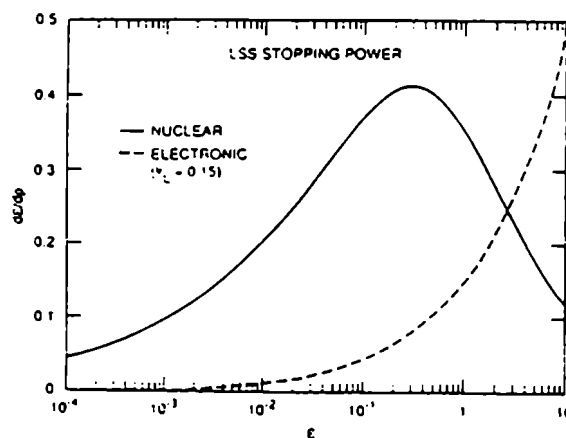


Fig. 1.2.5 El poder de frenado electrónico y nuclear según el Modelo LSS. Ver el texto para la definición de las variables adimensionales ε y ρ . El coeficiente k_1 es un valor típico [13]

El máximo ocurre para $\varepsilon \sim 0.3$, que en Cu representa 67.5 keV. La figura también muestra el poder de frenado electrónico para el valor típico, $k_1 = 0.15$. Para energías menores a $\varepsilon \sim 1$, la mayor parte del frenado proviene del término nuclear pero, para $\varepsilon > 3$ domina el

término electrónico. La intersección de ambas curvas en Cu ocurre a $\sim 60 \text{ keV}$. Este valor define el llamado **umbral de ionización**, E_i . Es decir, cuando un PKA muy energético haya disipado su energía hasta este valor, se inicia la **fase balística**.

Si se representa el poder de frenado electrónico en función de la potencia $^{1/2}$ de la energía del PKA, se obtiene una recta. La misma pone en evidencia que la disipación de energía en forma inelástica aumenta a medida que aumenta la velocidad del PKA.

Cuando un neutrón transfiere a un PKA suficiente energía para ionizarlo, éste interactúa en forma coulombiana con los electrones del cristal y disipa su energía principalmente por colisiones inelásticas. En este caso para los cálculos se utiliza la sección eficaz diferencial de desplazamiento de Rutherford, dada por la Ec. I. 2. 20:

$$\frac{d\sigma_{\text{Ruth}}}{dT} dT = \frac{\rho m_1 (Z_1 Z_2 e^2)^2}{E} \frac{dT}{T^2} \quad \text{Ec. I. 2. 20}$$

debido al factor T^{-1} aumentará la tendencia a desplazar un mayor número de átomos a las energías transferidas más bajas.

La fórmula de Rutherford solamente se aplica mientras la partícula desplazada se comporta como un **núcleo desnudo**. En Cu esta consideración sólo es posible a energías mayores que la expresada en la Ec. I. 2. 21 [20]:

$$Q_2 = \left(\frac{e^2}{2 m_e a_{ii}} \right) M_1 Z_1^{+3} = [24.800 \text{ keV}] M_1 Z_1^{+3} \quad \text{Ec. I. 2. 21}$$

A energías por debajo de Q_2 , el proyectil es capaz de capturar electrones que apantallan su interacción con los átomos del núcleo cambiando la sección diferencial de dispersión paulatinamente hacia la de la esferas rígidas (LR) dada por:

$$\frac{d\sigma_{\text{LR}}}{dT} dT = A \frac{dT}{E} \quad \text{Ec. I. 2. 22}$$

a partir de este momento el PKA interactúa por medio de colisiones elásticas con los átomos de la red. Se puede demostrar, a partir de la Ec. I. 2. 21 que la energía a la cual el ión se vuelve neutro, es igual el número másico del elemento, expresado en keV. Esta relación fue deducida por Dienes y Vineyard en la década del 50'

$$Q_2 \sim A (\text{keV}) \quad \text{Ec. I. 2. 23}$$

Luego, para el Cu, este valor coincide con el umbral de ionización definido por el modelo LSS, a partir de la intersección del poder de frenado electrónico y nuclear (Fig. I. 2. 5)

La Fig. I. 2. 6 representa el camino libre medio, λ , para átomos desplazados con energía T en Cu. A partir del cálculo realizado por Brinkman [15] se demuestra que hay un amplio rango de energía de los PKAs donde λ es menor a una distancia atómica.

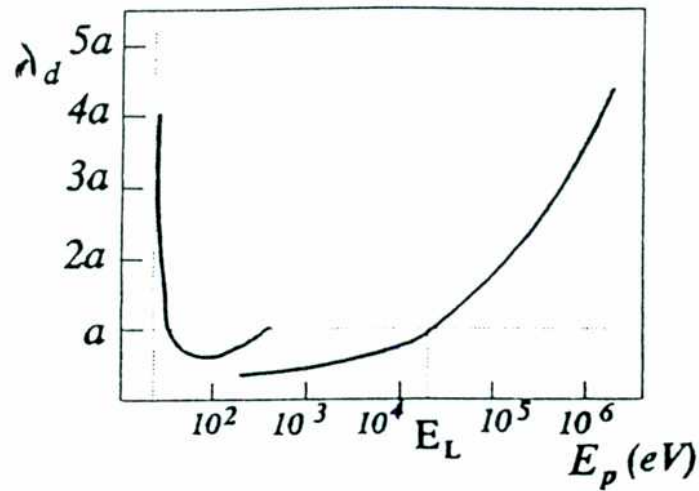


Fig. I. 2. 6 Camino libre medio para átomos de Cu desplazados con energía T [15].

Para bajas energías se calcula λ utilizando el modelo de esferas duras (representado en la curva de la izquierda de la Fig. I. 2. 6). Para Cu es interesante observar que entre **50 y 23.000 eV** el camino libre medio es menor que la **distancia interatómica**. Este último valor fue corregido por Brinkman quien estableció que para $\lambda = 1$, curva de la derecha de la Fig. I. 2. 6, el valor correcto era 4 keV.

En la Fig. I. 2. 7 se ilustra el espectro de fisión y las imágenes idealizadas de las cascadas que producirían neutrones con diferentes energías en Cu. El valor de energía inicial para el inicio de las colisiones colectivas (~ 4 keV) se puede estimar también a partir de la Fig. I. 2. 5.

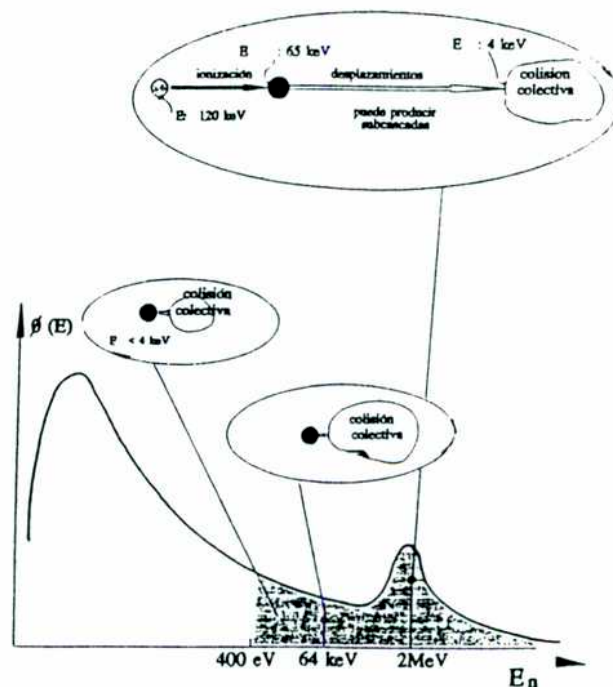


Fig. I. 2. 7 Esquema del daño en cobre [11,21].

Capítulo 3

“El Endurecimiento Inducido por Irradiación Neutrónica”

CAPITULO I. 3: EL ENDURECIMIENTO POR IRRADIACIÓN NEUTRÓNICA

§ I. 3. 1 El Fenómeno de Endurecimiento: Las Curvas de Tensión Resuelta-Deformación Resuelta de Monocristales de Cobre Irradiados con Neutrones Rápidos

Los primeros estudios de la variación de las propiedades mecánicas en monocristales de Cu, debida a la irradiación neutrónica, se llevaron a cabo en el Oak Ridge National Laboratory en los años 50 [22]. El experimento original consistió en irradiar monocristales de Cu durante dos semanas, a temperatura de reactor, hasta alcanzar una dosis de 10^{18} n cm⁻². Luego se midió la Tensión Crítica Resuelta de Corte. El resultado fue *un endurecimiento de un orden de magnitud en esta propiedad*, de 2 kgf/mm² a 20 kgf/mm², lo que representa un aumento del *1000 % respecto del valor pre-irradiación*.

El enorme incremento postirradiación en la tensión de fluencia en policristales o en la TCRC en monocristales, se llamó *endurecimiento por irradiación neutrónica (Radiation Hardening)* [23]. El fenómeno condujo a intensas investigaciones en una gran variedad de condiciones. Sin embargo, casi medio siglo después, todavía hoy no hay acuerdo respecto a los mecanismos de endurecimiento que operan en los distintos casos, especialmente a altas dosis y temperatura.

El efecto de incrementar la dosis sobre las curvas de Tensión Deformación Resuelta (§ I. 1. 5), en monocristales de Cu expuestos a la irradiación neutrónica, se muestra en la Fig. I. 3. 1 (a) [24]. Las curvas son representativas de los trabajos pioneros realizados en Cu, a alta dosis y temperatura de reactor. La Fig. I. 3. 1 (b) presenta la curva carga-elongación de un monocristal de Cu deformado a temperatura ambiente, luego de ser irradiado a temperatura de reactor y a 2.5×10^{18} n cm⁻² [25].

Los rasgos característicos de estas curvas son:

- a) el notable aumento de la Tensión Crítica Resuelta de Corte con el incremento de la dosis (Endurecimiento por Irradiación, correspondiente a $\gamma = 0$ en la Fig. I. 3. 1 (a)),
- b) la evidencia de un valor de tensión máximo y mínimo (*upper y lower yield point*), a elongaciones menores a 0.01, Fig. I. 3. 1 (b),
- c) la aparición de una región de endurecimiento suave, por trabajado, cerca del origen (Propagación de Bandas de Lüder, Fig. I. 3. 1 (b)),
- d) la aparición de un endurecimiento similar al del cristal no irradiado (siguiendo a la región anterior, Fig. I. 3. 1 (a)),
- e) la reducción de la Deformación Resuelta de Corte a la Fractura con el incremento de la dosis (disminución de la ductilidad).

De todas las características mencionadas las tres últimas son irrelevantes para el presente trabajo ya que en el mismo se mide la TCRC_{77K} sólo en la primera etapa de deformación de las curvas completas de τ vs γ mostradas en la Fig. I. 3. 1 (a) (ver nota 4).

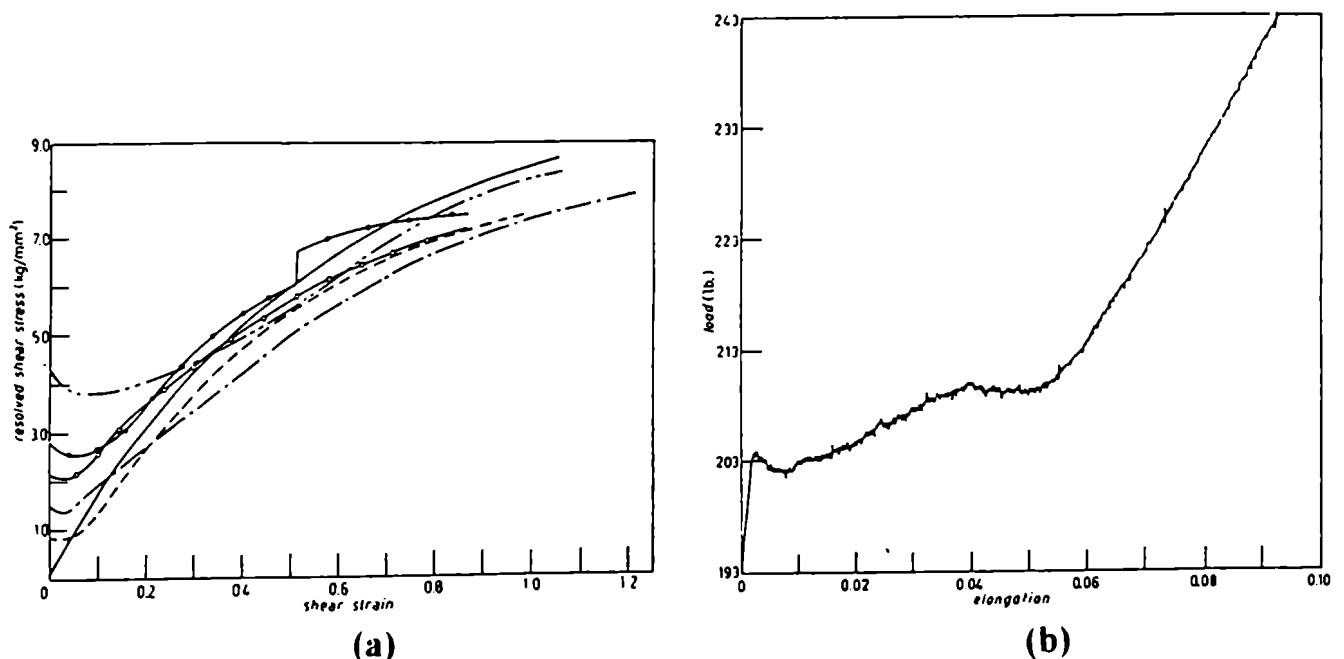


Fig. 1.3.1 (a) Curvas de Tensión-Deformación Resulta para monocristales de Cu, irradiados a dosis crecientes y a temperatura de reactor [24]. Los cristales no tienen la misma orientación. — sin irradiación; - - - $1.4 \cdot 10^{17} \text{ n cm}^{-2}$; - · - · - $6 \cdot 10^{17} \text{ n cm}^{-2}$; - - - $1.1 \cdot 10^{18} \text{ n cm}^{-2}$; - · - · - $5.0 \cdot 10^{18} \text{ n cm}^{-2}$; - · - · - $2 \cdot 10^{19} \text{ n cm}^{-2}$. (b) Curva carga-elongación de un monocristal de Cu, deformado a temperatura ambiente e irradiado a temperatura de reactor y $2.5 \cdot 10^{18} \text{ n cm}^{-2}$ [25].

La aparición, en todos los casos mostrados en la Fig. 1.3.1 (a), de los llamados "*lower y upper yield point*" en las curvas de Tensión-Deformación Resuelta pone en evidencia que, a estas dosis, *la deformación es notablemente inhomogénea*

En el año 1958, Cottrell [26] propuso que, como resultado de la interacción de una dislocación móvil con los defectos creados durante la irradiación, se produce la desaparición de parte de los mismos y se facilita el pasaje de las siguientes dislocaciones. El resultado es la aparición de una banda angosta de deformación, en la que tiene lugar una avalancha de dislocaciones (*canalización de dislocaciones*). Esta banda se traslada a una región vecina cuando los mecanismos de endurecimiento detienen el proceso

Blewitt y col [24] observaron que la deformación plástica en Cu era inhomogénea con bandas gruesas en donde la deformación era importante, separadas por regiones sin deformar. Este hecho contrastaba con la deformación en Cu sin irradiar, en donde las líneas de deslizamiento se extendían uniformemente por todo el cristal. En estudios posteriores de recuperación térmica del daño, los autores mencionados adoptaron el criterio de identificar la TCRC con el valor correspondiente al *lower yield point*

En Mg la formación de canales libres de defectos es espectacular, como lo muestra la curva carga-elongación indicada con la letra *a* de la Fig 1.3.2 [27]. La misma corresponde al monocristal Mg 9.3, deformado a 77 K e irradiado a 77 K y a dosis de $1.7 \cdot 10^{17} \text{ n cm}^{-2}$. Las curvas señaladas con las letras *b* y *c* corresponden a dosis menores a la de la curva *a*, poniendo en evidencia la existencia de una *dosis de transición* a partir de la cual los defectos creados por irradiación no son estables a la deformación plástica. Cada una de las caídas de tensión se asocia a la formación de una nueva banda de líneas de deslizamiento. Este resultado es general y se lo puede hacer extensivo a los restantes metales hcp así como a los ccc. En Cu y a partir de la Fig. 1.3.1 (a), se puede inferir que *la dosis de transición debe ser inferior a $1.4 \times 10^{17} \text{ n cm}^{-2}$*

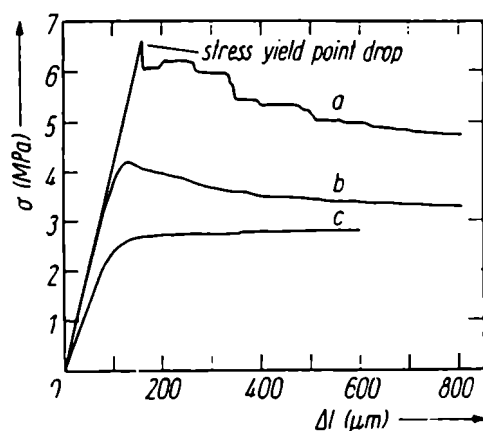


Fig. 1. 3. 2 Curvas tensión-elongación post-irradiación, medidas con una máquina dura a 77 K y $3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ de tres monocristales de Mg. La probeta *a*, Mg 9.5, fue expuesta a una dosis de $1.7 \times 10^{17} \text{ n cm}^{-2}$, la *b*, Mg. 7, a $8 \times 10^{16} \text{ n cm}^{-2}$ y la probeta *c*, Mg10.2, a $4.3 \times 10^{16} \text{ n cm}^{-2}$ [27].

De lo analizado es evidente que *la elección de la dosis es decisiva* si se quiere realizar cualquier estudio en material irradiado a través de una *propiedad mecánica*, como lo es la TCRC, ya que es necesario evitar el fenómeno de canalización de las dislocaciones. A continuación se discute la dependencia con la dosis del Cu irradiado a baja temperatura y se fundamenta la elección de la dosis y de la temperatura de irradiación adoptadas para este trabajo

§ 1. 3 2 Dependencia de la TCRC_{77K} con la Dosis en Cu Irradiado con Neutrones de Fisión a 77 K

La Fig. 1. 3. 3 muestra tres representaciones gráficas de los datos experimentales correspondientes a medidas de la TCRC_{77K} (denominada σ) de la probeta Cu 2.3 irradiada a 77 K en el reactor RA-1 y expuesta a tiempos crecientes de irradiación ($\phi = 7.2 \times 10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) [11]

La curva $\Delta\sigma = \sigma - \sigma_0$ vs $t^{0.5}$ (σ_0 es la TCRC_{77K} preirradiación) muestra que *la relación funcional entre la variable ($\sigma - \sigma_0$) y la potencia $1/2$ de la dosis es lineal hasta la dosis $\phi t = 4.5 \times 10^{16} \text{ n cm}^{-2}$* [28]. El apartamiento a esta ley, para dosis por encima de este valor, se conoce como “*efecto de saturación*” y en Cu aparece a una dosis inferior a la de transición

Diehl y col. [29] explicaron la desviación a la ley lineal, en términos de un mecanismo especial de recuperado durante la irradiación (*radiation annealing*), consistente en las *captura de “crowdions dinámicos”* por otras zonas diluidas (§ 1. 2. 2). Este mecanismo reduce el número de sitios vacantes en una zona diluida, disminuyendo así su tamaño efectivo como barrera. De este modo, el tiempo de irradiación es indicativo de la dosis a la cual la distancia entre las cascadas de desplazamientos es comparable al rango de los crowdions¹⁴

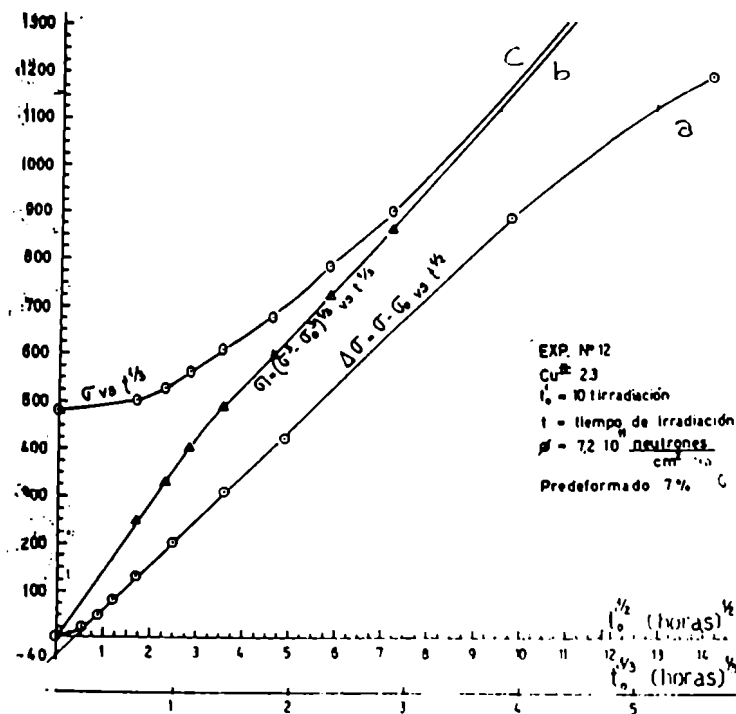


Fig. 1. 3. 3 Dependencia con la dosis del endurecimiento inducido por irradiación neutrónica a 77 K de la probeta Cu 2.3 [11]. El significado de cada una de las representaciones a, b y c se explica en el texto.

Aumentando la dosis progresivamente hasta $\sim 10^{21} \text{ n cm}^{-2}$, se alcanza un valor máximo de endurecimiento [30].

Para explicar las desviaciones a esta ley a altas dosis se propusieron otros modelos que contemplan la desaparición de zonas desnudas y permiten alcanzar un estado estacionario, en los que el número de obstáculos es constante [31,32]. Dado que este fenómeno ocurre a dosis fuera del interés del presente trabajo esos modelos no serán analizados.

Las dosis elegidas, para el presente trabajo, no superaron el valor $4.5 \cdot 10^{16} \text{ n cm}^{-2}$. De este modo se garantiza

a) la independencia de las cascadas de desplazamientos atómicos entre sí, es decir, se desprecia cualquier interacción entre las mismas durante la irradiación (*dosis inferiores a la de saturación*)

b) la estabilidad de los defectos creados por irradiación a la deformación plástica (*dosis inferiores a la de transición*)

La representación gráfica de los datos experimentales mostrada en la curva c de la Fig. 1. 3. 3, está intimamente relacionada a la controversia respecto de si la dependencia del endurecimiento con la dosis seguía la ley de la potencia $\Delta\sigma \propto (\phi t)^{1/2}$, como sostenía el grupo de investigación del laboratorio de Argonne [24] o la de la potencia $\Delta\sigma \propto (\phi t)$ defendida por el grupo del Max Planck Institut [29].

Los trabajos mencionados requerían estudios complementarios para esclarecer definitivamente la ley de dependencia del endurecimiento con la dosis. Desde un punto de vista físico esclarecer si el exponente de esta dependencia es $\frac{1}{2}$ ó $\frac{1}{3}$ es equivalente a elucidar *el problema de la aditividad de los mecanismos de endurecimiento*, es decir, la forma en la cual los obstáculos creados por irradiación afectan al movimiento de las dislocaciones. Este aspecto será analizado en § 1.3.5, luego de la presentación del mecanismo de interacción entre las barreras creadas por irradiación y las dislocaciones móviles.

§ 1.3.3 Mecanismo de Fricción de Corto Alcance

La fuerza responsable de resistir el movimiento de una dislocación a través del cristal puede expresarse como [31]:

$$\tau = \tau_{LR} + \tau_{CR} \quad \text{Ec. 1.3.1}$$

donde τ es la tensión de fricción de la red y los subíndices LR y CR indican largo y corto alcance respectivamente. τ es *aproximadamente igual a la Tensión Resuelta de Corte en cualquier punto de una curva Tensión-Deformación Resuelta*.

Las fuerzas de largo alcance surgen a partir de la interacción repulsiva entre la dislocación que se está moviendo y las distintas componentes de la red de dislocaciones del sólido (ver Ec. 1.1.3). Luego,

$$\tau = \frac{Gb}{2\pi l} \quad \text{Ec. 1.3.2}$$

siendo,

G el módulo de corte

b el vector de Burgers

l una longitud relacionada a la densidad de dislocaciones del material, ρ_d , dada por:

$$l = \left(\frac{3}{\rho_d} \right) \quad \text{Ec. 1.3.3}$$

Es evidente, a partir de la Ec. 1.3.3, que cualquier proceso que aumente la densidad de dislocaciones del material (por ej. el trabajado en frío), produce la disminución de "l" y el aumento de las tensiones de largo alcance sobre la dislocación móvil. Este hecho enfatiza aún más, la necesidad de partir de probetas de baja densidad de dislocaciones iniciales, sin predeformación y bien recocidas (ver § 1.1.4)

Las fuerzas de largo alcance se originan, además, en el apilamiento de dislocaciones sobre planos de deslizamiento paralelos al plano de un aglomerado extendido, pudiendo resistir o detener el movimiento de la dislocación móvil

Las *fuerzas de corto alcance* se deben a *obstáculos* que se encuentran en el plano de deslizamiento de la dislocación (*barreras planares*). Estas fuerzas se vuelven activas solo

cuando la dislocación se encuentra muy próxima al obstáculo o se pone en contacto con éste y tienen una componente *térmica* y otra *atérmica*.

La componente atérmica es independiente de la temperatura y contempla normalmente el doblado de la dislocación alrededor de un obstáculo impenetrable.

En un proceso activado térmicamente, sobrepasar un obstáculo requiere que la dislocación móvil corte a o salte sobre la barrera. Cualquiera que sea el mecanismo en este último caso, la energía debe ser suministrada parcialmente por fluctuaciones térmicas. A medida que aumenta la temperatura la componente térmica de la tensión de corto alcance disminuye y los aglomerados de menor tamaño son transparentes para la dislocación.

Luego, *cuanto más baja es la temperatura del ensayo, mayor es el valor de τ y, por lo tanto, mayor es la sensibilidad del observable a los aglomerados pequeños*. Esta es la razón por la cual en este trabajo se mide la TCRC a 77 K cuando se realizan los recuperados isócronos e isotérmicos de esta propiedad en el rango de temperaturas de la Etapa V ($T > 450$ K) (§ III. 1-4), aún en las probetas irradiadas a temperatura de reactor.

La tensión de fricción, τ_{cr} , depende de la distancia promedio de separación de las *barreras* en el plano de deslizamiento en que se mueve la dislocación. La Fig. I. 3. 4 muestra la unidad de área de un plano de deslizamiento intersectada por porciones de objetos esféricos de radio r , los cuales están aleatoriamente distribuidos a través del sólido con una concentración $N \text{ cm}^{-3}$. Cualquier esfera que tenga su centro dentro del paralelepipedo de volumen $2r$ centrado en el plano de deslizamiento intersecta el plano de deslizamiento. El número de obstáculos en este volumen elemental es $2rN$, que coincide con el número de intersecciones por unidad de área sobre el plano. Luego

$$l = \frac{1}{(2rN)^{1/2}}$$

Ec. I. 3. 4

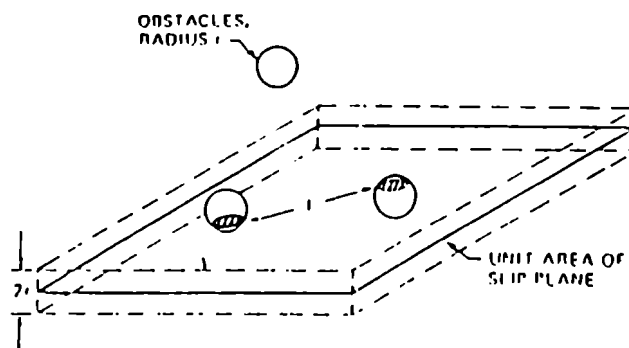


Fig. I. 3. 4 Arreglo de las barreras planares, mencionadas en el texto, formado por la intersección de obstáculos esféricos con un plano de deslizamiento [31a]

La irradiación neutronica introduce una distribución uniforme de estas barreras en el volumen de la probeta (§ I. 2. 2). El modelo que mejor explica el endurecimiento en Cu irradiado a bajas dosis y temperatura se explica a continuación

§ 1. 3. 4 Endurecimiento por Zonas Desnudas (Modelo de Seeger)

En Cu cuando un PKA alcanza una energía de ~ 4 keV -ya sea por transferencia directa o ya sea luego de un proceso de disipación previo- disipa su energía dando lugar a una zona *rica en vacancias*, rodeada de una periferia de intersticiales (*zona desnuda*). Seeger sugirió que estas zonas desnudas o diluidas impiden el libre paso de las dislocaciones [17]. Las *zonas diluidas* son modeladas como *esferas de radio $r \sim 10 \text{ \AA}$* ¹⁶.

El parámetro central en el modelo de Seeger es la energía requerida para que la dislocación corte a través de la región aproximadamente circular del plano de deslizamiento intersectado por la zona diluida esférica y se denota U^* .

La variación de esta energía con la distancia de penetración de la línea a través de la zona diluida, en ausencia de tensiones aplicadas, se muestra en el esquema de la Fig. 1. 3. 5 (a). La energía aumenta una cantidad U_0 al pasar desde el punto inicial de contacto de la línea con la zona diluida, hasta el punto en el cual el corte es completo.

El radio promedio del círculo de intersección de la zona diluida con el plano de deslizamiento es menor que el radio de la zona esférica, ya que el plano de deslizamiento, en general, no pasa por el centro de la zona. El radio promedio del círculo de intersección de la zona diluida y del plano de deslizamiento está dado por:

$$r' = \left(\frac{2}{3}\right)^{1/2} r$$

Ec. 1. 3. 5

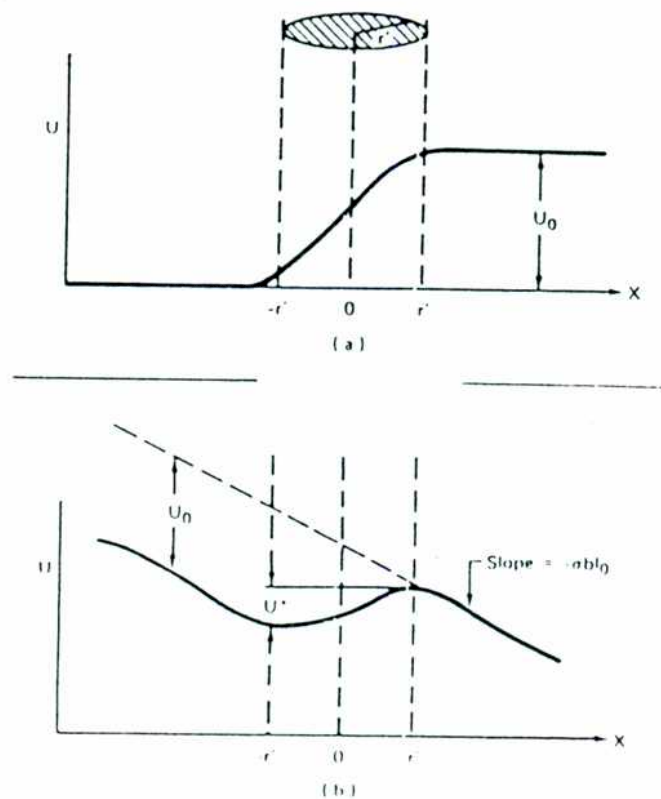


Fig. 1. 3. 5 Perfiles de energía correspondientes a una línea de dislocación cortando a través de una zona diluida. (a) sin tensión. (b) con tensión de corte en la dirección $-x$ [31b].

En cualquier punto x en el intervalo $(-r', r')$, la fuerza que se opone al movimiento de la dislocación es $(-dU/dx)$. Cuando una tensión actúa sobre el plano de deslizamiento, se altera el perfil de energía como se muestra en la Fig. I. 3. 5 (b). La tensión de corte ejerce una fuerza de magnitud $\tau_{cR} b$ por unidad de longitud de línea de dislocación, en la dirección $-x$.

Dado que los obstáculos están separados por una distancia l_0 medida sobre la línea de la dislocación, la fuerza ejercida sobre cada obstáculo por la tensión aplicada es $\tau_{cR} b l_0$ ¹⁷

La fuerza debida a la tensión aplicada en cualquier punto del obstáculo durante su corte, será:

$$-\frac{\partial U(x, \tau_{cR})}{\partial x} = -\frac{\partial U(x, 0)}{\partial x} + \tau_{cR} b l_0 \quad \text{Ec. I. 3. 6}$$

donde

$U(x, \tau_{cR})$ es la forma del perfil mostrado en la Fig. I. 3. 5(b) y $U(x, 0)$ la forma del mismo en ausencia de tensión aplicada.

Integrando Ec. I. 3. 6 se obtiene:

$$U(x, \tau_{cR}) = U(x, 0) - \tau_{cR} b l_0 x + \text{cte} \quad \text{Ec. I. 3. 7}$$

A partir de la Fig. I. 3. 5 (b) se puede calcular U^* :

$$U^* = U(r', \tau_{cR}) - U(-r', \tau_{cR}) \quad \text{Ec. I. 3. 8}$$

Seeger [17] asume que $U(x, 0)$ tiene la forma:

$$U(x, 0) = U_0 \left[1 - \frac{1}{1 + \exp(x/r)} \right] \quad \text{Ec. I. 3. 9}$$

Reemplazando la Ec. I. 3. 9 en la Ec. I. 3. 7 y calculando la diferencia expresada en el miembro derecho de la Ec. I. 3. 8, se obtiene

$$U^* = U_0 \left(1 - \frac{4\tau_{cR} b l_0 r'}{U_0} \right) \quad \text{Ec. I. 3. 10}$$

Cuando τ_{cR} es lo suficientemente grande, la dislocación puede cortar el obstáculo sin ninguna asistencia térmica. La tensión a la cual se anula el término entre paréntesis, τ_{cR}^* , representa la tensión requerida para mover la dislocación a través de un obstáculo a 0 K y se puede expresar como

$$\tau_{CR}^0 = \left[\frac{U_0}{4 \left(\frac{2}{3} \right)^{1/2}} \right] \left(\frac{1}{b^2 G^{1/2}} \right) \left(\frac{N^{1/2}}{r} \right) \quad \text{Ec. I. 3-11}$$

Este valor de la τ_{CR} predice el máximo endurecimiento debido a las zonas diluidas de radio r , presentes en el sólido en concentración volumétrica N .

Para evaluar la dependencia del endurecimiento originado en las zonas desnudas con la temperatura del ensayo, es necesario expresar la velocidad de deformación, $\dot{\epsilon}$, en función de U^* [30]:

$$\dot{\epsilon} = \rho l b v \exp \left(\frac{U^*}{k T} \right) \quad \text{Ec. I. 3-12}$$

siendo

ρ la densidad de dislocaciones móviles

v la frecuencia de vibración de la dislocación que está golpeando contra el obstáculo en cada vibración

a partir de esta última expresión y haciendo las sustituciones convenientes, se deduce

$$\tau_{CR} = \tau_{CR}^0 \left[1 - \left(\frac{T}{T_0} \right)^{2/3} \right]^{3/2} \quad \text{Ec. I. 3-13}$$

siendo T_0 una temperatura característica dada por

$$T_0 = \frac{U_0}{k \ln \left[\frac{\rho b v}{\dot{\epsilon} (2 r N)^{1/2}} \right]} \quad \text{Ec. I. 3-14}$$

La temperatura T_0 no es constante ya que depende de la velocidad de deformación, $\dot{\epsilon}$, a la cual el metal está siendo deformado y de la concentración de zonas diluidas, N , la cual aumenta con el tiempo de irradiación (dosis). Sin embargo, estas cantidades aparecen en un término logarítmico, y el efecto de su variación sobre T_0 es lo suficientemente pequeño como para poder ser despreciarlo.

A partir de la dependencia con $N^{1/2}$ de τ_{CR} , el modelo de Seeger predice la dependencia del endurecimiento inducido por irradiación neutrónica con la potencia $^{1/2}$ de la dosis, mostrada en la Fig. I. 3-3. El modelo puede ser adoptado como una descripción simplificada pero al mismo tiempo explicativa del endurecimiento de las probetas del presente trabajo debido a las condiciones experimentales elegidas.

I. 3. 4. 1 La Teoría de Seeger y la Irradiación Neutrónica en Cu

La prueba experimental de que *las zonas diluidas son las responsables del endurecimiento* se obtuvo irradiando Cu con *electrones de 4 MeV* [33]. Las condiciones experimentales se ajustaron para poder producir el mismo número de Pares de Frenkel que el calculado a partir del modelo de cascada lineal de Kinchin-Pease [34]. Se concluyó que en el caso electrónico *no se formaban zonas diluidas*, consistiendo el daño solamente de defectos puntuales y obteniéndose valores muy bajos de endurecimiento, recuperables éstos a muy bajas temperaturas. Los defectos originados a partir de las zonas desnudas son estables hasta los 600 K y el mayor porcentaje de su recuperación ocurre en el rango de temperaturas de la llamada Etapa V, que se presenta en § I. 4. 5, cuyo estudio constituye el tema central de esta tesis.

a) Dependencia de τ_{CR} con la Temperatura del Ensayo

La teoría de Seeger fue desarrollada en base a los datos experimentales obtenidos en Cu, y ha sido profusamente verificada en este metal como así también en otros metales ccc. La Fig. I. 3. 6 muestra el endurecimiento debido a la irradiación neutrónica a bajas dosis en Cu y Ni [32]. Ambos conjuntos de datos están graficados en las coordenadas sugeridas por la Ec. I. 3. 13. En Cu *la relación lineal predicha entre $(\tau_{CR})^{1/3}$ y $T^{1/3}$ se exhibe con alta precisión*. Esto sugiere que *las cascadas son de tamaños semejantes, con poca dispersión de sus diámetros*. (ver nota 16)

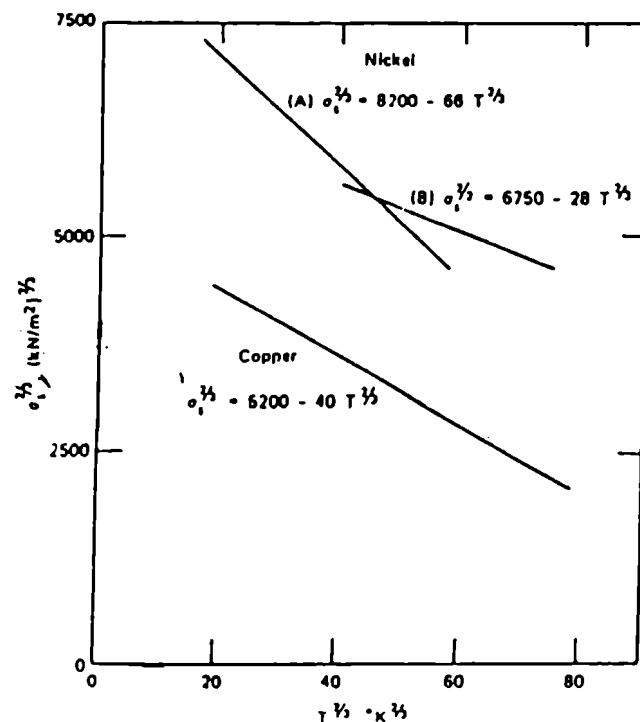


Fig. I. 3. 6 Endurecimiento por irradiación en Cu y Ni graficado acorde a la teoría de Seeger. $\phi t = 7 \times 10^{19} \text{ ncm}^{-2}$, $T_{irr} = 100^\circ \text{C}$, $-200^\circ \text{C} < T_{ensayo} < 200^\circ \text{C}$ [32].

La curva para el Ni, en cambio, muestra dos segmentos lineales lo que sugiere la presencia de *dos tipos de zonas* creadas por la irradiación¹⁸

El tipo que predomina a bajas dosis (tipo A) tiene una U_0 más baja y por lo tanto más baja T_C , respecto a las del tipo B predominante a dosis más altas.

Un estudio más detallado realizado en Cu [35], mostró que el ajuste al modelo de Seeger es mejor luego de un recocido a 306 °C de los especímenes, como se muestra en Fig. I. 3. 7. Cuanto más baja es la temperatura de ensayo, mayor es el endurecimiento medido, respecto al que predice el modelo. A bajas temperaturas la densidad de las barreras debe ser mayor que a altas temperaturas, donde las barreras de menor tamaño no ofrecen resistencia. Luego del recocido los aglomerados pequeños se disocian y desaparecen, dando lugar a un juego de barreras más uniforme en tamaños.

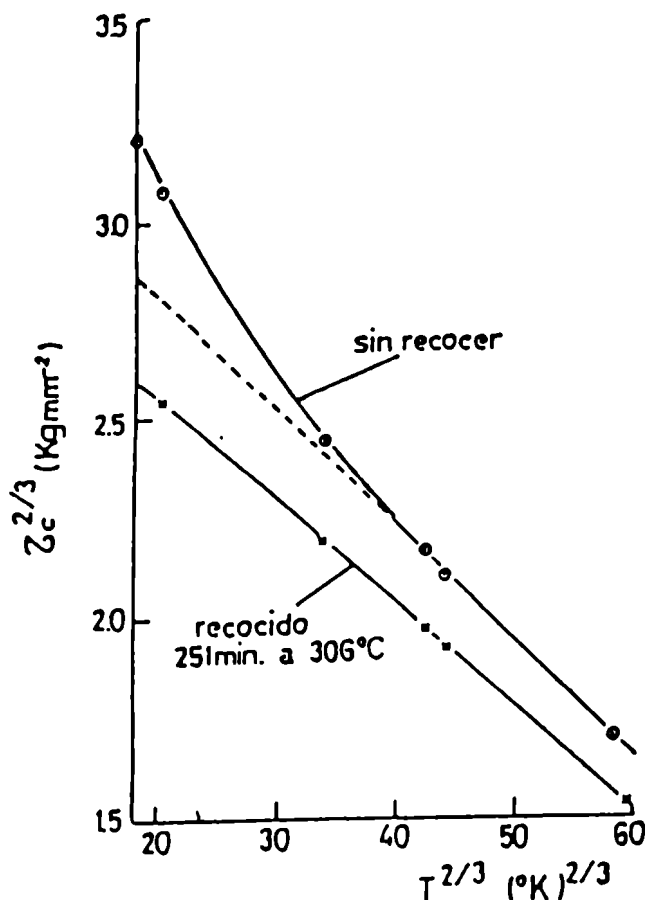


Fig. I. 3. 7 Representación gráfica de $\tau_c^{2/3}$ vs $T^{2/3}$ para cristales irradiados mostrando el mejor ajuste a la teoría de Seeger de los cristales recocidos a 306 °C [35].

b) La Dependencia de τ_{CR} con $N^{1/2}$

La correlación entre la TCRC con la densidad de aglomerados visibles fue investigada por Makin y col. [35]. A partir de la irradiación neutrónica (27 °C y 2.5×10^{18} n cm⁻²) de alambres policristalinos y monocristales de Cu (99.999 %) pusieron en evidencia la dependencia del endurecimiento con la potencia $^{1/2}$ de la densidad planar de los aglomerados de vacancias creados por irradiación de diámetro $d < 50$ Å. La Fig. I. 3. 8 (a) muestra los

resultados para las tres temperaturas de deformación 4.2, 77 y 293 K de probetas recocidas postirradiación a 275, 306 y 336 °C.

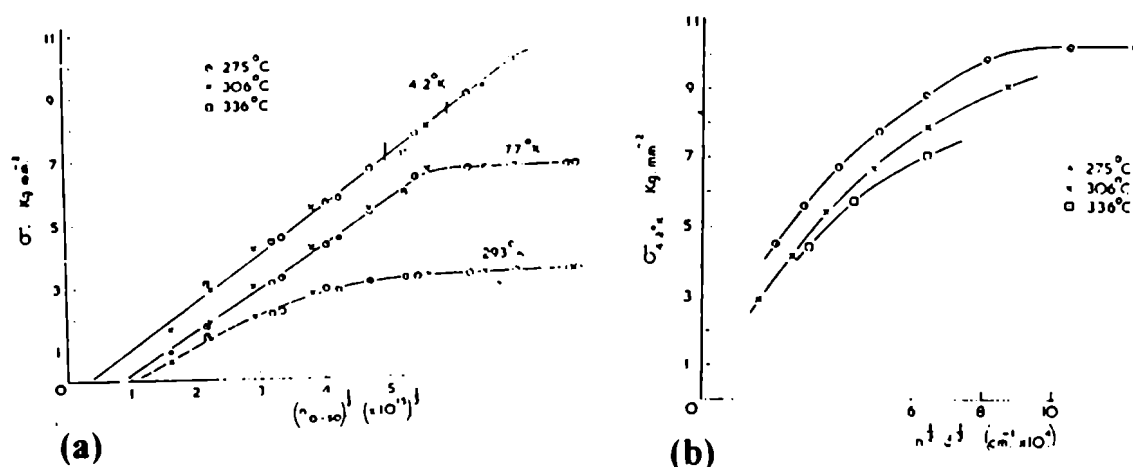


Fig. 1.3.8 (a) TCRC a 4.2, 77 y 293 K en función de la potencia $1/2$ de la densidad de aglomerados de defectos de diámetro $d < 50 \text{ \AA}$; (b) TCRC a 4.2 K en función de la potencia $1/2$ del número de aglomerados de diámetro $d < 50 \text{ \AA}$ que intersectan al plano de deslizamiento. La densidad de aglomerados se varia mediante tratamientos térmicos realizados a 275, 306 y 336 °C. ($\phi t = 2.5 \times 10^{18} \text{ n cm}^{-2}$, 27 °C) [35].

Las curvas presentan:

- a) un *plateau* que aumenta su extensión a medida que aumenta la temperatura de deformación. Este *plateau* pone en evidencia que se puede reducir considerablemente la densidad de obstáculos, a estas temperaturas, sin afectar el valor de la TCRC.
- b) Una zona de transición previa al inicio del comportamiento lineal que aumenta su extensión a medida que aumenta la temperatura de ensayo.
- c) El comportamiento lineal de la TCRC con la potencia $1/2$ de la densidad planar de obstáculos de diámetros $d < 50 \text{ \AA}$.

Para los aglomerados de diámetros mayores, $d > 50 \text{ \AA}$, el comportamiento no es lineal (Fig. 1.3.8 (a)).

A partir de estos resultados Makin y col. concluyeron que los aglomerados de defectos de diámetro $d < 50 \text{ \AA}$ eran los responsables principales del endurecimiento por irradiación y que éstos se originaban en las zonas desnudas de las cascadas de desplazamientos atómicos y que era razonable suponer la existencia de un espectro de zonas diluidas con variaciones de tamaños (r) y energías (U_0).

A partir de la dependencia de τ con la temperatura del ensayo y de la velocidad de deformación, $\dot{\epsilon}$, se modificó la expresión original de Seeger. Se dedujeron nuevas estimaciones para el valor de U_0 y se definió el concepto de *volumen de activación del proceso* [36] que dió lugar a una nueva serie de trabajos experimentales para contrastar con el modelo [37,38].

Los resultados son consistentes con lo ya analizado. Las barreras efectivas más pequeñas, creadas durante la irradiación, son obstáculos para las dislocaciones cuando el

ensayo se realiza a muy baja temperatura. Después del tratamiento térmico, las barreras son homogéneas en tamaño y la dependencia con la temperatura del ensayo disminuye.

§ 1.3.5 El Problema de la Aditividad de los Mecanismos de Endurecimiento

La forma en la cual los obstáculos creados por irradiación contribuyen al endurecimiento fue un tema sumamente discutido [39,40].

En § 1.3.3 se presentó el endurecimiento considerando tensiones de corto y largo alcance, $\tau = \tau_{CR} - \tau_{LR}$, en el cual se basa el modelo de Seeger de endurecimiento para irradiaciones a bajas dosis y temperatura. Pero, también, se proponían otros mecanismos.

La posibilidad de que dos tipos de endurecimiento se superpongan independientemente condujo al planteo de un modelo con dos tipos de obstáculos de corto alcance, en el cual la fuerza y la concentración de los obstáculos son las variables relevantes a considerar. El análisis se puede dividir en dos casos [28]:

a) Los dos obstáculos son de fuerza similar y la dislocación no puede distinguir entre ellos. Entonces, el parámetro de interés es el *espaciado promedio entre obstáculos*:

$$l' = \frac{l}{(N_1 + N_2)^{1/2}} \quad \text{Ec. 1.3.15}$$

Dado que,

$$\frac{1}{l'} = \frac{1}{l_1} + \frac{1}{l_2} \quad \text{Ec. 1.3.16}$$

se obtiene

$$\tau_{CR} = \tau_1' + \tau_2' \quad \text{Ec. 1.3.17}$$

donde τ_1 y τ_2 son las tensiones que se requerirían en el caso en que los obstáculos de tipo 1, y de tipo 2 hubieran actuado separadamente

Suponer este mecanismo conduce a la representación de la dependencia con la dosis mostrada en la curva **b** de la Fig. 1.3.3

b) Los dos obstáculos de corto alcance tienen fuerzas diferentes (este es un caso particular, del caso general, que contempla un espectro de fuerzas debido a los obstáculos) [41]. Como la línea de dislocación se debe mover en un plano de deslizamiento bajo la tensión aplicada, ambos obstáculos se interpondrán en su movimiento. Aquí se debe considerar simultáneamente el número de defectos de cada tipo y la fuerza de cada uno de ellos. Las situaciones posibles varían desde una transición monótona de τ_1 a τ_2 (a medida que aumentan las barreras de tipo 2 frente a las del tipo 1) hasta un caso extremo, en el cual las barreras menos numerosas son las más fuertes y las muy próximas entre sí son las más débiles. El resultado es parecido al analizado en § 1.3.3 en el que $\tau = \tau_1 + \tau_2$.

Las condiciones experimentales más adecuadas para lograr algún progreso en la comprensión de procesos tan complejos y que produzcan resultados contrastables con las predicciones de los modelos teóricos, requerían la introducción de defectos en las condiciones más "limpias" posibles, es decir, irradiando a dosis por debajo de la de saturación (y por lo tanto de la dosis de transición) y a baja temperatura, para minimizar todo efecto térmico durante la producción de daño en la red cristalina real *más perfecta* posible (cristales de alta pureza).

Los estudios, que fueron concluyentes al respecto, en monocristales Cu [28], fueron realizados con una micromáquina de tracción [42] que funciona *in situ* en el criostato instalado en el reactor RA-1 y cuyos resultados se presentan a continuación:

La Fig. I. 3. 9 (a) muestra tres representaciones gráficas distintas de las medidas realizadas en dos probetas de Cu. En las dos curvas superiores, indicadas como Cu 1.3 () y Cu 2.3 (O), se representa σ vs t . El monocristal Cu 1.3, ($\sigma_0 = 3.15$ MPa) fue irradiado a décima de potencia ($\phi = 10^{11}$ n cm⁻²s⁻¹) para estudiar el proceso de endurecimiento desde su origen (tiempo de irradiación del orden de minutos). El endurecimiento comienza a ser apreciable a dosis de 4×10^{15} n cm⁻². Con el reactor en potencia se prosigue el estudio con el espécimen Cu 2.3 ($\sigma_0 = 4.72$ MPa), es decir, un cristal con una predeformación del 7 % (que se muestra en la Fig. I. 3. 3). Las curvas centrales corresponden respectivamente a la representación ya discutida en a) de $(\sigma^2 - \sigma_0^2)^{1/2}$ vs t , y finalmente, las de la parte inferior, a $(\sigma - \sigma_0)$ vs t .

A partir de estos resultados se grafica, para cada probeta $(\sigma - \sigma_0)$ vs $t^{1/2}$. La linealidad existente en esta relación para el Cu 1.3, cuya ordenada al origen es nula, se muestra en la Fig. I. 3. 9 (b) y lo mismo ocurre para la probeta Cu 3.2 en la que puede ver una pequeña incubación en el origen ya presentada en Fig. I. 3. 3.

Estos estudios se extendieron a cristales hexagonales de Mg [10,27] y Zn [28]¹⁹

En particular, el Zn para el cual el valor de la tensión inicial es despreciable respecto al valor postirradiación (la que aumenta 40 veces el valor inicial a 4×10^{16} n cm⁻² en pocos minutos de irradiación en Atucha-I, a NL) permite identificar el incremento de la tensión de fluencia directamente con la debida a los obstáculos creados durante la irradiación.

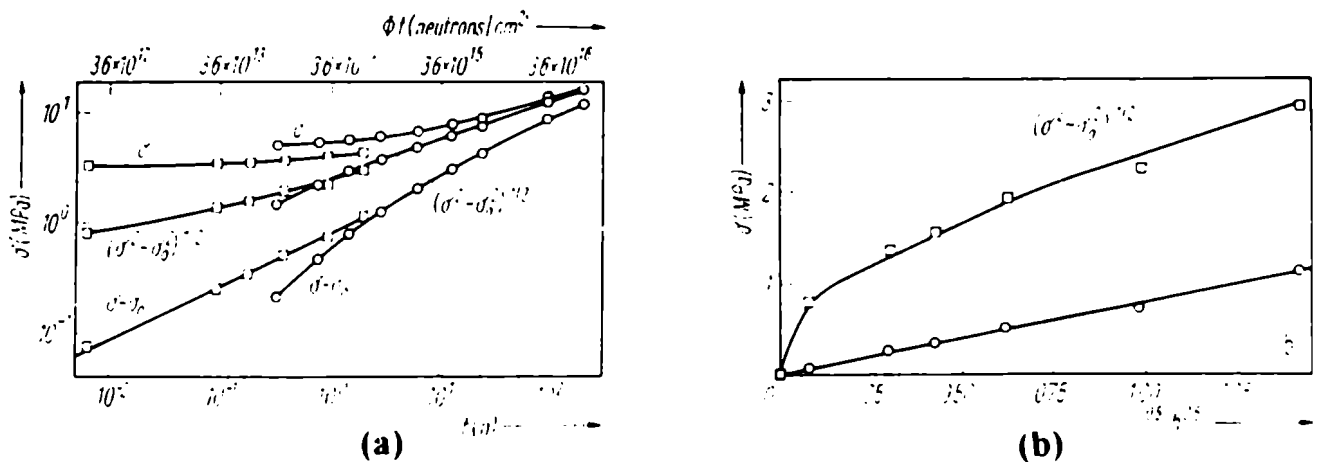


Fig. I. 3. 9 (a) Efecto del tiempo de irradiación neutrónica en σ para dos monocristales de Cu medidos con la micromáquina de tracción a 78 K (gráfico log-log). Cu 1.3 () y Cu 2.3 (O). En (b) se representa $(\sigma - \sigma_0)$ vs $t^{1/2}$ para ambas probetas [28]

A partir de *todos* estos resultados, se concluye que:

- a) el incremento de tensión debido exclusivamente a los defectos creados por irradiación a bajas dosis es proporcional a $(\phi t)^{1/2}$,
- b) el mecanismo de endurecimiento debido a los obstáculos creados por irradiación se adiciona algebraicamente a la componente atómica de la tensión de fluencia inicial (probeta Cu 1.3),
- c) el endurecimiento no es exactamente aditivo a los otros mecanismos térmicamente activados (probeta Cu 2.3, predeformada un 7 %).

De estos resultados se deduce la existencia de una transición gradual desde un tipo de obstáculos a otro tipo de obstáculos.

Las probetas monocristalinas de alta pureza, crecidas para este trabajo de tesis (§ II. 1) tienen las tensiones de corte iniciales más bajas posibles alcanzables por el método de Bridgman y son menores a la de la probeta Cu 1.3. Se asume, en consecuencia, la validez de aditividad simple entre las tensiones de largo alcance y las tensiones debidas a los obstáculos creados por irradiación.

Este rasgo, sumado a las condiciones de irradiación ya discutidas (§ 1. 3. 2), permite vincular el endurecimiento $\Delta\tau = \tau - \tau_0$ inducido durante la irradiación neutrónica a baja temperatura, con la densidad planar de obstáculos de diámetro medio d , Nd , mediante la siguiente relación analítica [28]:

$$\Delta\tau = \alpha^{1/2} G b (Nd)^{1/2} \quad \text{Ec. 1. 3. 18}$$

siendo

G el Módulo de Corte

b el módulo del vector de Burgers

$\alpha = F/2T$, una medida de la intensidad de la fuerza F del obstáculo, medida en unidades del doble de la tensión de línea T

N la densidad volumétrica de barreras creadas durante la irradiación

d el diámetro medio de los obstáculos.

Si los obstáculos son infinitamente fuertes, la tensión aplicada causará que la dislocación rodee completamente al obstáculo y, por lo tanto, que el ángulo ϕ entre los brazos opuestos de la dislocación tienda a cero cuando el segmento llegue a la ruptura.

Si el obstáculo es muy débil, el segmento de la dislocación permanecerá casi recto y el ángulo tenderá a 180°

Luego el espaciado entre los obstáculos a lo largo de la línea de la dislocación será:

$$l^* = \frac{1}{\beta(Nd)^{1/2}} \quad \text{Ec. 1. 3. 19}$$

donde β es un factor relacionado a la flexibilidad de la línea de la dislocación que para el caso de irradiaciones a baja dosis $\beta = \alpha^{1/2}$ [10,43,44].

Capítulo 4

“Las Etapas de Recuperación Térmica en Cu irradiado con Neutrones”

CAPITULO I. 4: LAS ETAPAS DE RECUPERACIÓN TÉRMICA EN CU IRRADIADO CON NEUTRONES

§ I. 4. 1 La Naturaleza de las Barreras Planares: Los Defectos Aglomerados

A dosis lo suficientemente bajas, es decir donde se verifica el comportamiento lineal del endurecimiento con la potencia $\frac{1}{2}$ de la dosis (§ I. 3. 2), se considera que los aglomerados de defectos se originaron durante el rearreglo de las zonas desnudas, dentro de cascadas de desplazamientos individuales [45].

En el Modelo de Seeger [17] (§ I. 3. 4) se considera que los obstáculos creados por irradiación, que impiden el movimiento de las dislocaciones, tienen un **diámetro medio de 20 Å**, es decir, el número de defectos puntuales aglomerados es mucho mayor que el correspondiente a las configuraciones más simples de mono-, di- o tri- intersticiales (ver nota 16). Este valor surge de observaciones por MET, limitadas a la resolución del microscopio [46].

Cuál es el tamaño mínimo de un aglomerado para que se lo pueda considerar como un obstáculo para una dislocación es un problema difícil de responder.

A partir de estudios de microdureza y microscopía electrónica de transmisión en Cu irradiado a 25 °C con neutrones de 14 MeV [47] se determinó que al menos el 70 % de los aglomerados de defectos son **submicroscópicos** (de tamaños menores a ~ 1 nm) lo que provee evidencia experimental de la existencia de un espectro de obstáculos de corto rango, predichos a partir de los estudios ya mencionados en § I. 3. 5 relacionados a la dependencia con la dosis de la TCRC [28]. Los resultados de Makin y col. [35], Fig. I. 3. 8 (a), muestran que la recuperación del endurecimiento comienza a partir de un tamaño medio “umbral” de obstáculo.

Los aglomerados se originan a partir de la **condensación de vacancias o intersticiales** en un plano cristalino. La formación de discos groseramente circulares se continúa con el **colapso** de los planos atómicos adyacentes produciendo como resultado final los denominados **anillos o lazos de dislocaciones** [31], es decir, regiones delimitadas por dislocaciones de borde circulares. La formación de un lazo de vacancias se muestra en la Fig. I. 4. 1 (a) y (b) y la correspondiente a un lazo de intersticiales, se muestra en la Fig. I. 4. 1 (c) y (d).

En la estructura ccc, los lazos se forman sobre los planos {111}

Cuando un plano es añadido o quitado de la red mediante la aglomeración de un disco de intersticiales o de vacancias respectivamente, la secuencia de apilamiento de la red perfecta se altera. Se forma, entonces una **falla de apilamiento**. Los lazos mostrados en la Fig. I. 4. 1 (b) y (d) se llaman **lazos inmóviles o fallados de Frank**.

El vector de Burgers de un anillo de Frank es:

$$\mathbf{b} = \pm \frac{a_0}{3} [111],$$

siendo su módulo igual a la distancia de separación entre planos (111) consecutivos: $b = a_0/3$ y su dirección -indicada por los índices de Miller entre corchetes- perpendicular al plano del lazo. El sentido dado por el signo “±” depende de la naturaleza del aglomerado: formado por vacancias (-) o por intersticiales (+)

La dislocación de borde sólo puede deslizar en la dirección de su vector de Burgers. Para los metales ccc el cilindro normal al lazo sobre el cual la dislocación se puede mover, no es una

dirección de deslizamiento $\langle 110 \rangle$. Por lo tanto, la dislocación no se puede mover en la dirección de su vector de Burgers y permanece inmóvil.

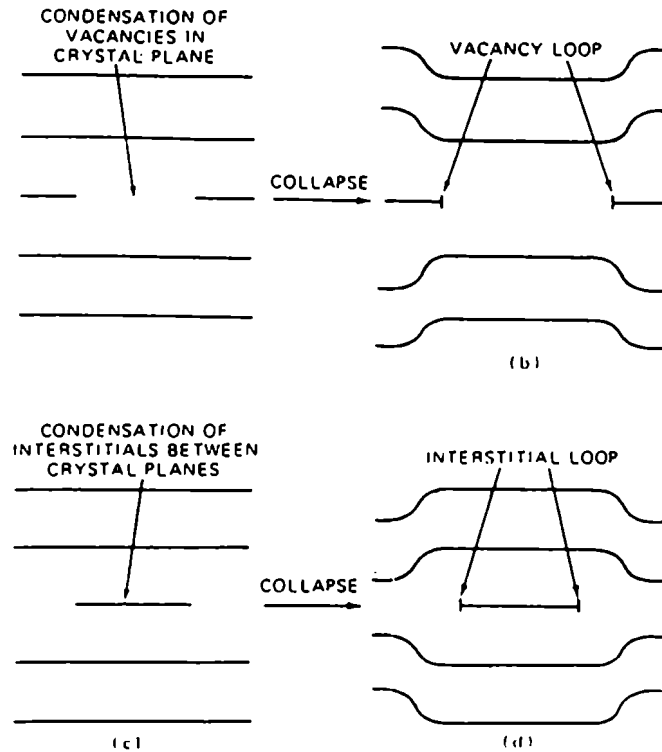


Fig. 1. 4. 1. (a) y (b) Formación de lazos de vacancias; (c) y (d) formación de lazos de intersticiales. [31].

Los lazos de dislocaciones pueden cambiar de diámetro absorbiendo o emitiendo defectos puntuales. La adición neta del mismo tipo de defecto puntual provoca el crecimiento del lazo mientras que la absorción del tipo opuesto, la disminución de su tamaño.

La falla de apilamiento puede ser eliminada moviendo la porción del cristal por encima del lazo con respecto a la porción del sólido que está en la parte inferior del mismo.

Este arreglo se realiza mediante el pasaje de una **dislocación de Shockley** [48] a través de la zona fallada. La dislocación de Shockley y la de Frank reaccionan para formar un lazo de dislocación en la misma posición que el lazo de Frank original, pero ahora con la parte interna del lazo en perfecta correlación de apilamiento con los planos vecinos (111).

Los lazos no fallados también se encuentran presentes en las redes ccc. En este caso el vector de Burgers es

$$b = \pm \frac{a}{2} [111]$$

Este vector está orientado adecuadamente para deslizarse en la red ccc, por lo tanto el lazo es **móvil**. A medida que este lazo desliza, barre una superficie cilíndrica inclinada respecto al plano (111). Debido a la forma particular de deslizamiento, estos lazos se llaman **lazos prismáticos**. Un lazo de este tipo se distingue respecto de un lazo no prismático por la dirección del vector de

Burgers con respecto al plano del lazo: en los lazos prismáticos el vector de Burgers yace fuera del plano del lazo. Para estos lazos, el movimiento de la dislocación a lo largo de su plano de deslizamiento deja a los átomos en posiciones equivalentes a las ocupadas previamente. En este sentido se los llama *lazos de dislocaciones "perfectos"* a diferencia de los de Frank, que no comparten este rasgo, y se llaman, *lazos de dislocaciones "imperfectos"*

En Cu [49] para irradiaciones a $1.3 \times 10^{21} \text{ n cm}^{-2}$ y 80 °C se encontró que el 87 % de los lazos eran de Frank, dentro de los cuales el 8 % presentaban evidencias de disociación hacia la *falla de apilamiento tetrahédrica*, y un 8 % eran lazos perfectos, donde un 20 % de éstos últimos eran de mayor tamaño que los lazos de Frank. Observaciones similares se realizaron en Cu irradiado con iones Cu⁺ [50,51].

Estos resultados demuestran concluyentemente que *la población mayoritaria de aglomerados corresponde a los lazos de Frank*.

Tampoco se discute la presencia de ambas naturalezas -vacancias o intersticiales- de aglomerados, aunque no hay acuerdo en cuanto a la proporción entre las mismas en materiales irradiados [46,52,53], si bien hay mayor evidencia experimental a favor de que los aglomerados de diámetro medio, $d < 60 \text{ Å}$, son de naturaleza vacancia²⁰ [49].

La evidencia experimental provista por imágenes de microscopía electrónica por transmisión de la tendencia a la disociación de los lazos de Frank en dislocaciones parciales y estudios de simulación por computadora de la morfología de aglomerados de vacancias [54] puede explicar la inesperada estabilidad térmica de los aglomerados mencionados.

Los estudios de recuperación térmica postirradiación realizados para este trabajo de Tesis, precisamente se centran en el estudio de la disociación de estos aglomerados a partir de la recuperación del endurecimiento en monocristales de Cu irradiados con neutrones a baja dosis y a 77 K. El intervalo de temperatura en que ocurren estos procesos define a la última etapa de recuperación en este metal, denominada Etapa V, y que se inicia a partir de los 450 K.

De lo discutido se considera que

- a) los aglomerados cuya recuperación se estudia en la Tercera Parte de este trabajo se originaron a partir del rearrreglo de defectos durante el enfriamiento de las cascadas de desplazamientos atómicos que como eventos espacio-temporales individuales se formaron durante la irradiación neutrónica y*
- b) estos obstáculos son mayoritariamente lazos de Frank, de naturaleza vacancias y con poca dispersión en los diámetros.*

§ 1. 4. 2 Las Etapas de Recuperación Térmica en Cobre irradiado con Neutrones a Baja Temperatura

El daño producido en la red cristalina metálica por la irradiación con partículas energéticas a bajas temperaturas, en las cuales los átomos autointersticiales y las vacancias están inmóviles, puede ser reparado mediante tratamientos térmicos específicos.

El suministro gradual de energía térmica a los defectos creados durante la irradiación posibilita la ocurrencia de reacciones, en el transcurso de las cuales se produce la recombinación de los átomos autointersticiales y de las vacancias. El resultado es el consecuente decaimiento en

del observable físico utilizado para cuantificar, en forma indirecta, la evolución del daño con la temperatura. Una vez completado el programa térmico, el observable recupera el valor correspondiente al estado preirradiación.

La Fig. 1. 4. 2 muestra un *esquema general* del recuperado *isócrono* del incremento de una propiedad física, P , sensible a los defectos creados por irradiación a baja temperatura (4.2 K) en Cu. La Etapa I se ubica a temperaturas menores a los 65 K, la Etapa II se extiende entre ~ 220-330 K, la Etapa III entre ~ 330-450 K y la Etapa V a partir de 450 K

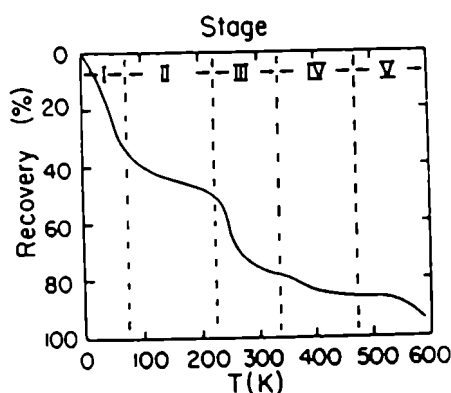


Fig. 1. 4. 2 Esquema general que muestra la recuperación térmica del incremento del observable P , en Cu irradiado con neutrones [55].

Un *recuperado isócrono* consiste en someter a la probeta a pulsos de temperatura sucesivos, de duración fija, Δt , cada uno de los cuales se realiza a una temperatura menor que el siguiente. Luego de cada pulso se mide el cambio en el incremento de la propiedad ΔP .

$$\Delta P^{is} = \Delta P^{is}(T)$$

el cual a su vez, depende de la concentración, C , de alguna perturbación fundamental de la red, sensible a la temperatura

A partir de las inflexiones de la curva isócrona medida, se pueden distinguir diferentes intervalos de temperatura en los cuales se producen las reacciones mencionadas entre los defectos que dan por resultado la recuperación significativa del observable. Se definen, de este modo, las llamadas *Etapas de Recuperación del cambio en el observable físico P*

Las características y extensión de cada una de estas etapas depende de *la energía de activación*, E , del defecto reactivo, de la distribución espacial de estos defectos en la red cristalina y de la correspondiente a sus sumideros

Desde el punto de vista experimental de:

a) *las condiciones de la irradiación* (tipo de proyectil -masa y carga-, energía, dosis, temperatura de irradiación),

b) *el estado metalúrgico* de las probetas, es decir, de agentes dopantes preirradiación, que introducen sumideros preferenciales a los defectos creados por irradiación (contenido de impurezas, introducción de dislocaciones por trabajado o de vacancias por templado desde altas temperaturas, presencia de aglomerados de intersticiales y vacancias debidos a irradiaciones previas (radiation doping treatments).

c) *la sensibilidad del observable físico* a los defectos creados, (naturaleza y estado de aglomeración),

en la mayoría de los metales se presentan las *cinco etapas* de recuperación sucesivas que se muestran en la Fig. 1. 4. 2.

Las etapas impares (*I, III y V*) ocurren en intervalos angostos de temperatura y se asocian a *la migración de defectos*. Las etapas *II y IV*, presentan un recuperado continuo altamente sensible a la dosis y al contenido de impurezas de la red metálica.

Es habitual presentar a las etapas de recuperación del incremento del observable físico, ΔP , usando el módulo de la función derivada de la función monótona decreciente de recuperación isócrona, es decir:

$$- \frac{d\Delta P}{dT} \text{ vs } dT$$

De este modo se obtiene, a partir de los máximos de la función, una rápida visualización de los intervalos de temperatura en los cuales la recuperación del incremento de la propiedad es significativa (*espectro de recuperación*) y permite evaluar el porcentaje relativo de recuperación entre las mismas, comparando las áreas bajo la curva diferencial. Estas áreas son proporcionales a las concentraciones de los defectos reactivos en los intervalos de temperatura respectivos.

Cada pico en el espectro de recuperación indica que, en ese rango de temperatura, un dado defecto se vuelve térmicamente activado y puede reaccionar con otros defectos provocando, en consecuencia, la disminución de la propiedad física medida.

El aumento inicial de la recuperación con la temperatura se debe a que el factor de Boltzmann, $e^{-E/RT}$, gobierna la movilidad del defecto reactuante. Alcanzado el máximo, la reducción progresiva de la concentración del defecto reactuante produce la disminución gradual de la velocidad de la reacción, que finalmente, se anula cuando todos los defectos reactivos han desaparecido.

Una vez individualizadas las etapas, se determina *la energía de activación* asociada a los defectos cuya reacción induce el cambio en el incremento de la propiedad medida durante los tratamientos térmicos.

Para ello se realizan los *recuperados isotérmicos* en probetas consideradas "idénticas" y que fueron irradiadas en las mismas condiciones experimentales.

Durante un recuperado isotérmico, la probeta es sometida a pulsos sucesivos a la misma temperatura, T_n , cada uno de los cuales es de menor duración que el siguiente y al igual que en el caso de los recuperados isócronos, luego de cada una de ellos se mide el valor remanente del incremento de la propiedad P .

$$\Delta P^{T_0} = \Delta P^{T_0}(t)$$

La **energía de activación** se puede calcular a partir de las curvas isotérmicas mediante el llamado "**Método de Cruce**" (cross-cut)²¹ [56-57]. La utilización de este método requiere de al menos dos probetas, cada una de las cuales recibe un tratamiento isotérmico a temperatura diferente.

En la Fig. 1. 4. 3 se ilustra el procedimiento. La energía de activación se determina a partir de las pendientes S_1 y S_2 , trazadas por el punto cuya ordenada es $\Delta\rho$, en cada una de las curvas experimentales

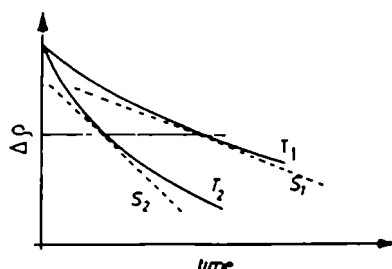


Fig. 1. 4. 3. Esquema que ilustra la determinación de la energía de activación por el Método de Cruce [57].

El Cu es un metal ideal para estudiar reucciones de defectos, debido a la claridad de todas sus etapas de recuperación. A diferencia del Cu [58]:

- a) el Pt y el Al se recuperan completamente al final de la Etapa III.
- b) el Au no presenta Etapa I.
- c) la Ag y el Ni no tienen subetapa I_A , dentro de la Etapa I.

El conocimiento detallado de las distintas etapas de recuperación del Cu permite establecer similitudes y diferencias de este metal representativo de la estructura ccc, con los restantes de la misma estructura cristalina y, en particular, con metales de estructura hexagonal compacta [27,28]

§ 1. 4. 3 Las Irradiaciones con Electrones y con Neutrones para el Estudio de la Etapa V

Para estudiar procesos tan complejos como los asociados a las reacciones entre defectos se parte de las condiciones de producción de daño más simple, es decir, **irradiaciones con electrones, a baja dosis**, a 4.2 K, en Cu monocristalino de alta pureza. En estas condiciones los defectos producidos son **Pares de Frenkel** [59].

La **resistividad eléctrica** es una propiedad física altamente sensible a la concentración de defectos puntuales, de modo que la recuperación de su incremento debido a la irradiación, fue el observable inicialmente más utilizado, que permitió revelar **la existencia de las etapas, medir energías de activación, calcular parámetros cinéticos** asociados a los defectos en cada una de ellas (orden de reacción y frecuencia característica) y poner en evidencia a, en particular, **la subestructura de cinco subetapas, de la Etapa I**

La **irradiación con neutrones rápidos** a bajas dosis y temperatura, como las que se realizan en el presente trabajo, debido al espectro de energías de los neutrones (§ I. 2. 1) y a la consecuente producción de **cascadas de desplazamientos atómicos** (§ I. 2. 3), produce **aglomerados de defectos**, con una alta estabilidad térmica que, en el caso del Cu, requieren temperaturas del orden de los 700 K para su completa recuperación.

El daño por irradiación neutrónica indudablemente es más complejo que el producido con electrones y que el originado en irradiaciones con iones. En este último caso, la distribución espacial de las cascadas de desplazamientos atómicos es inhomogénea y se limita a una franja determinada por la superficie de la muestra, cuyo espesor depende del alcance del proyectil [50,51].

Sin embargo y como se discutió en § I. 2. 2, la irradiación neutrónica representa:

- a) el único medio de garantizar una distribución homogénea de defectos en el volumen de las probetas de tracción destinadas al estudio de las etapas de recuperación del endurecimiento, y
- b) el punto de partida en la comprensión de los fenómenos asociados a inestabilidades estructurales (crecimiento, hinchazón, fragilización, etc) debidas a la presencia de los **aglomerados de defectos** inducidas por irradiación neutrónica en metales de interés nuclear [60] y tecnológico en general, expuestos a altas dosis y temperaturas de trabajo.

En la Fig. I. 4. 4 se muestra un esquema comparativo de la recuperación isócrona de la resistividad eléctrica y de la Tensión Crítica Resuelta de Corte en Cu irradiado con **neutrones** a baja temperatura. **En el primer caso, durante la Etapa I se recupera el 80 % del daño mientras que en el segundo queda un remanente mayor al 75 % a temperaturas mayores de 450 K (Etapa V).**

Luego, cualquier estudio de la **Etapa V** debe ser llevado cabo con observables sensibles a estas configuraciones de defectos y por lo tanto la recuperación de la Tensión Crítica Resuelta de Corte se presenta como óptima, dada su alta sensibilidad para la caracterización de esta Etapa [61].

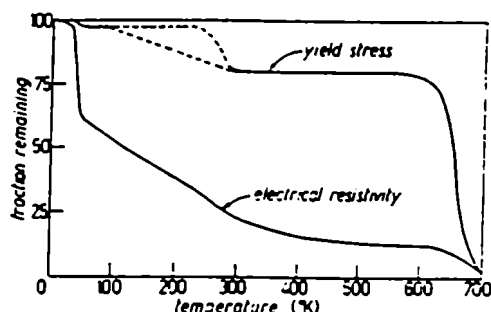


Fig. I. 4. 4 Diagrama esquemático del efecto de la temperatura sobre la Tensión Resuelta de Corte medida a 25 K y sobre la Resistividad Eléctrica medida a 4 K en Cu irradiado con neutrones a dosis de $10^{18} \text{ n cm}^{-2}$ y a 14 K. Las líneas punteadas entre 80-290 K indican que la forma de la curva de endurecimiento todavía no estaba determinada pero se esperaba que ésta cayera entre estas líneas de puntos [25].

En la Tabla I. 4. 1 se presenta, a partir del incremento de la resistividad eléctrica en metales irradiados a baja temperatura con electrones, la descripción comúnmente aceptada de los procesos que tienen lugar en cada una de las etapas y la temperatura -normalizada al correspondiente punto de fusión- a la que ocurren los mencionados procesos [55]

Etapas	Temp./Temp. de fusión	Descripción
I_A-I_D	0.02	Recombinación de Pares de Frenkel cercanos.
I_E	0.025	Migración libre de intersticiales que conduce a la formación de aglomerados de intersticiales.
II	0.02-0.2	Crecimiento de aglomerados de intersticiales conduciendo eventualmente a lazos que son visibles por métodos de observación directa.
III	0.12-0.2	Migración libre de mono o di-vacancias, que se aniquilan en aglomerados de intersticiales o conducen a la formación de aglomerados de vacancias.
IV	0.12-0.4	Crecimiento de aglomerados de vacancias.
V	0.5	Disociación de aglomerados remanentes de intersticiales y de vacancias.

Tabla I. 4. 1 Descripción de los procesos que ocurren en cada una de las etapas a partir de medidas de resistividad en metales irradiados con electrones a baja temperatura. La columna central corresponde al cociente entre la temperatura que caracteriza a la ubicación de la etapa indicada en la primera columna respecto a la temperatura de fusión del metal [55].

Se presenta, a continuación, una breve ampliación de los procesos descritos en la tercera columna de la Tabla I. 4. 1 para cobre de alta pureza.

El objetivo es comparar entre sí los recuperados térmicos de monocristales de cobre irradiados con electrones con los análogos obtenidos a partir de irradiaciones con neutrones y poner en evidencia cómo se modifica el espectro de recuperación cuando las cascadas de desplazamiento atómico se superponen y se produce una importante recuperación de defectos durante la irradiación (efecto de saturación) (§ I. 3. 2).

§ I. 4. 4 Comparación de las Curvas de Recuperación en Cu Irradiado con Electrones y con Neutrones

I. 4. 4. 1 La Etapa I en Cu

La Etapa I es la mejor estudiada en la mayoría de los metales y permite mostrar el alcance que tienen los estudios de recuperación térmica en metales irradiados

La recuperación del *incremento de la resistividad eléctrica* ($\Delta\rho$) en Cu irradiado con electrones a baja temperatura, se sitúa por *debajo de 65 K*.

El rasgo más notable es la presencia de *cinco subetapas* de recuperación designadas como I_A , I_B , I_C , I_D y I_E . Las mismas se muestran en la Fig. I. 4. 5 con línea punteada [62] El espectro de recuperación mostrado se obtuvo a partir del recuperado isócrono de la resistividad eléctrica en monocristales de cobre irradiados con electrones de 1 MeV a 4.2 K

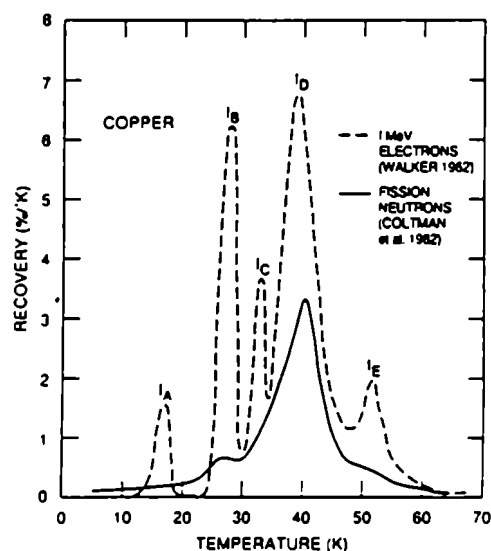


Fig. 1. 4. 5 Curvas que muestran el espectro de recuperación de la resistividad eléctrica de la Etapa I, en cobre irradiado con electrones (línea punterada) y con neutrones (línea continua) [62].

Las tres primeras etapas se asocian a la recombinación de Pares de Frenkel cercanos [59], es decir, pares intersticial-vacancia distribuidos aleatoriamente, pero en los cuales la distancia media entre los autointersticiales de pares diferentes es mucho mayor que la correspondiente a la de su vacancia de origen.

En la Tabla 1. 4. 2 se resume la ubicación en temperatura, la energía de activación, y la frecuencia de salto característica [63]. Estos parámetros cinéticos se calcularon por el Método de Cruce a partir de suponer un proceso de primer orden en recuperados isotérmicos, alrededor de la temperatura de los picos del espectro de recuperación.

Etapa	ΔT (K)	E (eV)	ν_0 (s ⁻¹)
I _A	14.0-24.0	0.050 ± 0.01	$0.8 \times 10^{12-13}$
I _B	24.0-28.5	0.085 ± 0.01	$0.8 \times 10^{12-13}$
I _C	28.5-33.0	0.095 ± 0.01	$0.8 \times 10^{12-13}$

Tabla 1. 4. 2 Ubicación en temperatura, energía de activación y frecuencia característica de salto de las tres primeras subetapas de recuperación de la resistividad eléctrica en Cu irradiado con electrones [63].

La dependencia de las Etapas I_A, I_B y I_C en Cu con la energía máxima transferida por los electrones incidentes, permite elaborar conclusiones acerca del valor de la energía umbral requerida para el desplazamiento atómico de los Pares de Frenkel en las distintas configuraciones presentes en cada una de las etapas [57].

A medida que aumenta la temperatura, los intersticiales, activados térmicamente, comienzan a migrar en forma aleatoria dando lugar a las dos etapas de recuperación restantes mostradas en la Fig. 1. 4. 5.

La **Etapa I_D (33-48 K)** se atribuye a los intersticiales que se recombinaron con su propia vacancia (**recombinación correlacionada**), mientras que la **Etapa I_E (48-65 K)** a

aquellos que lo hicieron con vacancias distintas a la nativa (*recombinación descorrelacionada*). Ambos tipos de recombinación se ilustran en la Fig. 1. 4. 6.

La *incompletitud de la recuperación* del daño al final de la Etapa I se explica a partir de otros mecanismos que evitan las recombinaciones mencionadas y que también se ilustran en la Fig. 1. 4. 6.

Durante su migración, un intersticial puede combinarse con otros intersticiales si el proceso es energéticamente favorable, y formar di-intersticiales, aglomerados de mayor tamaño o quedar atrapado en las impurezas presentes en la red cristalina del metal.

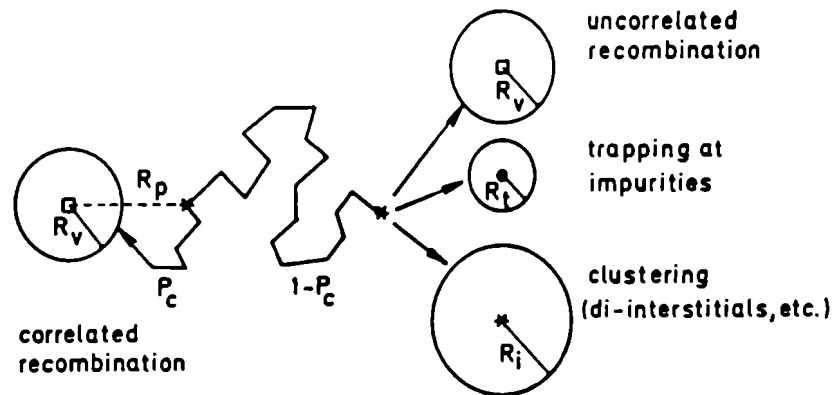


Fig. 1. 4. 6 Esquema que muestra las reacciones de intersticiales migrando libremente en las Etapas I_D y I_E . El intersticial (*) fue creado inicialmente a la distancia R_p de su vacancia (•). P_c es la fracción de intersticiales que se recombinaron en forma correlacionada. R_v , R_i y R_i representan los radios de reacción de la vacancia, de la impureza y de un intersticial respectivamente. Si un intersticial ingresa dentro de la esfera delimitada por algunos de estos radios, se produce la reacción correspondiente en forma espontánea. [64].

La probabilidad de ocurrencia de las distintas reacciones se expresa mediante el uso de *radios de reacción*, dibujados en la Fig. 1. 4. 6, que representan la distancia a la cual el intersticial no puede escapar a la recombinación. Estos radios son una medida de la fuerza con la cual el intersticial es atraído por su compañero de reacción bajo la influencia de las fluctuaciones térmicas a la temperatura de migración T .

Del estudio detallado de estas etapas [65] se concluye que la energía de migración del átomo intersticial en ambos casos es 0.120 ± 0.005 eV.

Como se indica en la Fig. 1. 4. 5 en ésta se compara el espectro de recuperación de la resistividad eléctrica en Cu irradiado con neutrones de fisión [66] (línea continua) con el correspondiente al obtenido con electrones (en línea punteada). Del análisis de estos resultados surge que para el primer caso.

a) las subetapas I_A , I_B y I_C desaparecen

Este cambio es consecuencia de la alta densidad de defectos dentro de la cascada. Puede ocurrir que un par vacancia-autointersticial, en una configuración dada, tenga una mayor dispersión en el valor de su energía de activación y por ello mayor probabilidad de interactuar fuertemente con los defectos vecinos. O bien que existan configuraciones de Pares

de Frenkel no presentes en las irradiaciones con electrones. La reducción en las áreas asociadas a cada subetapa es consecuencia de la alta segregación de intersticiales y vacancias dentro de la cascada, que reduce la probabilidad de formar la configuración de pares de Frenkel cercanos dada en el caso de irradiaciones con electrones.

b) La Etapa I_D es la más prominente mientras que la I_E , en Cu, no está bien definida

Para poder observar las Etapas I_D y I_E es necesario que el camino libre medio del intersticial que migra y se recombina en forma correlacionada, sea mucho menor que el correspondiente a la migración descorrelacionada. Esta condición sólo se logra irradiando con electrones, a muy bajas dosis, muestras muy puras.

La recombinación correlacionada de los intersticiales en la periferia de una zona desnuda, puede involucrar un número de saltos mucho mayor que el correspondiente a irradiaciones con electrones. Luego, el concepto de “recombinación correlacionada” de Pares de Frenkel no es aplicable al caso neutrónico. Cuando se tienen cascadas de desplazamientos y se habla de “recombinación correlacionada” se incluyen a todas las aniquilaciones de vacancias e intersticiales que ocurren luego del enfriamiento de la cascada y que involucran a defectos provenientes de la misma cascada. El porcentaje de recuperación durante la Etapa I_D depende de la energía del PKA que inicializa a la cascada. Esta energía determina el tamaño de la cascada y condiciona la distribución final de los defectos en la red cristalina perturbada.

Luego de irradiar con neutrones ($4.6 \times 10^{18} \text{ n cm}^{-2}$, 4.2 K) monocristales de Cu y medir el cambio en: la resistividad eléctrica, el parámetro de red, la dispersión de rayos-X de bajo ángulo y la intensidad “Huang”, durante el recuperado isócrono (10 min a 8 K, 32 K y 68 K) se determinó, que entre 30 y 40 K, ***aglomerados de intersticiales*** con forma de “nube” pasaban a la configuración de lazo [67]. La distribución de tamaño de estos lazos aumentaba con el aumento de la temperatura. A 70 K los lazos tenían aproximadamente 90 intersticiales con diámetros medios de $\sim 30 \text{ \AA}$.

c) La retención de defectos es mucho más alta por encima de la Etapa I

Este hecho es consecuencia del menor recuperado fraccional de pares cercanos y de la creciente supervivencia de intersticiales durante la Etapa I_D respecto al caso electrónico.

Los intersticiales que han escapado de su cascada nativa tienen más probabilidad de evitar la recombinación ya que las vacancias están concentradas en las zonas desnudas y parcialmente apantalladas por los intersticiales de la periferia.

I. 4. 4. 2 La Etapa I luego de irradiar con Neutrones Térmicos

El espectro de un reactor se caracteriza por el flujo de neutrones rápidos y térmicos. Como se describió en § 1.2.1, a la captura de los neutrones térmicos por los átomos del blanco, le sigue la emisión de cuantos de alta energía, γ . El átomo desexcitado puede adquirir entre 100 y 500 eV. Esta energía es suficiente para iniciar eventos de desplazamientos produciendo Pares de Frenkel.

La Fig. I. 4. 7 muestra el módulo de la función derivada de la recuperación isócrona del incremento de la resistividad eléctrica de la Etapa I en Cu, luego de irradiar con neutrones térmicos ($8.1 \times 10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) a 3.5 K [68].

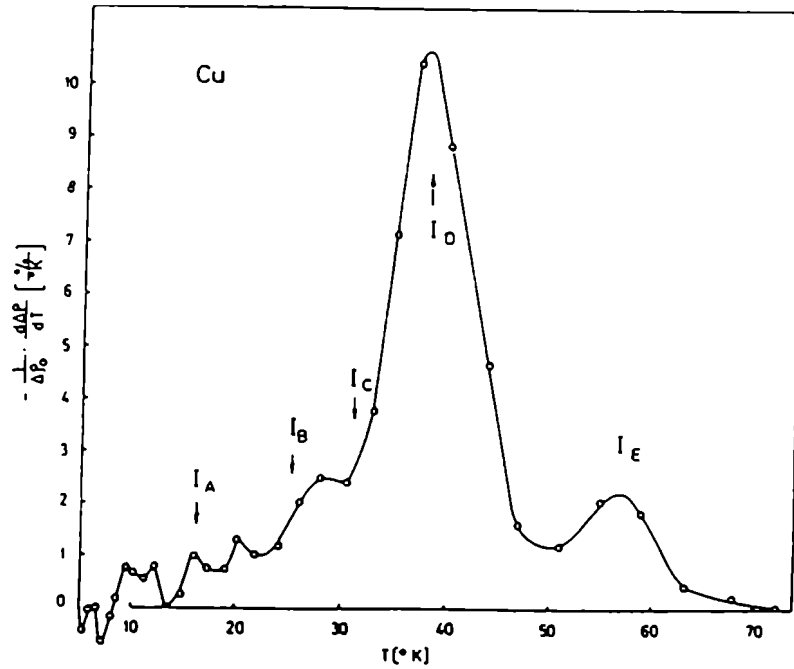


Fig. 1. 4. 7 Espectro de recuperación del Cu irradiado con neutrones térmicos a 3.5 K, $\Delta p_0 = 0.072 \text{ n}\Omega\text{cm}$. Las flechas indican el pico de temperatura observado para las distintas subetapas en Cu irradiado con electrones [68].

La reaparición de la Etapa I_E es el rasgo más destacable de la recuperación.

El porcentaje de recuperación de la Etapa I es mayor luego de la irradiación con neutrones térmicos (50 %), respecto a la correspondiente con neutrones rápidos (30 %). Pero, en ambos casos, el porcentaje retenido de defectos es mucho mayor que el correspondiente a irradiaciones con electrones²² (80 %).

I. 4. 4. 3 Irradiación a Altas Dosis cercanas a la de Saturación

A medida que aumenta la dosis las cascadas se superponen (§ I. 3. 1) En estas condiciones la Etapa I se modifica sustancialmente. La Fig. I. 4. 8 (a), muestra la influencia de la saturación de defectos en la recuperación de la Etapa I en *Cu irradiado con electrones* de 3 MeV a 4.5 K y la Fig I. 4. 8 (b) en *Cu irradiado* con neutrones rápidos a 4.5K.

En la Fig. I. 4. 8 (a) se puede ver que

- a) las Etapas I_B y I_C se reducen notablemente a medida que aumenta la saturación,
- b) I_C se elimina a dosis relativamente bajas.
- c) I_B puede reconocerse aún a dosis tan altas como $1.1 \times 10^{20} \text{ e/cm}^2$

Cuando la densidad de defectos se acerca a la de saturación, el número de saltos necesarios para que un intersticial encuentre a una vacancia se reduce notablemente. Se pierde

la distinción entre recombinación correlacionada y recombinación no correlacionada y se observa un **único pico**.

A medida que aumenta la densidad de defectos, debido a la disminución en el número de saltos que un autointersticial debe realizar para su recombinación, este pico se debe correr hacia las bajas temperaturas.

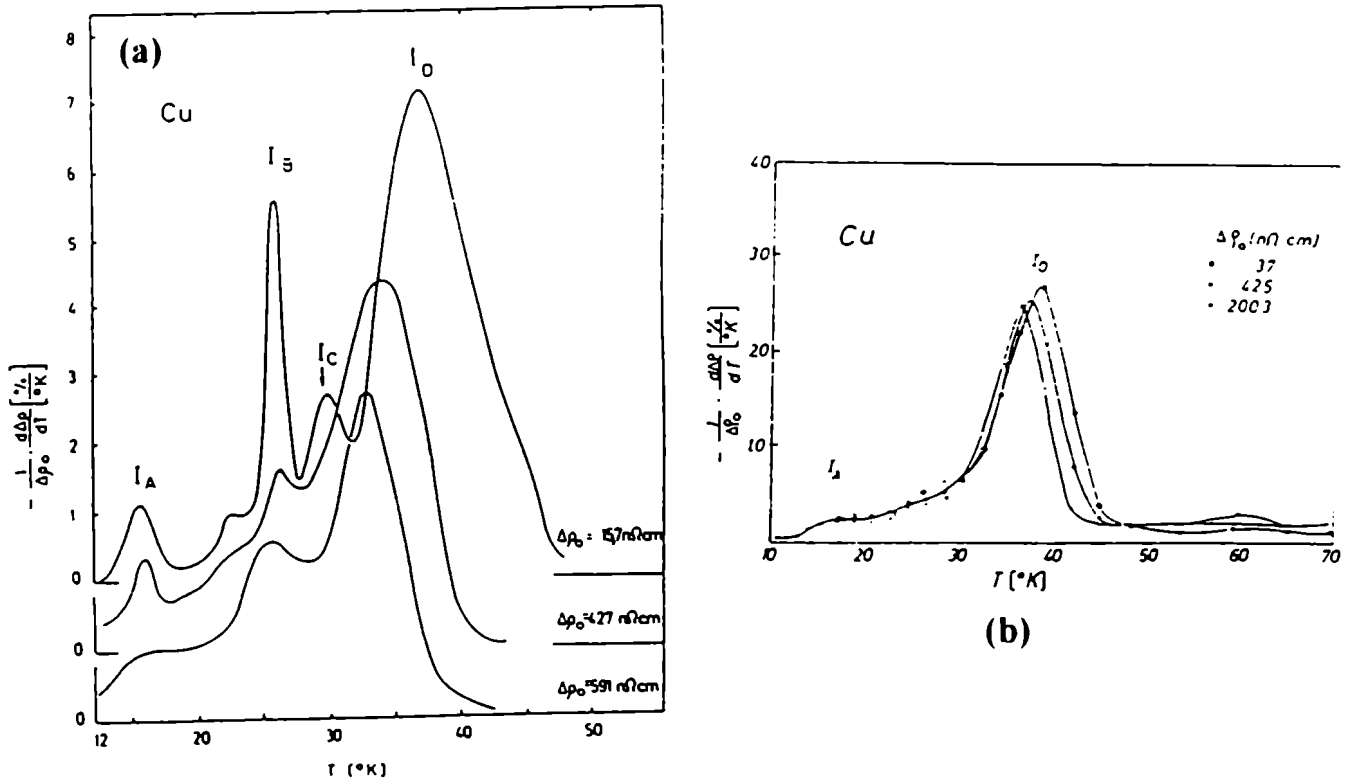


Fig. 1. 4. 8 Influencia de la saturación de defectos sobre el recuperado térmico de la Etapa I en Cu: (a) irradiado con electrones de 3 MeV a 4.5 K con el cambio de resistividad indicado; (b) irradiado con neutrones rápidos a 4.5 K, con el $\Delta\rho_0$ indicado [57].

Para el caso neutrónico la Etapa I_D se altera poco a medida que la dosis se acerca a la de saturación.

A partir de todo lo analizado surge que **la aparición de una subestructura es el rasgo característico de la Etapa I**

El contenido original de este trabajo de Tesis consiste en mostrar la existencia por primera vez, y por plasticidad, de al menos tres subetapas en la Etapa I, en monocristales de cobre irradiados con neutrones, a bajas dosis y temperatura.

I. 4. 4. 4 La Etapa II en Cobre

En Cu la Etapa II se extiende desde ~ 65 K hasta el inicio de la Etapa III, alrededor de 230 K, es decir -desde el punto de vista de los defectos- desde la finalización de la migración libre de intersticiales en la Etapa I, hasta el comienzo de la migración de vacancias característico de la Etapa III.

La Etapa II es altamente sensible al tipo de irradiación, dosis y contenido de **impurezas** del material.

Se recupera del **10 al 20 %** del remanente que deja la Etapa I en irradiaciones con electrones.

Los procesos de recuperación intrínsecos son dominantes en **muestras puras**, y se deben al **rearrreglo de los aglomerados de intersticiales** formados durante la Etapa I. En Cu, la recuperación del incremento de la resistividad eléctrica luego de la irradiación con electrones, es un proceso continuo. En Ni puro se observan subetapas^{2,3}.

El **contenido de impurezas** da lugar a procesos originados en el desatrape de intersticiales que son dominantes en **aleaciones diluidas** dando lugar a subetapas.

La interpretación de estas subetapas se realiza para cada caso particular, combinando modelos que tienen en cuenta la **disociación y rearrreglos** de complejos intersticial-impureza y comparando luego con resultados experimentales.

La conclusión general más importante que surge de los distintos estudios realizados con electrones en esta Etapa I, es que los defectos **di-intersticiales no se pueden disociar térmicamente** a la temperatura de la misma. Si se disociaran sería esperable una subetapa de recuperación similar a la I₁ en muestras dopadas por irradiación donde hay abundancia de sumideros de vacancias o de intersticiales ya atrapados, y dicha subetapa no ha sido observada.

En particular en Cu esta conclusión se puede extender a temperaturas por encima de la Etapa III. Hay medidas de energías de ligadura del di-intersticial tan altas como 1 eV y de allí, la sugerencia de configuraciones de alta estabilidad para di-intersticiales en Cu [57]

La comparación de los recuperados isócronos alrededor de la Etapa II en Cu irradiado con neutrones a 4.5 K, se muestra en la Fig. 4. 9 Se puede ver una **recuperación continua**, es decir, sin subetapas en ambos casos.

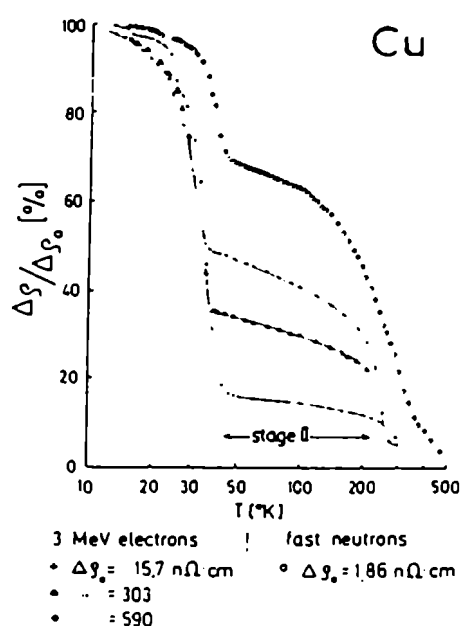


Fig. 4. 9 Comparación de las Etapas II de recuperación en Cu luego de irradiar a baja dosis con neutrones y a dosis crecientes con electrones [57]

I. 4. 4. 5 La Etapa II en Cobre a Dosis Cercanas a la de Saturación

La recuperación de la Etapa II con *electrones* a dosis cercanas a la de saturación se parece al caso *neutrónico* o *con partículas cargadas* donde, a medida que aumenta la dosis, aumenta el porcentaje de recuperación.

El recuperado de los defectos es un proceso *intrínseco* y depende de la *alta densidad de defectos iniciales* sin tener en cuenta si éstos están altamente localizados, como en el caso neutrónico o distribuidos homogéneamente como en el caso electrónico.

De la comparación de la recuperación de propiedades físicas tales como el cambio de parámetro de red ($\Delta a/a$), la energía almacenada, o el módulo elástico en Cu irradiado con neutrones [69 a 73] se encontraron diferencias respecto a lo observado por resistividad eléctrica. La evidencia de la presencia de *procesos de rearreglo* de defectos se reconfirma.

A partir de todos estos resultados se concluye que:

a) el proceso principal intrínseco en la Etapa II es el crecimiento, rearreglo y aglomeración de intersticiales a expensas de los de menor tamaño, y

b) el atrape de intersticiales en impurezas en muestras no puras.

I. 4. 4. 6 La Etapa III en Cu.

La Etapa III es la más prominente luego de la Etapa I en los metales ccc. En Cu irradiado con neutrones, se extiende entre ~ 220 K a 300 K.

Esta Etapa se asocia a la *migración de defectos tipo vacancia* [74,75]. La temperatura de recuperación coincide con la correspondiente a muestras templadas²⁴ [64]

Durante esta Etapa las vacancias se aniquilan en los aglomerados de intersticiales, con intersticiales liberados de impurezas, o se recombinan entre si, dando lugar a la formación de aglomerados estables de pequeño tamaño [76,77]

Su rasgo más característico es la *dependencia con la dosis*. Al aumentar la dosis la Etapa se corre hacia las bajas temperaturas lo que indica que el número medio de saltos durante la vida media de la vacancia se reduce a medida que aumenta el número de defectos producido por la irradiación.

La Fig I. 4 - 10 muestra a la subetapa I_D , ya discutida, y a la Etapa III en Cu irradiado con neutrones a bajas dosis y a 4.5 K. Se presentan dos subetapas obtenidas a partir de la recuperación de la resistividad eléctrica [57] y cuya interpretación es análoga a la correspondiente a las Etapas I_D y I_F ya analizadas

La primera de las subetapas (~ 230 K) se atribuye a la *recombinación correlacionada* de la vacancia que migra con su propia cascada nativa, estimándose que el número de saltos difusivos es pequeño debido a la alta densidad de defectos en el interior de la cascada.

La segunda subetapa (~ 300 K), se atribuye a la *recombinación descorrelacionada*, donde la aniquilación ocurre fuera de la zona nativa, y el número de saltos es más grande y decrece con el aumento de la dosis

A medida que aumenta la dosis la subetapa de alta temperatura se corre y se funde con el de baja temperatura en forma análoga al caso con electrones analizado en la Fig. I. 4 - 8. (a)

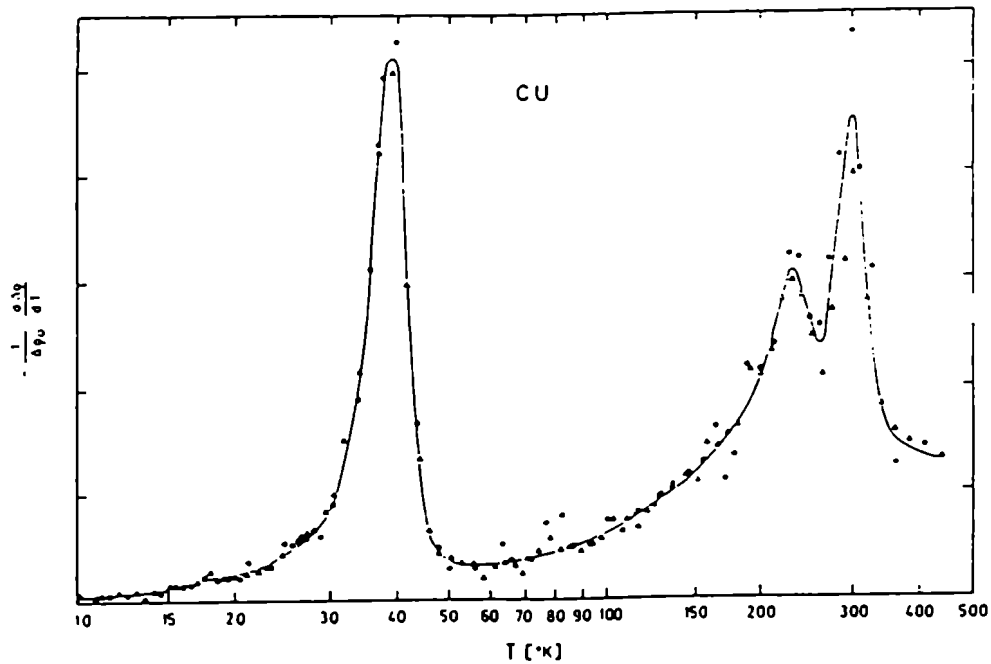


Fig. 1. 4. 10 Espectro de recuperación en Cu irradiado con neutrones rápidos a 4.5 K ($\Delta\rho_0=2 \text{ n}\Omega \text{ cm}$): a través de los puntos experimentales se dibuja una curva suave que promedia los resultados de dos irradiaciones independientes [57]

La Tabla I. 4. 3 resume las determinaciones experimentales de la energía de activación, U , de la Etapa III a partir del recuperado del cambio en la resistividad eléctrica, $\Delta\rho_{III}$, para distintos casos de irradiación en Cu. Para neutrones rápidos y partículas α de 30 MeV, el valor alcanzando es 0.72 eV [78]. El proceso de recuperación es *uniactivado* y su cinética es de orden dos [79].

Type of irradiation	Irradiation temperature (°K)	U (eV)	$\Delta\rho_{III}$ (n $\Omega \cdot \text{cm}$)	Number of independent samples
electrons 1.2 MeV	80	0.60 ± 0.01	0.6	2
electrons 1 MeV	90	0.67	3	2
electrons 1.5 MeV	100	0.71 ± 0.03	2	2
electrons 1.5 MeV	113	0.69 ± 0.05	2	2
α -particle 35 MeV	120	0.72	120	4
deuterons 12 MeV	90	0.68	80	several
deuterons 10 MeV	80	0.71 ± 0.04	20	2
fast neutrons	4	0.72 ± 0.03	18	8

Tabla I. 4. 3 Energías de activación, U , de la Etapa III en Cu a partir del recuperado térmico de la resistividad eléctrica, $\Delta\rho_{III}$, para irradiaciones con distintas partículas por los métodos mencionados en la última columna (ver § I. 4. 2 y nota 21)[57]

El 50% del daño al comienzo de la Etapa III se retiene luego de irradiar con neutrones. Esta retención fraccional es independiente de la dosis. En cambio, para irradiaciones con electrones a dosis altas en Cu, si la temperatura de irradiación es 4 K se retiene el 15%, y si la temperatura de la irradiación es mayor que 65 K, el 25%.

1. 4. 4. 7 Las Etapas I, II y III en Cu, a partir de la Recuperación de la Tensión Crítica Resuelta de Corte

Los estudios de la recuperación isócrona del endurecimiento, luego de irradiar con neutrones a baja temperatura, se iniciaron a fines de los años 50 y su número nunca es comparable al alcanzado con medidas equivalentes de resistividad eléctrica.

En la Fig. 1. 4. 11 se muestra *la única curva de recuperación isócrona junto al espectro de recuperación correspondiente*, que muestra las Etapas I, II y III por esta técnica. La curva fue trazada a partir de la recuperación de la $TCRC_{4.2K}$ de tres monocristales (señalados con los números 11, 9 y 6) de Cu (99.99 %) irradiados simultáneamente a $1.2 \cdot 10^{17} n\text{ cm}^{-2}$ y a 4.2 K [29]. Los puntos experimentales (*) corresponden a medidas previas de Blewitt y col [24] a la misma dosis.

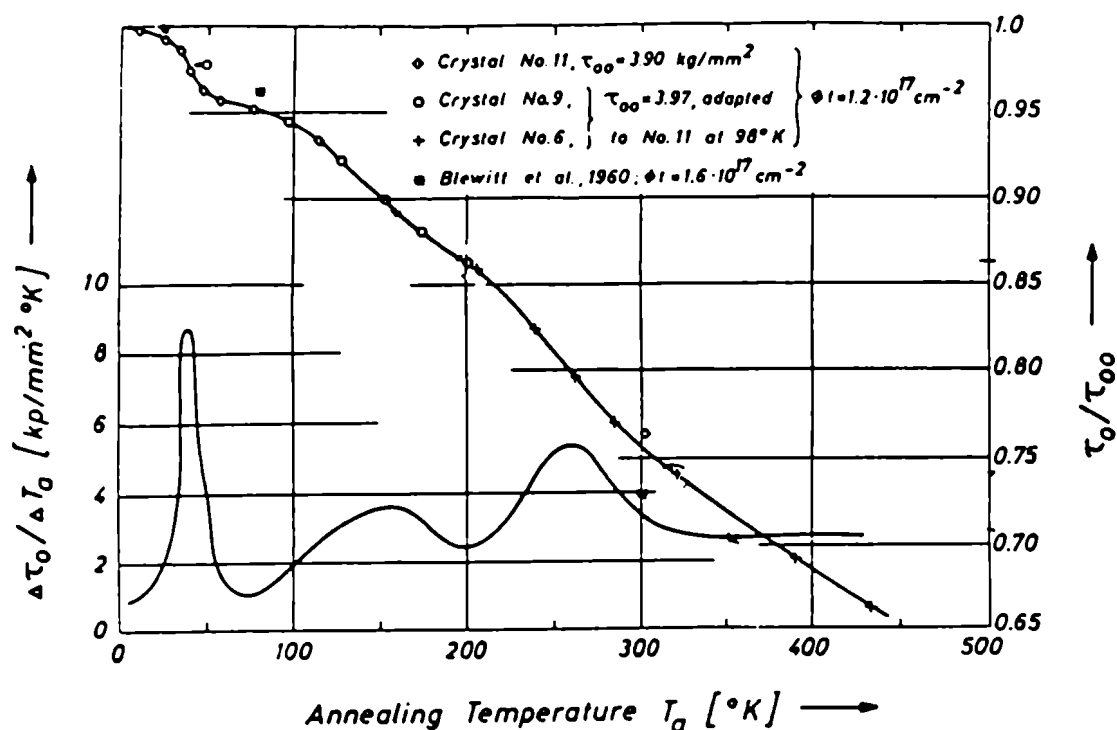


Fig. 1. 4. 11 Recuperado isócrono del incremento de la $TCRC_{4.2K}$ luego de irradiar con neutrones rápidos a $1.2 \cdot 10^{17} n\text{ cm}^{-2}$. La duración del pulso por debajo de 100 K es de 5 min y por encima de 100 K es de 10 min. La probeta n° 11 fue irradiada a 4.2 K y las n° 6 y 9 a 14 K. τ_{00} indica el valor de la $TCRC_{4.2K}$ antes del recuperado. Las curvas de los cristales 6 y 9 se adaptaron a la del cristal n° 11 mediante la elección de τ_{00} [29].

La Etapa I se ubica a ~ 40 K, la Etapa II se extiende entre 65 y 200 K y la Etapa III entre 200 y 300 K. El valor de la $TCRC_{4.2K}$ disminuye 5 % en la Etapa I, 10 % en la Etapa II y 10% en la Etapa III.

Los estudios por plasticidad dedicados a estas Etapas se agotan con estos dos estudios.

I. 4. 4. 8 La Etapa IV en Cu

El intervalo de temperatura ocupado por la Etapa IV en Cu., ~ 300 -450 K, facilitó su estudio. Los primeros trabajos de recuperación del incremento de la resistividad eléctrica se iniciaron al comienzo de los años 50 [80-83], pero al igual que la Etapa V, paradójicamente, nunca fue una Etapa estudiada tan sistemáticamente como lo fueron las Etapas I y III.

La Etapa IV es una etapa de recuperación monótona de la resistividad eléctrica en la que, al igual que en la Etapa II, no se ha observado ninguna subetapa de recuperación.

Este hecho experimental se opone a la predicción dada por el Modelo de Dos Intersticiales, que atribuye *la migración de vacancias* a esa subetapa (ver nota 24).

En estudios por MET realizados a las temperaturas de esta Etapa, se han observado la presencia de aglomerados de intersticiales y de vacancias. Los siguientes resultados se consideran concluyentes [56]:

- La concentración, distribución de tamaños y naturaleza de los aglomerados depende de *la temperatura de irradiación*. En Cu el tamaño promedio es mucho menor si se irradia a 4 K y luego se hace un recocido a 300 K, que si se irradia directamente a 300 K.
- La distribución de tamaños de los aglomerados no depende fuertemente del tipo de irradiación a 4 K.
- La cantidad total de daño retenida en forma de lazos por encima de la Etapa III respecto al daño total producido, depende del tipo y de la temperatura, de irradiación.
- A temperaturas de irradiación por encima de la Etapa III, el tipo de aglomerado depende del material irradiado.

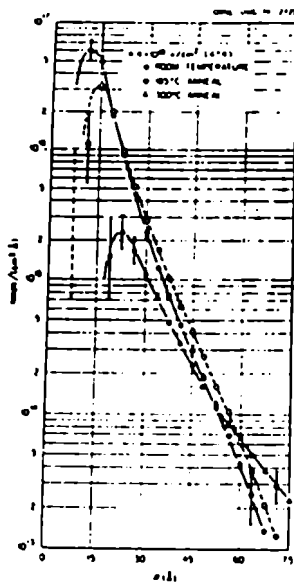


Fig. I. 4. 12 Distribución de tamaños de los lazos de dislocaciones en Cu, irradiado a 4 K con neutrones, a partir de medidas de dispersión de rayos-X realizadas a temperatura ambiente, luego de varios pulsos de recocido [56].

Las observaciones realizadas en Cu irradiado con electrones a 4.2 K, en hojuelas tratadas térmicamente a las temperaturas de la Etapa IV muestran que la concentración total de lazos disminuye, pero la de lazos de vacancias aumenta. Para Cu irradiado con neutrones a 4.2 K y luego del estudio de la distribución de tamaños de los lazos utilizando medidas de dispersión de rayos-X, que se muestran en la Fig. I. 4. 12, se verificó que la concentración total de lazos decrecía pero que la concentración correspondiente a los lazos de mayor tamaño, que en ese experimento se identificaron como de naturaleza intersticial, aumentaba.

I. 4. 4. 9 La Etapa V en Cu

La Etapa V ($T > 450$ K) se asocia a la disociación térmica de los *aglomerados de vacancias*. Las vacancias evaporadas de estos aglomerados se aniquilan en los lazos de intersticiales de modo que, al final de esta Etapa, los defectos introducidos por irradiación son eliminados.

La alta estabilidad de los aglomerados presentes en la Etapa V ($T > 600$ K) sólo puede surgir, como ya se mencionó en § I. 4. 1, a partir de las cascadas de desplazamientos atómicos creadas por los átomos desplazados primarios (PKAs).

Los trabajos sistemáticos con distintas técnicas de la Etapa V en Cu y en los restantes metales, son escasos. Un estudio clásico es el de W. Schilling y col. [83] a partir del recuperado isócrono del incremento de la resistividad eléctrica en Cu irradiado con electrones, partículas pesadas y neutrones rápidos. Los autores concluyen que:

- a) La ubicación en temperatura de la Etapa V, es la misma para irradiaciones con electrones o con partículas pesadas, Fig. I. 4. 13 (a).
- b) En *Cu irradiado con electrones a 5 K*, la dependencia con la dosis es pequeña y se verifica un corrimiento del centro de la etapa hacia las altas temperaturas con el aumento de la dosis, Fig. I. 4. 13 (b). Este corrimiento se atribuye a los procesos de aglomeración de las Etapas III y IV que, al aumentar la dosis, son más importantes y dan lugar a aglomerados más estables.
- c) Las energías de activación, Q , medidas en la parte central de la Etapa V, son cercanas a la de autodifusión, Q^{AD} , Fig. I. 4. 13 (c).

A partir de este resultado, se identifica a la energía de activación de esta Etapa con la de autodifusión de una vacancia, $E_{IV}^f - E_{IV}^m = Q_{IV}^{AD}$. Los valores promedio de cada una de estas magnitudes, a partir de diferentes mediciones son [78]:

$$E_{IV}^f = 1.28 \pm 0.05 \text{ eV}$$

$$E_{IV}^m = 0.70 \pm 0.02 \text{ eV}$$

de modo que su suma es igual 1.98 eV , mientras que la energía media asociada al centro de la Etapa V es del orden de $\sim 2.1 \text{ eV}$ y es *una función creciente* a lo largo de toda la Etapa. El valor de la energía de autodifusión dado en la bibliografía mas actualizada es 2.06 eV [78]

La energía de activación de la Etapa V, se interpreta como la energía de activación para la disociación de una vacancia del aglomerado al cual está ligada más la energía de activación para la migración de la misma hasta el aglomerado de intersticiales en el cual se aniquila

Esta interpretación está avalada por el valor de la energía de activación medida a partir de estudios por MET de la disminución de tamaño de los lazos de vacancias en metales templados y en metales irradiados, valor que coincide con el de la energía de autodifusión [56].

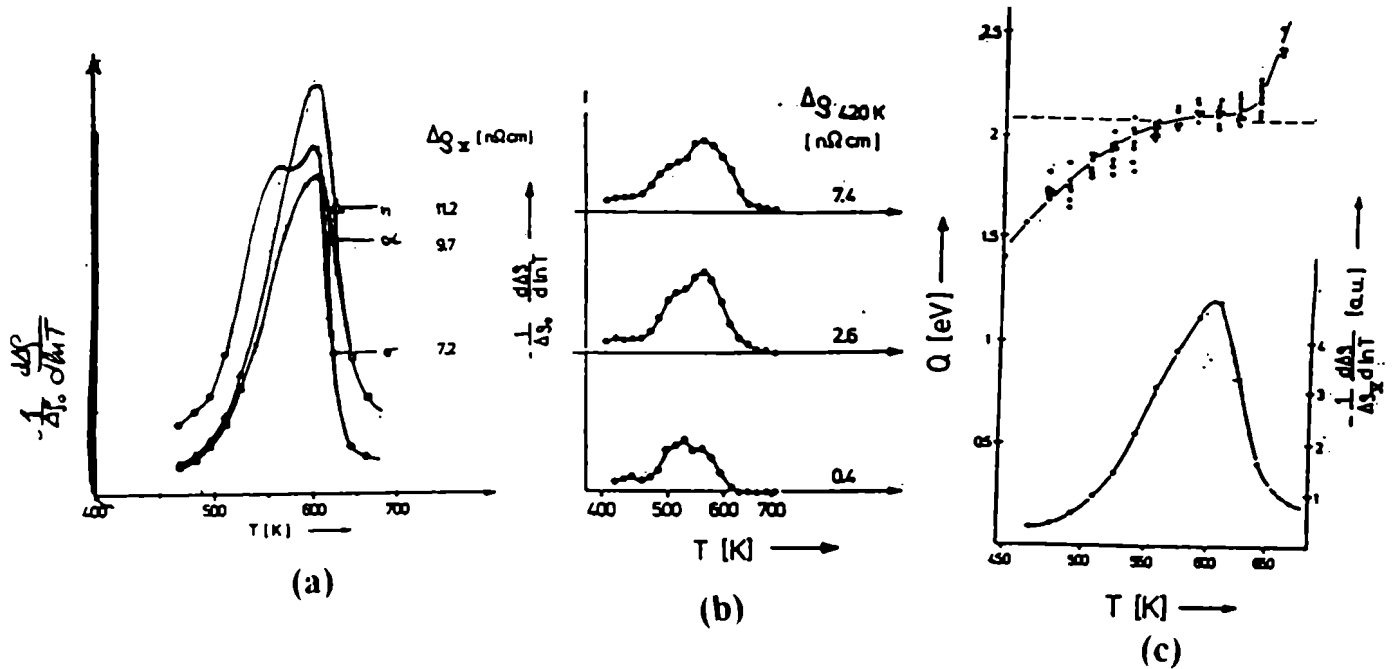


Fig. 1.4.13 Espectro de Recuperación del incremento de la resistividad eléctrica en el intervalo de temperatura de la Etapa V en Cu: (a) irradiado con electrones, partículas α y neutrones rápidos. $\Delta\rho_V$ es el incremento de la resistividad al comienzo de la Etapa V; (b) irradiado con electrones a 5 K y a diferentes dosis. $\Delta\rho_{420K}$ es el incremento en la resistividad presente al comienzo de la Etapa (420 K); (c) Medidas de las energías de activación, Q , por el Método de Cambio de Pendiente en Cu. La curva inferior representa a un recuperado isócrono típico y se incluye para facilitar la comparación [83].

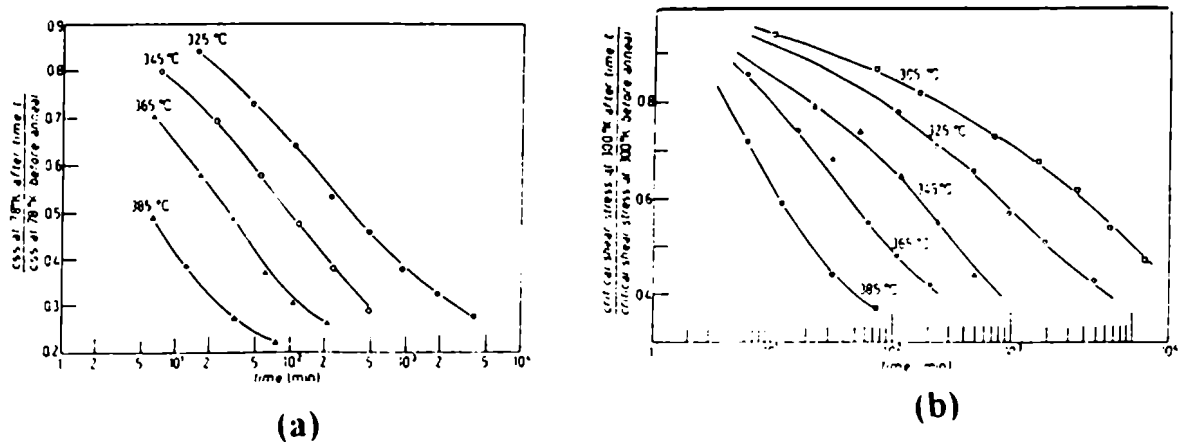


Fig. 1.4.14 Recuperados isotérmicos de la TCRC de monocristales de Cu irradiados con neutrones rápidos a 10^{19} n cm^{-2} y a temperatura de reactor. TCRC medida a (a) a 78 K y (b) a 300 K [24]

La energía de activación de esta Etapa también fue calculada luego de la recuperación isotérmica del incremento de la TCRC_{78K} en un conjunto de probetas y de la correspondiente a la TCRC_{300K} en otro conjunto de probetas -todas ellas, probetas de tracción monocristalinas-

irradiadas a 10^{19} n cm⁻² y a temperatura de reactor. El tratamiento térmico se realizaba sumergiendo a las probetas en sales a temperaturas prefijadas: 305, 325, 345, 365 y 385 °C. Los resultados se muestran en la Fig. I. 4. 14 (a) y (b).

A partir de la integración de la expresión para la velocidad de reacción clásica [84,85]

$$\frac{dn}{dt} = n^\alpha \nu_0 e^{-E/kT} \quad \text{Ec. I. 4. 1}$$

siendo,

n el número de defectos,

ν_0 la frecuencia característica de salto,

α el orden de la reacción,

E la energía de activación,

k la constante de Boltzmann,

T la temperatura absoluta del recocido isotérmico,

t la duración del recocido a temperatura T

y suponiendo que:

a) la TCRC es una función univaluada del número de defectos,

b) el número de defectos introducido durante la irradiación es el mismo en todas las probetas (irradiación simultánea en probetas idénticas),

c) un mismo valor de recuperación de la TCRC equivale al mismo número de defectos, el cual fue alcanzado a tiempos diferentes en cada recocido isotérmico,

la energía de activación se puede calcular gráficamente mediante la representación de $\ln t_i$ vs $1/T_i$ para cada valor de recuperación elegido, siendo t_i y T_i el tiempo y la temperatura para alcanzar dicho valor de recuperación en el recocido isotérmico "i" y analíticamente a partir de la pendiente de la recta determinada por:

$$\ln t_i - \frac{E}{k} T_i = \text{constante} \quad \text{Ec. I. 4. 2}$$

el resultado obtenido para el caso de la TCRC_{300K}, se muestra en la Fig. I. 4. 15

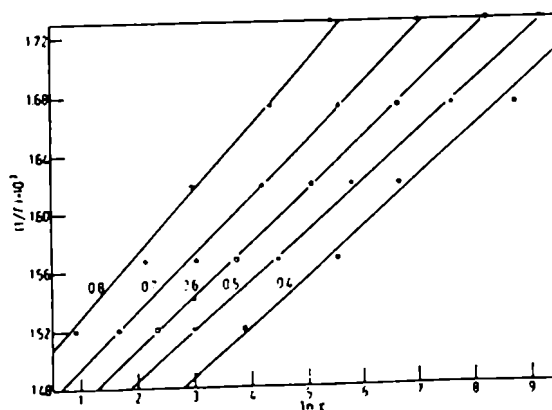


Fig. I. 4. 15 Determinación fenomenológica de la energía de activación de la Etapa V en Cu a partir de medidas de la recuperación isotérmica de la TCRC_{300K}. Los tiempos corresponden a los valores relativos de recuperación 0.8, 0.7, 0.6, 0.5 y 0.4 respecto a la tensión postirradiación [24]

Las pendientes de las rectas trazadas por los puntos experimentales mostradas en la Fig. I. 4. 15 corresponden a energías de activación entre 2 y 2.5 eV. El hecho que la energía de activación aparente de la Etapa V aumente a medida que aumenta la recuperación sugiere la existencia de *un espectro de energías de activación*.

Dado que en la Etapa V se están recuperando simultáneamente aglomerados de intersticiales y de vacancias -ambos tipos de aglomerados con un espectro de tamaños- sería poco probable suponer que el proceso fuese uniactivado.

La existencia de subetapas de recuperación de la Etapa V, puestas en evidencia en este trabajo de Tesis, demuestra en forma concluyente que el proceso de recuperación de esta etapa es multiactivado y que se pueden distinguir al menos tres procesos cinéticos diferentes a partir de medidas de recuperación de la TCRC en las condiciones experimentales adecuadas.

Los trabajos citados en esta presentación conceptual de la Etapa V, serán discutidos en la Cuarta Parte de este trabajo a la luz de los resultados experimentales obtenidos, junto a otros trabajos aún no mencionados.

¹Para los metales ccc, hay 4 conjuntos de planos octaédricos $\{111\}$ en la celda primitiva. Cada uno de ellos tiene 3 direcciones $\langle 110 \rangle$ (diagonales de las caras). De modo que corresponden 12 sistemas de deslizamiento equivalentes a esta estructura cristalina. En la Fig. 1 se muestra la celda elemental con los dos ejes coordenados a y b en el plano del dibujo y el tercero, c , con su semieje positivo hacia el observador. Sobre esta celda aparece la proyección de las cuatro caras superiores del octaedro formado por los átomos de las caras del cubo. Cada una de estas cuatro caras lleva los índices de Miller del plano que le corresponde. A su vez están indicados los índices de las rectas constituidas por las aristas del octaedro, con sus signos respectivos según el sentido señalado por las flechas. Estas cuatro caras representan los planos de traslación T fundamentales y sus tres aristas las tres direcciones, t , para cada una de esas caras.

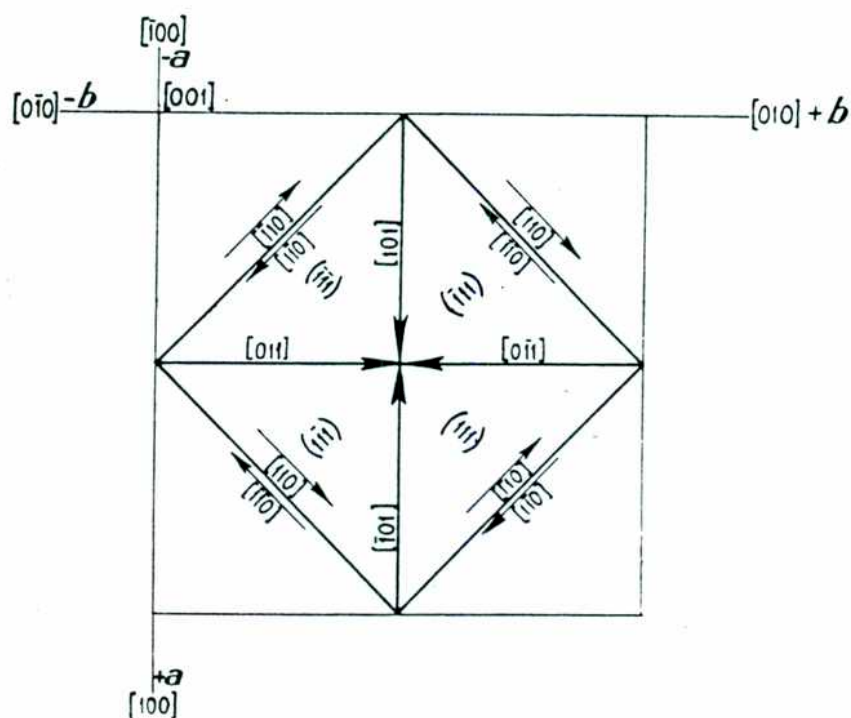


Fig. 1. 1. Sistemas de deslizamiento $T = \{111\}$ $t = \langle 110 \rangle$ del sistema cúbico centrado en las caras (S. A. Delpech, "Estructura y Deformación de los Metales", Ed. Alsina, Buenos Aires, fig. 18, 107, 1952).

²La proyección estereográfica "standard" para el sistema cúbico se ilustra en la Fig. 1. 2 La experiencia señala que para cualquier punto en que la prolongación del eje de la barra corte a la esfera de referencia, todos los polos que caen dentro de un mismo triángulo poseen un sistema de traslación común. Dentro de cada uno de los 24 triángulos estereográficos equivalentes, mostrados en la Fig. 1. 2., se ha indicado el sistema de traslación correspondiente.

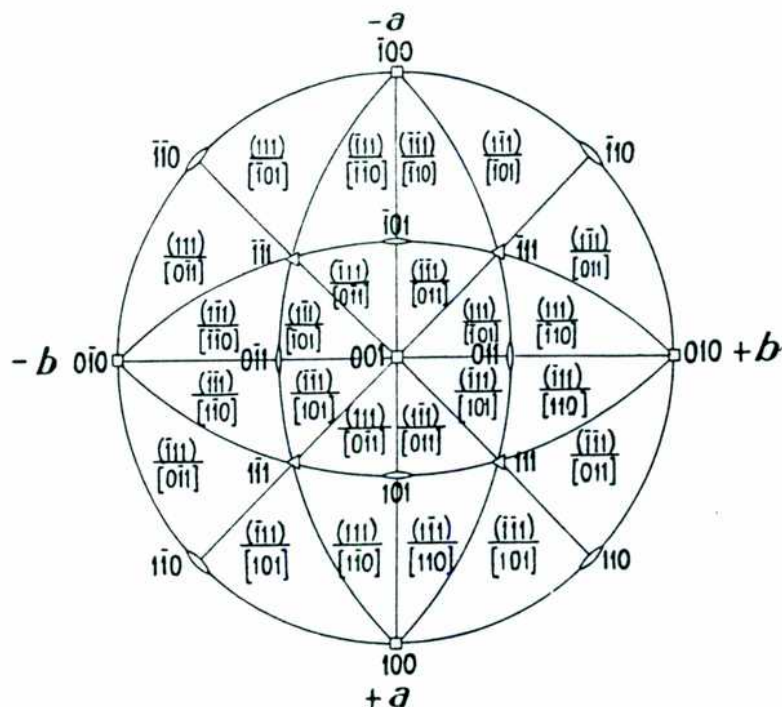


Fig. I. 2 Proyección estereográfica estándar [001] para el sistema cúbico, indicando en el interior de cada triángulo el sistema de deslizamiento correspondiente (S. A. Delpech, "Estructura y Deformación de los Metales", Ed. Alsina, Buenos Aires, fig. 19, 108, 1952).

³En el caso de deslizamiento doble, γ se expresa mediante la Ec. I. 1:

$$\gamma = \sqrt{6} \ln \left[\frac{1 + \sqrt{2} \cot \beta}{1 + \sqrt{2} \cot \beta_0} \right] \quad \text{Ec. I. 1}$$

donde β es el ángulo entre el eje de tracción y el borde $[001]-[\bar{1}11]$. La deducción de esta expresión como así también los cálculos correspondientes para el deslizamiento doble en tensión y compresión para cristales cúbicos centrados en el cuerpo se encuentran en D. K. Bowen and J. K. Cristian: "The calculation of Shear Stress and Shear Strain for Double Glide in Tension and Compression", *Phil. Mag.* 12, 369, 1965.

El comportamiento de los cristales cuando el eje alcanza el plano dodecaédrico y lo sobrepasa es un tema de investigación en si mismo, ya que en muchos casos hay desviaciones al comportamiento predicho para este caso (J. F. Bell and R. E. Green, Jr., "An Experimental Study of the Double Slip Deformation Hypothesis for Face-Centred Cubic Crystals", *Phil. Mag.* 15, 469, 1967).

Para cristales cuyo eje cae en orientaciones coincidentes a los bordes del triángulo estereográfico, la τ será la misma para más de un sistema de deslizamiento. La deformación plástica comenzará en más de un plano de deslizamiento e inicialmente deformará por deslizamiento doble. La Fig. I. 3 muestra el número de sistemas de deslizamiento operativos en un cristal cúbico con aquellas orientaciones.

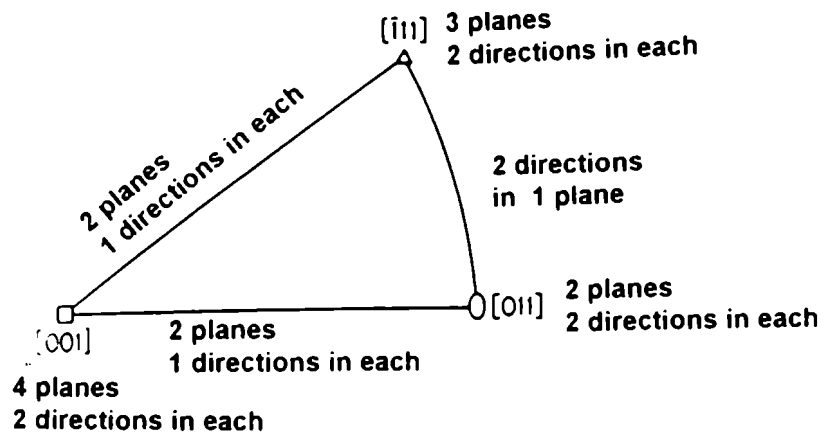


Fig. I. 3 Sistemas de deslizamiento operativos a lo largo de los bordes del triángulo estereográfico de vértices $[001]$ - $[\bar{1}11]$ - $[011]$ (G. E. Dieter, "Mechanical Metallurgy", Mc Graw Hill, London, fig 4-26, 135, 1976).

⁴Se puede realizar una generalización de estas curvas para todos los metales ccc. Se divide habitualmente a la gráfica en tres zonas. Las mismas se muestran en la Fig. I. 4

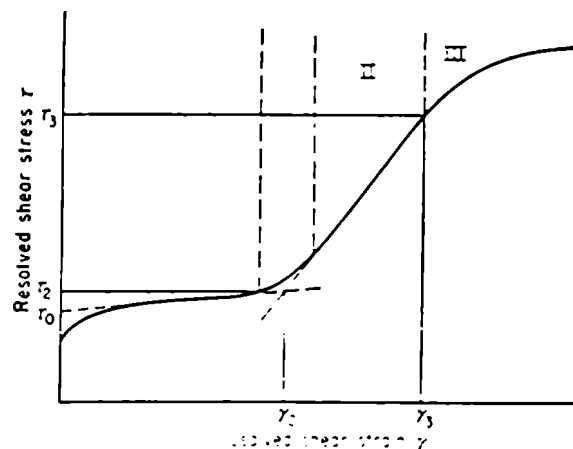


Fig. I. 4 Esquema general de la curva τ vs γ para monocristales ccc (G.E. Dieter, "Mechanical Metallurgy" Mc Graw Hill, London, fig 4-39, 147, 1976).

Los mecanismos que controlan el comportamiento observado constituye, en si mismos, un campo de estudio específico, en cada etapa.

⁵Con el objeto de esclarecer los factores que controlan el inicio del flujo plástico en monocristales y policristales y decidir entre las distintas teorías vigentes en los años 50 (fuerzas de Peirels-Navarro, Fuentes de Frank-Read, intersección de la dislocación que desliza con la foresta de dislocaciones presente en el material), la variable decisiva para diferenciar los mecanismos, era la *temperatura del*

ensayo. En el caso de los dos primeros modelos, se esperaba una dependencia similar a la que tienen las constantes elásticas, mientras que en el último la dependencia con la temperatura debería ser función de la tensión aplicada y depender del número de dislocaciones presentes en el momento que se establece el flujo.

⁶ Las propiedades mecánicas de los policristales de Cu de alta pureza, también han sido extensamente estudiadas y son interesantes para establecer comparaciones y diferenciar los mecanismos que subyacen en las distintas etapas de deformación (*D. A. Thomas and B. L. Averbach, "The Early Stages of Plastic Deformation in Copper", Acta Met. 7, 69, 1959*).

⁷ Para comparar los efectos producidos por la irradiación neutrónica en distintas facilidades (*L. R. Greenwood: "Neutron Interactions and Atomic Recoil Spectra", J. Nucl. Mat. 216, 29, 1994*) se utiliza usualmente un parámetro de exposición llamado *desplazamiento por átomo (dpa)*. Este parámetro incorpora, en primera aproximación, la dependencia de la respuesta del material al espectro neutrónico al que ha sido expuesto.

La expresión analítica del *dpa* se basa en el modelo modificado de Kinchin-Pease (ver la serie de trabajos publicados en *Nucl. Eng. Design 33, 1-92, 1975*):

$$dpa = [\kappa \langle \sigma E_D \rangle / 2E_d] \phi t = \sigma_d \phi t \quad \text{Ec. I. 2}$$

siendo:

$\kappa = 0.8$

E_d la energía umbral de desplazamiento

ϕ el flujo de la radiación incidente

t el tiempo de irradiación

σ_d la sección eficaz de desplazamiento (ver § I. 2. 4)

$\langle \sigma E_D \rangle$ es la *sección eficaz de daño o energía de daño específica* (*M. T. Robinson, "The Theory of Radiation Induced Defect Production", Radiation Damage in Metals, Ed. N. L. Petersen, S. A. Aarkness: Am. Soc. Met., 18, 1975*):

$$\langle \sigma E_D \rangle = \int_0^{T_m} \sigma(E) q(E) dE \int_{E_D}^{T_m} p(T) dT \quad \text{Ec. I. 3}$$

$p(E)$ es el espectro de átomos desplazados primario normalizado a un desplazamiento

E_D es la energía de daño (ver § I. 2. 4)

$T_m(E)$ es la energía máxima transferida por una partícula de energía E

$\sigma(E)$ es la sección eficaz de desplazamiento para partículas incidentes de energía E

$q(E)$ es el espectro de energías de la radiación incidente normalizado a una partícula.

La Tabla I. 1 presenta las energías de daño específicas calculadas a partir de tres diferentes espectros neutrónicos de fisión y el valor para neutrones térmicos en un blanco de Cu:

Blanco	Térmicos	Fisión	Fisión	Fisión
Cu	0.12	8.02	8.32	9.07

Tabla I. 1 Cálculos de la energía específica de daño en Cu para distintos espectros $\langle \sigma E_D \rangle$ (eV-cm² × 10²⁰) a partir del trabajo de M.T. Robinson citado.

Tomando el valor de la energía específica de daño, a partir de esta tabla y considerando una dosis de $\sim 4 \times 10^{16}$ n/cm², las irradiaciones llevadas a cabo en este trabajo a 77 K corresponden a $\sim 10^4$ dpa.

El parámetro *dpa* si bien es muy usado no es un buen cuantificador del daño. Dos muestras pueden tener el mismo dpa a partir de la irradiación en distintas facilidades pero ello no significa que tengan la misma estructura de defectos. (L. S. Harbison and A. L. Lowe, Jr., "Metallurgical Considerations in the Application of DPA to Reactor Vessel Analysis", *Effects of Radiation on Materials: 16th Int. Symp. ASTM, STP 1175*, A. S. Kumar, D. S. Gelles, R. K. Nastad, E. A. Little, Eds. Am. Soc. for Testing and Materials, Philadelphia, 528, 1993).

⁸La producción de daño por desplazamientos en una red metálica, depende de la *masa y de la carga* de la partícula elegida para la irradiación. *El número de átomos desplazados primarios y las energías de los mismos* (espectro de átomos desplazados primarios) son característicos de cada elección.

El espectro de átomos desplazados primarios por una partícula energética, en el presente caso un *neutrón*, hace referencia al número de colisiones en las cuales la partícula transfiere una energía entre T y T + dT. Una forma conveniente de expresar este espectro es mediante la función normalizada P(E,T) (R. S. Averbak "Atomic Displacement Processes in Irradiated Metals", *J. Nucl. Mat.* 216, 49, 1994):

$$P(E,T) = \frac{1}{N} \int_{T_d}^T \frac{d\sigma(E,T)}{dT} dT \quad \text{Ec. I. 4}$$

que representa al cociente entre el número de átomos desplazados con energías entre la energía umbral de desplazamiento T_d (ver nota 9) y T. N es el número total de átomos primarios y $d\sigma(E,T)$ es la sección eficaz diferencial para que una partícula de energía E pueda crear una partícula con energía T

La Fig.I. 5 ilustra, en términos cualitativos, el espectro de átomos desplazados primarios para diferentes partículas de 1 MeV, en Cu. Se observa el número mayor de átomos desplazados así como la mayor energía transferida cuando se bombardea con iones pesados respecto a la irradiación con iones livianos. *Para el caso neutrónico, cada neutrón produce un único PKA y $T_{1,2} \sim 45$ keV* (este parámetro se explica en relación a la Fig. I. 6). En este caso la interacción queda bien definida con el modelo de *esferas rígidas*.

Con referencia a la *producción de defectos*, no es el número de PKA de una dada energía la que importa, sino la fracción de defectos y la energía de daño que producen los átomos desplazados primarios. De este modo se define el *espectro de átomos desplazados primario promedio ponderado*, $W(E,T)$ para partículas con energía E. $W(E,T)$ pondera el espectro primario con el número de defectos o con la energía de daño producidos en cada desplazamiento (R. S. Averback, *Atomic Displacement Processes in Irradiated Metals* "J. Nucl. Mat. 216, 49, 1994)

$$W(E,T) = \frac{1}{E_D(E)} \int dT \frac{d\sigma(E,T)}{dT} E_D(T) \quad \text{Ec. I. 5}$$

donde $E_D(T)$ es la función daño creada por un átomo desplazado de energía T que, a su vez, es proporcional al número de defectos producidos

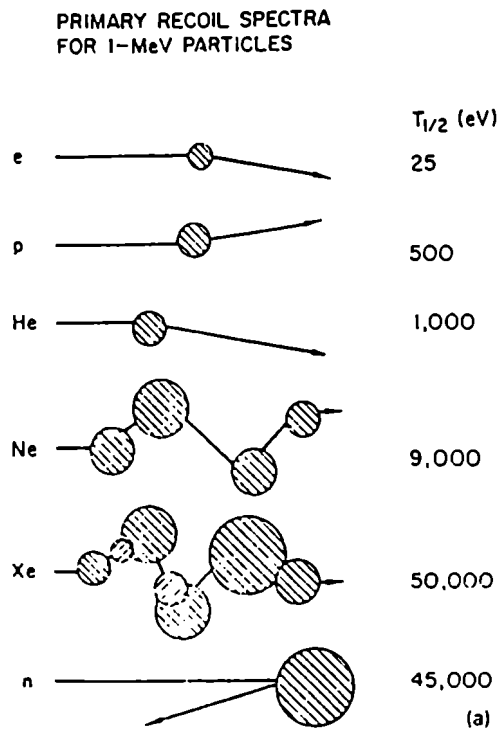


Fig 1. 5 Representación cualitativa del espectro de átomos desplazados primarios para diferentes partículas de 1 MeV, incidiendo en la red de Cu. Los círculos indican los sitios donde se producen los desplazamientos y el tamaño la energía transferida al átomo desplazado. $T_{1/2}$ hace referencia a una energía de desplazamiento típica que será definida posteriormente (R. S. Averback, "Atomic Displacement Processes in Irradiated Metals", *J. Nucl. Mat.* 216, 49, 1994)

Es interesante examinar $W(E, T)$ para dos casos extremos de interacción. La interacción coulombiana se extiende a infinito y aumenta lentamente a medida que las partículas colisionantes se acerquen entre sí. Para la interacción de esferas duras las partículas no interactúan hasta que ellas alcanzan el radio de la esfera, punto en el cual la fuerza repulsiva es infinita. Las secciones eficaces de desplazamiento para ambos tipos de interacción están expresadas por las Ecs 1. 2. 20 y 1. 2. 22 del Capítulo 1. 2. Si se ignoran las excitaciones electrónicas y se toma $E_D = T$, ambas ecuaciones se pueden integrar usando las expresiones de las secciones eficaces diferenciales y se obtiene.

$$W(T) = \frac{\ln T - \ln T_{\min}}{\ln T_{\max} - \ln T_{\min}}$$

Ec. 1. 6

$$W_i(T) = \frac{T^2 - T_{\min}^2}{T_{\max}^2}$$

Estas se ilustran en la Fig. I. 6 para la irradiación con partículas de 1 MeV en Cu. El potencial Coulombiano es una buena aproximación para la irradiación con electrones, mientras *que la interacción de esferas duras representa muy bien a los neutrones rápidos*. Es notable la diferencia en el espectro de átomos desplazados primarios por protones que por neutrones. Aproximadamente todos los defectos producidos por irradiación neutrónica se encuentran en cascadas *originadas por PKAs de alta energía*, mientras que los defectos producidos por protones se deben a PKAs de baja energía. Se muestran también irradiaciones con otras partículas para establecer comparaciones. *Los iones pesados como el Kr, proveen un daño mucho más parecido al de la irradiación neutrónica que el correspondiente a iones livianos, como protones o partículas α .* Es práctica común caracterizar el espectro de átomos desplazados primarios promedio ponderado con el parámetro $T_{1/2}$. Este es el valor de la T para el cual $W(T) = 0.5$, es decir la mitad de los defectos son producidos en cascadas con energías mayores que $T_{1/2}$ y la otra mitad en cascadas con energías menores

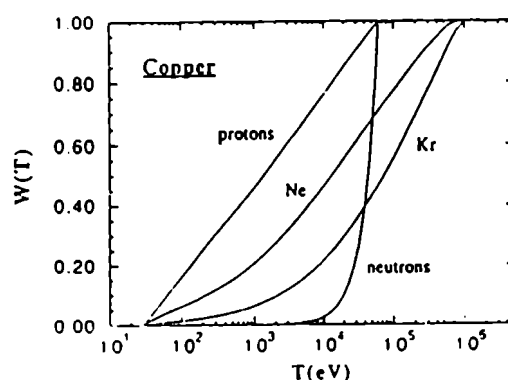


Fig. I. 6 Espectro de átomos desplazados primarios promedio ponderado, para partículas de 1 MeV en Cu. Las curvas que representan protones y neutrones se calculan a partir de las Ecs. I. 6. El $W(T)$ para Ne y Kr se calcula utilizando las secciones eficaces de Lindhard, incluyendo la excitación electrónica.

⁹La energía mínima requerida para producir el desplazamiento de un átomo de la red de forma irreversible hacia una posición intersticial se denomina **Energía Umbral de Desplazamiento, E_d** . El valor de esta magnitud depende de la dirección en la cual el átomo es desplazado (*J. B. Gibson, A. N. Goland, M. Milgram and G. H. Vineyard, Phys. Rev. 120, 1229, 1960*). Para energías menores que la umbral, un átomo se mueve alejándose de su sitio natural, pero eventualmente retorna al mismo. Para energías mayores se forma un defecto de larga vida consistente de una vacancia en el sitio inicial y de un átomo intersticial. El intersticial puede ser el átomo que originalmente estaba en el sitio vacante, pero este átomo frecuentemente hace una colisión de reemplazo (SCR) (ver nota 11), de modo que el intersticial es otro átomo. La posibilidad de hacer colisiones de reemplazo depende de la dirección en la cual el átomo abandona su sitio inicial en la red y la longitud de una secuencia de colisiones de reemplazo, de la dirección cristalográfica que tenga su movimiento. La irradiación con electrones permite medir experimentalmente la denominada **superficie umbral de desplazamiento**. La Fig. I. 7 muestra las mediciones realizadas en Cu (*W. E. King, K. L. Merkle and M. Meshii, J. Nucl. Mat. 117, 129, 1983*).

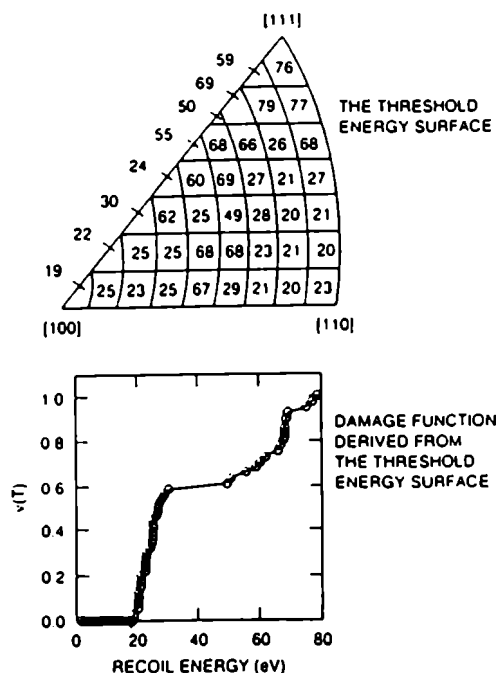
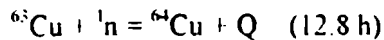


Fig. 1. 7 Energías umbrales de desplazamiento obtenidas experimentalmente en Cu (W. E. King, K. L. Merkle and M. Meshii: *J. Nucl. Mat.* 117, 129, 1983)

La figura superior muestra los valores de E_d encontrados en cada una de las 41 regiones angulares, las cuales cubren el espacio de direcciones de un cristal ccc. Se observa que E_d es más baja en las direcciones compactas [110] y [100] debido a la alta probabilidad del establecimiento de SCR a lo largo de estas direcciones. La energía umbral más alta se encuentra cerca de la dirección [111], es decir en la dirección perpendicular a los planos más compactos de la estructura. La figura inferior muestra $v(E)$ vs E (eV), número de átomos desplazados vs energía del PKA, deducida a partir de estas mediciones. En lugar de la función escalón originalmente asumida por el modelo de Kinchin-Pease (G. H. Kinchin and R. S. Pease, "The Displacement of Atoms in Solids by Radiation" *Prog. Phys.* 18, 1-51, 1955) aparece un gran escalón entre 20 y 30 eV, una región relativamente plana hasta 50 eV, y un segundo escalonamiento gradual entre 50 y 70 eV. El evento seguro, es decir la formación de un defecto estable de larga vida, ocurre para 80 eV. Estas determinaciones se hacen con *haces monoenergéticos de electrones*, y si bien los blancos son monocristales, el daño es prominente en el cono alrededor de la dirección de incidencia. Pero para irradiaciones en las cuales todas las direcciones son igualmente probables, como es el caso presentado en esta Tesis, la cantidad relevante es *la energía de desplazamiento umbral promedio* sobre todas las direcciones cristalinas, y es en un factor 1.5 a 2.2, siendo el valor experimental 1.4, de E_{min} . En Cu los umbrales mínimos están entre 20-25 eV desde cualquier dirección del cristal. Para este metal se asume $E_{min}=19$ eV de donde $\langle E_d \rangle_{cr} \sim 27$ eV.

En forma equivalente a E_d , se puede definir un *volumen de inestabilidad de radio r_v alrededor de una vacancia*. De este modo un átomo que queda en reposo en este volumen se recombina con la vacancia y si queda excluido del mismo se forma un *Par de Frenkel* estable.

¹⁰Para el Cu el cambio de energía potencial asociado a la reacción, Q , se calcula a partir del planteo de la reacción:



7

Ec. I.

Si $E_n = 526 \text{ eV}$, $Q = 7.916 \text{ MeV}$ y la energía del átomo desplazado promedio, es $\langle T \rangle = 374 \text{ eV}$ (M. T. Robinson, "Basic Physics of Radiation Damage Production", J. Nucl. Mat. 216, 10, 1994).

¹¹La *secuencias de colisiones de reemplazo (SCR)* consisten en una serie de choques frontales a lo largo de filas compactas en la cual cada átomo colisiona con su vecino en la fila. Estas colisiones pueden ser de dos tipos: por debajo de una energía umbral cada átomo sucesivo de la serie se mueve en una dirección más cercana a la fila que su predecesor. Este comportamiento recibe el nombre de *secuencia focalizada* y al umbral de energía, *energía de focalización (10 a 100 eV)*. Por encima de la energía de focalización los sucesivos miembros de la secuencia se mueven a ángulos crecientes con respecto a la dirección de la fila y eventualmente la secuencia puede terminar con el último átomo moviéndose al azar en el cristal. A partir de estudios de dinámica molecular, DM, se predijo que los restantes átomos colaboraban en la secuencia de focalización (R.S. Nelson and M.W. Thompson, "Atomic Collision Sequences in Crystals of Copper, Silver and Gold Revealed by Sputtering in Energetic Ion Beams", Proc. R. Soc. London A259, 458, 1961) y que las SCR era el mecanismo dominante en el desarrollo de cascadas de baja energía (J. B. Gibson, A. N. Goland, M. Milgram and G. H. Vineyard, Phys. Rev. 120, 1229, 1960) y que éstas jugaban un rol importante en la determinación del valor de la energía umbral de desplazamiento.

¹²El *focuson* se define como una secuencia de colisiones en la cual todos los átomos desplazados, retoman a sus sitios originales, luego de ceder gran parte de su energía a sus vecinos. Tanto las SCR como los focusons transportan energía a lugares lejanos al punto en que se originaron pero, a diferencia de las SCR, los focusons no transportan momento cinético. Ambos son mecanismos para disipar la energía de un átomo desplazado rápido con poca o ninguna producción de daño. En una SCR, la energía eventualmente se vuelve lo suficientemente baja, como para producir desplazamientos adicionales y se convierte en un focuson. Las SCR frecuentemente terminan en un átomo intersticial seguido por un focuson, el cual disipa la energía cinética remanente.

¹³A partir de la aproximación LSS se pueden mejorar las predicciones respecto al número de PF formados por un PKA energético dado por el modelo de Kinchin-Pease (G. H. Kinchin and R. S. Pease, "The Displacement of Atoms in Solids by Radiation" Prog. Phys. 1-51, 1955). Para evaluar el daño se realiza la partición de la energía del siguiente modo:

Sea v_1 la energía cinética media total disipada en todos los *desplazamientos atómicos* y η_i la energía media total disipada en *excitación electrónica* e ionización durante el desarrollo de la cascada. Luego

$$E = v_1 + \eta_i$$

Ec. I. 8

que conduce a definir la *Energía de Daño (E_D)* como

$$E_D = v_1 / E_1$$

Ec. I. 9

A partir de los cálculos de LSS, la energía de daño puede ser aproximada por

$$E_D = \frac{E}{\left[1 + k_1 \, g\left(\frac{E}{E_1} \right) \right]}$$

donde,

Ec. I. 10

$$g(\xi) = \xi - 0.40244 \, \xi^{1.4} + 3.4008 \, \xi^{1.6}$$

Es de suma importancia conocer E_D para los distintos materiales en función de la energía transferida al PKA. (también llamadas *funciones daño*). Pero la determinación experimental de estas funciones no es sencilla. El método más importante para determinar el número de defectos en los metales es medir el incremento en la resistividad eléctrica:

$$\Delta\rho = \rho_{PF} \, C_{PF}$$

Ec. I. 11

donde ρ_{PF} es la resistividad por unidad de concentración de PFs.

Cuando los defectos están aglomerados, como ocurre en las cascadas, ρ_{PF} se hace dependiente del tamaño y de la configuración del aglomerado. El error en estas mediciones puede llegar al 30 %. La función daño se puede obtener a partir de la medición de la velocidad de producción de defectos para distintos iones:

$$\frac{d\Delta\rho}{d\phi} = \rho_{PF} \, \frac{v^{KP}(E)}{N_a \, t}$$

Ec. I. 12

siendo N_a la densidad del blanco y t su espesor.

La desviación de los resultados experimentales respecto a los valores teóricos *predichos por Kinchin-Pease se cuantifica mediante el llamado Factor de Eficiencia del Daño*.

La cantidad E_D/E ó $v(T)/v^{KP}(T) = \xi$, se denomina la *Eficiencia del Daño*. La Fig. I. 8 (a) muestra las eficiencias de daño en función de la energía del PKA para distintas redes monoatómicas. Según este modelo puede notar que aún para energías tan bajas como 10 eV, un 10 % de la energía del átomo primario se pierde en *excitación electrónica*. La Fig. I. 8 (b) muestra la eficiencia en función de $T_{1/2}/E_d$ para el Cu

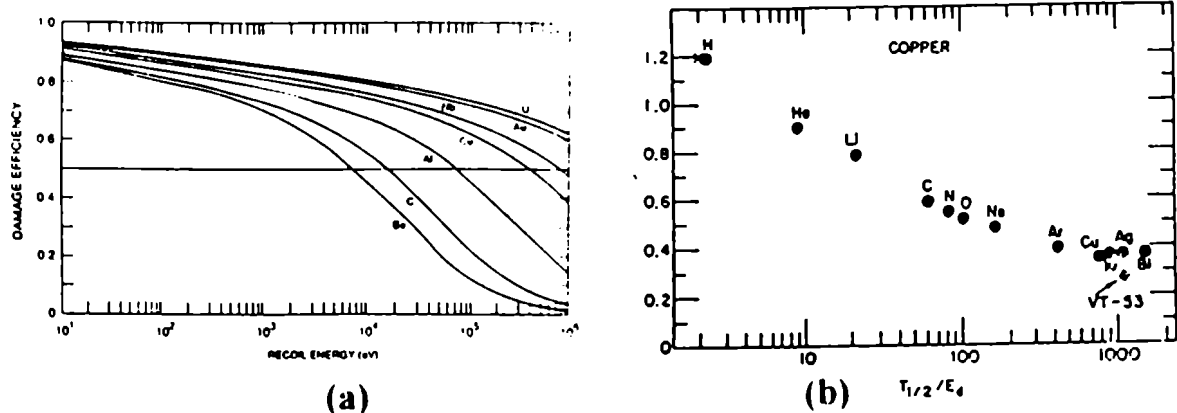


Fig. I. 8 (a) La Eficiencia del Daño E_D/E para distintos blancos monoatómicos, calculada a partir del modelo LSS (M. T. Robinson, "Basic Physics of Radiation Damage Production", J. Nucl. Mat. 216, 1, 1994); Fig. I. 8 (b) La Función Eficiencia de Daño para la producción de defectos en Cu (R. S. Averback, "Atomic Displacement Processes in Irradiated Metals", J. Nucl. Mat. 216, 49, 1994, FIG. 8)

Para energías menores de 5 keV la eficiencia decrece desde 1 a 0.3. Este decrecimiento es difícil de explicar y está siendo intensamente investigado por DM. En el extremo de las altas energías la eficiencia es constante. Este comportamiento es consecuencia de la formación de subcascadas. De todas formas, si bien este modelo representa una mejora respecto al original de Kinchin Pease, el daño sigue estando sobrestimado. Por ejemplo, para irradiaciones en Cu con iones livianos y autoiones de 500 keV y tomando $\rho_F = 2.0 \times 10^{-4} \Omega \text{ cm}^{-1}$, los valores de eficiencia son 0.58 y 0.42 respectivamente y son similares a los valores obtenidos en irradiaciones con neutrones.

A partir de todo lo analizado hasta aquí, se puede evaluar el número de PF producidos por un PKA de Energía de Daño E_D :

$$v^{KP}(E) = \begin{cases} 0 & \text{para } T < T_d \\ 1 & \text{para } T_d < T < 2.5 T_d \\ \left(\frac{0.8 E_D(T)}{2 \langle E_d \rangle} \right) & \text{para } T > 2.5 T_d \end{cases} \quad \text{Ec. I. 13}$$

siendo E_D la Energía de Daño asociada a la energía de desplazamiento T

0.8 el factor correctivo de la aproximación a la dispersión por esferas rígidas

$\langle E_d \rangle$ la energía umbral de desplazamiento promedio ($\sim 24 \text{ eV}$) para neutrones incidiendo en todas direcciones

y T_d es una energía umbral característica.

¹⁴Si se estima el orden de magnitud de la distancia entre las barreras, Λ , producidas por irradiación neutrónica en cobre, para una dosis de $5 \times 10^{17} \text{ n cm}^{-2}$ mediante la expresión:

$$\Lambda = (\rho_b)^{-1/2} = (N_a \sigma \phi t)^{-1/2} \quad \text{Ec. I. 14}$$

siendo:

ρ_b la densidad de barreras creadas por irradiación [número de barreras/ unidad de volumen]

N_a la densidad atómica del cobre ($8.5 \times 10^{22} \text{ át/cm}^3$)

σ la sección eficaz de desplazamiento para neutrones en Cu ($3.2 \text{ barn} = 3.2 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$)

$\phi t = 5 \times 10^{17} \text{ n cm}^{-2}$

la distancia entre barreras resulta igual a 175 Å , o equivalentemente a 75 unidades atómicas ($b = 2.55 \text{ Å}$). Es decir, Λ es del orden de magnitud del alcance de los crowdions dinámicos. Este resultado se puede interpretar como el inicio de la aniquilación de vacancias de una zonas desnudas por el arribo de átomos intersticiales provenientes de otras zonas desnudas

El cálculo realizado corresponde a la aproximación menos favorable. Si la estimación se realiza a partir de la Ec. I. 3-4,

$$l = \frac{1}{(Nd)^2}$$

donde Nd es el número de defectos de tamaño d por unidad de área (ver Fig. I. 3-4), la distancia entre barreras es ahora de 700 Å , es decir, 275 unidades atómicas.

¹⁵La relación analítica entre τ y ϕt , fue objeto de reiterados estudios y mediciones. La razón fue que la misma, en un rango considerable de dosis (5×10^{16} a 1×10^{20} n/cm²), para monocristales irradiados a temperatura de reactor y deformados a 300, 77 y 4.2 K respectivamente, era proporcional a la potencia 1/3 de la dosis (T.H. Blewitt, "Low Temperature Irradiation Studies", Proc. Summer School Enrico Fermi XXVIIIth Course: Radiation Damage in Solids, Academic Press, New York, 630, 1962):

$$(\tau - 0.2) = K (\phi t)^{1/3}$$

$$\text{con } K = \begin{cases} 1.48 \times 10^{-6} & \text{para } 300 \text{ K} \\ 2.80 \times 10^{-6} & \text{para } 78 \text{ K} \\ 3.80 \times 10^{-6} & \text{para } 4.2 \text{ K} \end{cases}$$

Ec. I. 15

Los resultados se muestran en la Fig. I. 9 (a), donde $\log \tau$ está graficado en función de $\log \phi t$:

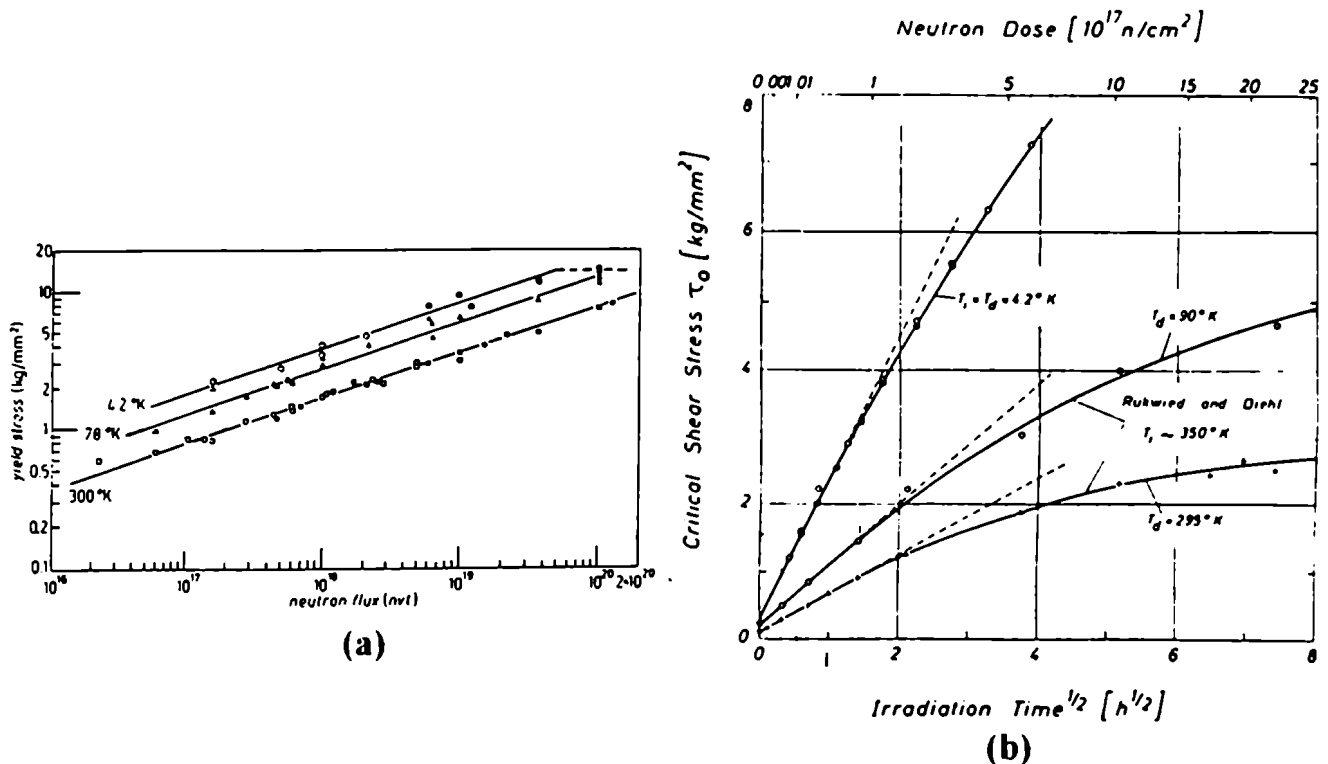


Fig. I. 9 (a) El log de τ a distintas temperaturas de ensayo vs el log de la dosis. La línea de pendiente 1/3 está dibujada a través de cada conjunto de puntos (T.H. Blewitt, R. R. Colman, R. E. Jamison and J.K. Redman, "Radiation Hardening of Copper Single Crystals" J. Nucl. Mat. 2, 277, 1960). (b) Dependencia de τ en monocristales de Cu con el tiempo de irradiación. La escala superior da la dosis correspondiente en ϕt . (ϕ puede diferir en los dos conjuntos de mediciones en un $\sim 20\%$) T_i es la temperatura de irradiación y T_d es la temperatura de deformación (J. Diehl, Ch. Leitz and W. Schilling "Hardening of Copper Single Crystals by Neutron Irradiation at Low Temperatures" Phys. Lett. 4, 236, 1963)

En la misma se puede ver el buen ajuste a la potencia 1/3, salvo para las muestras irradiadas a dosis altas para las que $\tau > 14 \text{ kgf/mm}^2$ y deformadas a 4.2 K donde hay un cambio elocuente

Este resultado es sorprendente ya que se espera que la probabilidad que una dislocación remonte un obstáculo dependa de la potencia 1/2 de la dosis (asumiendo que el número de obstáculos es proporcional a la dosis)

En la Fig. 1. 9 (b) se muestran los resultados experimentales obtenidos por Diehl y col. a dosis más bajas y hasta 10^{19} n/cm², en Cu irradiado y medido a 4.2 K. En la misma se incluyen los resultados de Rukwied y Diehl (*J. Diehl "Radiation Damage in Solids" Vol 1, Intern. Atomic. Energy Agency, Vienna, 129, 1962*) para irradiaciones a temperatura de reactor, 80 °C, y temperaturas de ensayo de 90 K (curva intermedia) y 295 K (curva inferior). En este caso los resultados experimentales fueron ajustados a la dependencia con la raíz cuadrada de la dosis.

Los estudios de Diehl ponen en evidencia que el mecanismo de endurecimiento es el mismo independientemente de la temperatura de irradiación.

En todas las curvas, la desviación a la ley $(\phi t)^{1/2}$ ocurre a la misma dosis, lo que demuestra que el efecto de saturación no es un fenómeno controlado por la difusión térmica (que está prácticamente ausente a 4.2 K).

¹⁶ El valor tomado por el Modelo de Seeger para el radio de las barreras surge de las medidas realizadas por MET en hojuelas de cobre, irradiadas con neutrones. La Fig. 1. 10 (a) muestra un resultado representativo para irradiaciones en Cu, a alta dosis y temperatura de reactor. En la misma se aprecia que el 87 % de los aglomerados observados son de *tipo vacancia*, estando el valor medio de la distribución de tamaños alrededor de los 20 Å (*C.A. English, "Low Dose Neutron Irradiation Damage in FCC and BCC Metals"; J. Nucl. Mat. 108 & 109, 104-123, 1982*). Los restantes aglomerados son de naturaleza intersticial y de mayor tamaño, con una considerable dispersión en sus diámetros.

El irradiar a baja temperatura favorece la formación de aglomerados de menor tamaño como se puede ver a partir de la Fig. 1. 10 (b) (*B.L. Eyré, "Transmission Electron Microscopy Studies of Point Defect Clusters in FCC and BCC Metals"; J. Phys. F: Metal Phys. vol 3, 423, 1973*).

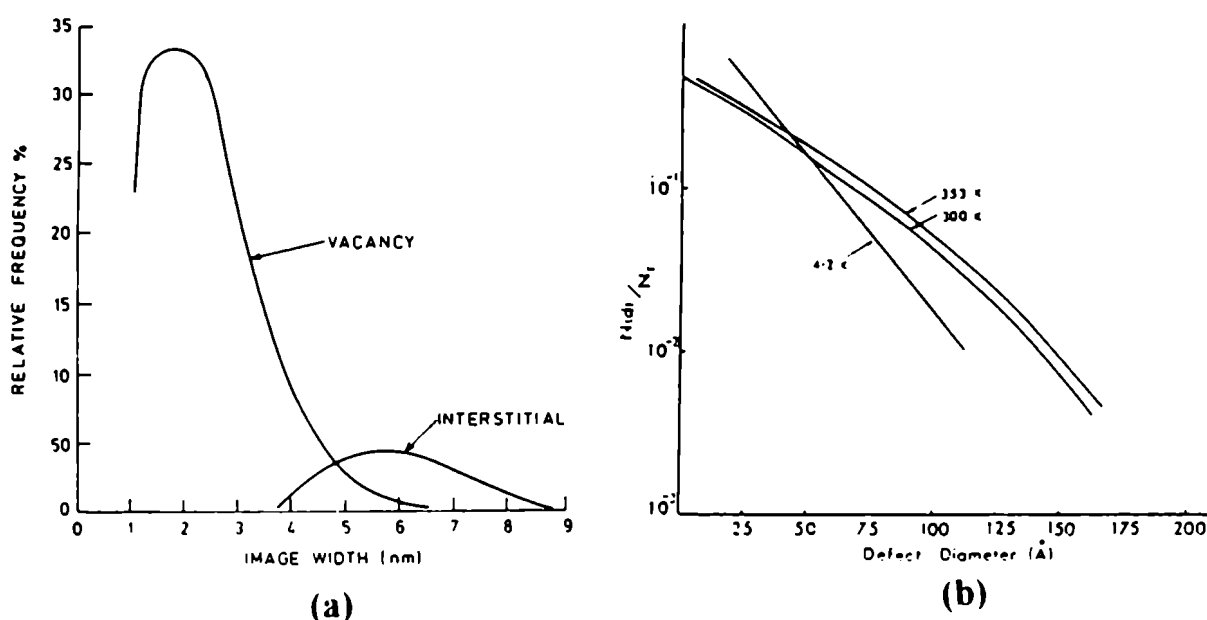


Fig 1. 10 (a) Distribución de tamaños de los aglomerados de tipo de vacancias y de intersticiales en cobre puro irradiado a 80 °C y a dosis de $1.3 \cdot 10^{21}$ n m⁻² ($E > 1$ MeV) (*C.A. English, "Low Dose Neutron Irradiation Damage in FCC and BCC Metals"; J. Nucl. Mat. 108 & 109, 104-123, 1982*); (b) Distribución de tamaños de los aglomerados visibles en Cu irradiado con neutrones a diferentes temperaturas (*B.L. Eyré, "Transmission Electron Microscopy Studies of point Defect Clusters in FCC and BCC Metals"; J. Phys. F: Metal Phys. vol 3, 423, 1973*)

Se encuentra también que a medida que aumenta la dosis hay un progresivo aumento en el número de aglomerados visibles. El número de defectos de diámetro d se estima a partir de la expresión:

$$N(d) = N_0 \exp(-\frac{d}{d_0})$$

Ec. 1. 16

N_0 y d_0 son parámetros que dependen de las condiciones de irradiación (dosis y temperatura) y de la pureza de la muestra. (ver B.L. Eyre).

El valor de estos parámetros para monocristales de Cu (99.998 %at) irradiados a 40 °C con neutrones ($E > 1$ MeV) a dosis similares a las usadas en el presente trabajo (5×10^{16} y 5×10^{17} n cm⁻²) fue $N_0 = 1.5 \times 10^{23}$ y 5×10^{23} aglomerados visibles por cm² respectivamente, siendo $d_0 = 33$ Å para ambas dosis. (M. Jphorski and L.M. Brown, "A Study of Neutron Damage in Be-doped Copper"; *Phyl. Mag.* 22, 931, 1970)

¹⁷El mecanismo de avance de una dislocación moviéndose en un plano de deslizamiento que contiene una distribución uniforme de barreras planares, no es arbitrario (D.R. Olander, "Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements", Technical Information Center Energy Research and Development Administration, California, 431, 1976).

El plano del dibujo de la Fig. 1. 11 representa el plano de deslizamiento de la dislocación, la cual se muestra como una línea sólida presionando contra los obstáculos A, B y C bajo una tensión aplicada.

La tensión neta disponible para mover la dislocación a través de las barreras o arcarla, es la diferencia entre la tensión aplicada, τ , y la tensión necesaria para mover la dislocación contra las fuerzas de largo rango de la red, τ_{LR} . El movimiento de cada línea de dislocación es suave y la línea no avanza completa al mismo tiempo. La Fig. 1. 11 (a) muestra el progreso de una línea de dislocación que avanza de izquierda a derecha. La línea se frena en A, B y C pero, con la ayuda de fluctuaciones térmicas, la dislocación adquiere la energía suficiente para sobrepasar el obstáculo B. Cuando esto ocurre la línea se mueve rápidamente hacia la posición mostrada por la línea punteada y presiona a los obstáculos A, D y C. El área del plano de deslizamiento barrida durante este proceso elemental se muestra en la zona punteada. En general la distancia l_0 entre puntos de anclaje de la dislocación es mayor que l ($l_0 > l$). La distancia que la dislocación avanza cuando se remonta el obstáculo B se expresa con h . En cualquier arreglo de puntos sobre un plano, cuanto mayor sea l_0 , menor será h ya que las distancias están relacionadas por:

$$l^2 = h l_0 \quad \text{Ec. 1. 17}$$

El valor de l_0 se determina mediante el requisito que la curvatura de cada segmento de la línea de dislocación entre puntos de anclaje, dependa del balance entre la tensión de la línea y la tensión aplicada. El radio de curvatura será:

$$\mathcal{R} = \frac{G b}{\tau_{LR}} \quad \text{Ec. 1. 18}$$

A partir de la Fig. 1. 11 (b)

$$\mathcal{R}^2 = l_0^2 - (\mathcal{R} - h)^2 \quad \text{Ec. 1. 19}$$

combinando las tres ecuaciones precedentes y asumiendo $h/2R \ll 1$ se obtiene:

$$l_0 = \left(\frac{2 G b l^2}{\tau_{LR}} \right)^{1/2} \quad \text{Ec. 1. 20}$$

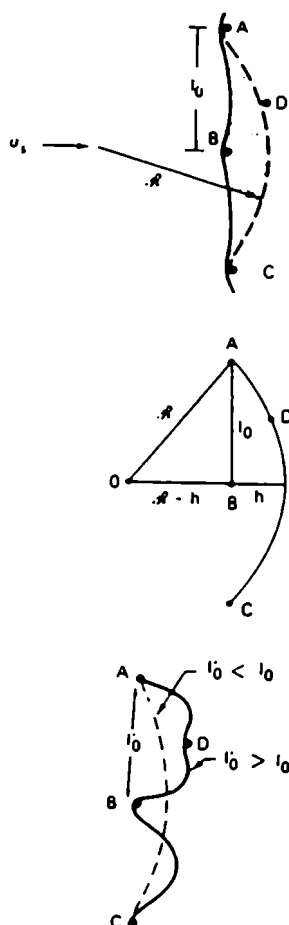


Fig. I. 11 Esquema que muestra a una línea de dislocación presionando contra zonas diluidas en su plano de deslizamiento. A, B, C y D son los puntos de anclaje. (D.R. Olander, "Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements", Technical Information Center Energy Research and Development Administration, California, 431, 1976, Fig. 18-18, p. 432)

La línea de la dislocación ajusta su orientación en el plano de deslizamiento de modo que **avanza seleccionando posiciones entre los obstáculos cuyas separaciones l_0 satisfagan la Ec. I. 20**

La Fig. I. 11 (c) muestra la forma de la línea cuando la separación entre los puntos de anclaje no satisfacen la relación dada en Ec. I. 20

Cuando $l'_0 < l_0$ no se alcanza el obstáculo D. La línea permanece entre los puntos B y D. De este modo se duplica el valor l'_0 , es decir, el cambio va en la dirección adecuada para satisfacer la Ec. I. 20. Si $l'_0 > l_0$, la dislocación rodea al obstáculo y alcanza D antes de cortar a B. Por lo tanto la configuración estable de la línea es ADBC y no ABC. En la línea sólida de la Fig. I. 11 (c) l'_0 es igual a las distancias AD o BD que son más pequeñas que la longitud original. Nuevamente la línea de la dislocación reacomoda su posición de una manera que conduce a la distancia inter-obstáculo dada por la Ec. I. 20.

Hay una tensión para la cual la Ec. I. 20 deja de ser válida: cuando τ_{cr} es lo suficientemente grande para que $l = l_0$. A esta tensión crítica la dislocación solamente se mueve a través de un arreglo de obstáculos rodeando a estos últimos.

¹⁸En primera aproximación U_d , se puede considerar proporcional al área del círculo de intersección de la zona desnuda con el plano de deslizamiento, es decir, $U_d \propto r^2$. Luego las zonas desnudas de tipo A deben crearse más frecuentemente en colisiones de neutrones con el metal que las del tipo B dado que el endurecimiento a 0 K es mayor para las del tipo A que para las del tipo B.

¹⁹El Zn (con 1-10 ppm de impurezas) presenta un daño por irradiación similar al del Cu pero su tensión inicial a 77 K, es 0.2 MPa, o sea es de un orden de magnitud menor que la del Cu (con 10-50 ppm de impurezas).

El Mg tiene una tensión de fluencia intermedia entre la del Zn y la del Cu (con ~ 50 ppm de impurezas) -0.8 MPa- y fue elegido ya que los aglomerados de defectos responsables del endurecimiento por irradiación son de menor tamaño (H.C. González and C.J. Iriart, "The Mechanical Properties of Magnesium Irradiated by Fast Neutrons at 77 K, Phil. Mag. 52, 243, 1985)

²⁰El estudio de la naturaleza de los aglomerados pequeños ha cobrado nueva relevancia en los recientes años en los intentos de hallar evidencia experimental de la existencia de lazos de intersticiales, muy pequeños, formados en las cascadas de desplazamientos atómicos en cobre irradiado con neutrones de 14 MeV (H. Fukushima, M.L. Jenkins and M.A. Kirk, "On The Determination of Nature of Defect Clusters produced by Displacement Cascades Part I y II Phil. Mag. A 75, 1567, 1997). Estas observaciones son confirmadas mediante simulaciones por computadora en las cuales se predice la aglomeración de este tipo de defectos en las cascadas individuales (T. Diaz de la Rubia and M.G. Guinan, "New Mechanism of Defect Production in Metals: A Molecular-Dynamics Study of Interstitial-Dislocation-Loop Formation in High-Energy Displacement Cascades", Phys. Rev. 66, 2766, 1991).

²¹Hay otros métodos para determinar la energía de activación a partir de los recuperados isócronos e isotérmicos.

Si se dispone de una sola muestra se la puede someter a un abrupto cambio en la temperatura. La Fig. I. 12 (a) ilustra el cambio mencionado para las temperaturas T_1 y T_2 . La energía de activación se obtiene a partir de las pendientes S_1 y S_2 trazadas en el punto A de la curva. Este método se llama de "cambio de pendiente" (slope-change method) y asegura que la configuración de defectos presente en la probeta es la misma a las dos temperaturas.

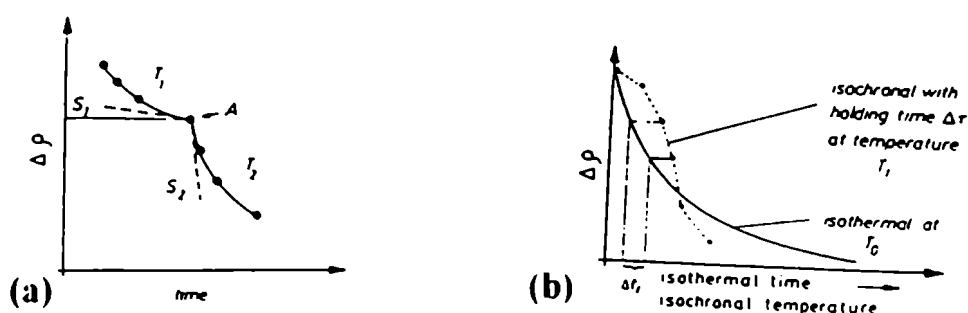


Fig. I. 12. (a) Determinación de la energía de activación por el Método del Cambio de Pendiente. En el punto A la temperatura aumenta rápidamente desde un valor constante T_1 a un nuevo valor constante T_2 . (b) Determinación de la energía de activación por el Método de Meccan-Brinkman, a partir de un recuperado isotérmico a temperatura T_0 , y de un recuperado isócrono con constante de tiempo $\Delta\tau$ [57]

El error introducido en la determinación de las pendientes es difícil de evaluar y se han desarrollado programas de recuperación para mejorar este aspecto del método.

Si se dispone de al menos dos probetas, como en el método de cruce, la energía de activación se puede calcular a partir del recuperado isócrono en una de ellas y del isotérmico en la otra (Método de Meccan-Brinkman). La energía de activación se obtiene a partir de la relación:

$$\ln \Delta t_i - \ln \Delta \tau = (E/k) (1/T_o - 1/T_i) \quad \text{Ec. I. 21}$$

donde $\Delta \tau$ es el intervalo temporal que se mantiene constante en el recuperado isócrono, T_o es la temperatura constante del recocido isotérmico y el Δt_i corresponde a cada intervalo de tiempo necesario a la temperatura del isotérmico T_o , para obtener la misma recuperación durante el recuperado isócrono a temperatura T_i (*W. Schilling, G. Burger, K. Isebek and H. Wenzl, "Annealing Stages in the Electrical Resistivity of Irradiated FCC Metals" in "Vacancies and Interstitials in Metals" 255, North-Holland, Amsterdam, 1969*)

²²La irradiación con partículas cargadas pesadas representan una situación intermedia a la correspondiente con electrones y con neutrones.

La Fig. I. 13 muestra el modulo de la función derivada del recuperado isócrono de la resistividad eléctrica de la Etapa I en Cu irradiado con partículas α de 5 MeV y a temperaturas menores a 10 K.

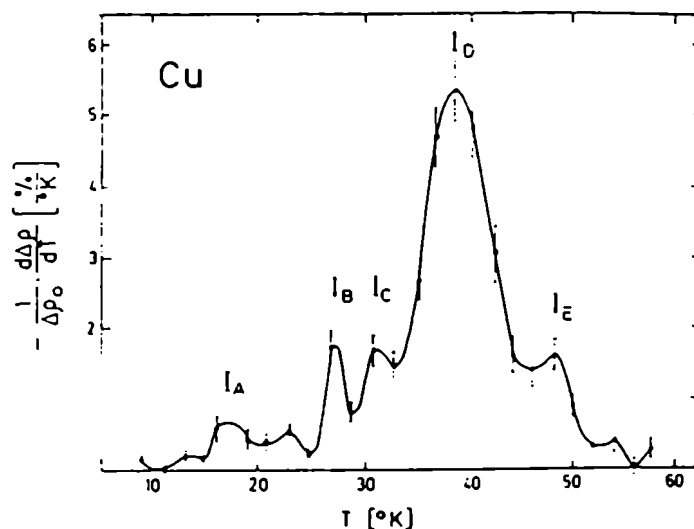


Fig. I. 13 Representación gráfica de la curva correspondiente al modulo de la función derivada del recuperado isócrono de la resistividad eléctrica en Cu irradiado con partículas α por debajo de 10 K. $\Delta \rho_o = 1.8 \text{ n}\Omega\text{cm}$ (*W. Schilling, G. Burger, K. Isebek, and H. Wenzl, "Annealing Stages in the Electrical Resistivity of Irradiated FCC Metals" in "Vacancies and Interstitials in Metals" 255, North-Holland, Amsterdam, 1969 Fig. 22, p. 296*)

Los picos correspondientes al maximo del modulo de la derivada de las Etapas I_A , I_B y I_C son más pronunciados que para las irradiaciones con neutrones termicos. Se observa la presencia de la Etapa I_D

para bajas densidades de defectos. La recuperación ocurrida durante esta etapa es intermedia a la correspondiente a irradiar con electrones y con neutrones.

²³ La Fig. I. 14 muestra las *subetapas intrínsecas* del espectro de recuperación del Ni irradiado con electrones de 3 MeV a 20 K. Aparecen cuatro picos bien diferenciados que también se observan en irradiaciones con neutrones y partículas cargadas (*W. Schilling, G. Burger, K. Isebek and H. Wenzl, "Annealing Stages in the Electrical Resistivity of Irradiated FCC Metals", in "Vacancies and Interstitials in Metals", 255, North-Holland, Amsterdam, 1969, Fig. 38, P. 318).*

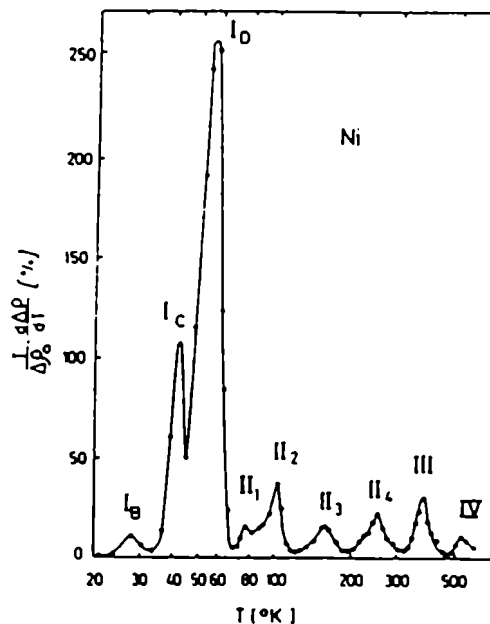


Fig. I. 14. Espectro de Recuperación de Ni irradiado con electrones de 3 MeV a 20 K ($\Delta\rho_0=54$ n Ω cm) Se observan cuatro subetapas intrínsecas dentro de la Etapa II (*W. Schilling, G. Burger, K. Isebek and H. Wenzl, "Annealing Stages in the Electrical Resistivity of Irradiated FCC Metals", in "Vacancies and Interstitials in Metals", 255, North-Holland, Amsterdam, 1969 Fig. 38, P. 318).*

²⁴El Modelo de Un Intersticial considera que el defecto que migra libremente durante la Etapa I es el *intersticial*, mientras que el correspondiente a la Etapa III es de naturaleza *vacancia*.

El análisis de las Etapas I y II presentado en las § I. 4 - 4 corresponde a aceptar este modelo

Cuando se midió la energía de activación de la Etapa III su valor no coincidía con el obtenido a altas temperaturas en las experiencias de templado (*F.W. Young Jr., "Defect Annealing Processes in Metals" in "Radiation Damage in Metals", Am. Soc. Met. Metals Park, Ohio, p. 115, 1976)*

La discrepancia en las energías de activación en Cu, Ni y Ag, junto a la retención del daño por encima de la Etapa III en estos metales, a diferencia del Pt y Al, llevaron a la formulación de un modelo explicativo alternativo conocido como *Modelo de Dos Intersticiales*. Este modelo ha sufrido

modificaciones desde su formulación original (*W. Schöle, "The Modified Two-Interstitial Model. A Review", Z. Metallkd., 85, 78, 1994*) pero las ideas básicas son la aceptación de:

- a) una **configuración metaestable** en la cual los intersticiales pueden migrar libremente en la Etapa I.
- b) un **mecanismo de conversión** que permite a estos intersticiales pasar a formar una configuración más estable a las temperaturas de la Etapa II. Esta última configuración permanece inmóvil hasta el comienzo de la Etapa III donde los intersticiales pueden migrar libremente por activación térmica.

El modelo asocia al defecto migrante durante la Etapa III con el defecto llamado *split-dumbbells* [100]. Esta forma es la más estable desde el punto de vista teórico para los autointersticiales en los metales ccc (*P.H. Dederichs, J. Lehmann and A. Scholz, "Resonance Models of Interstitial Atoms in fcc Metals" Phys. Rev. Lett. vol. 31, 18, p. 1130, 1975*).

Este modelo es motivo actual de controversia.

La contrastación experimental requiere de experimentos basados en aquellos procesos que están presentes en el Modelo de Dos Intersticiales y no en el Modelo de Un Intersticial. Por ejemplo, la ruptura de los di-intersticiales en monointersticiales o la evidencia de la conversión térmica. De este último mecanismo hay una única confirmación, a partir de mediciones de fricción interna, la cual es muy discutida (*D.O. Thompson and O. Buck, "Evidence for a Defect Conversion Mechanism in Copper"; phys. stat. sol. 37, 53, 1970*) pero es a la que se aferran los defensores del Modelo (*A. Seeger, "Diffusion and Thermal Conversion of Crowdions", phys. stat. sol. 38, 235, 1970*).

Los puntos más críticos del Modelo son:

- a) No explica bien la Etapa II en Cu. Las observaciones de rearreglos y crecimiento de aglomerados de intersticiales en la Etapa II hacen imposible aceptar una configuración inmóvil de intersticiales hasta la Etapa III.
- b) Predice la **migración de vacancias** en Cu irradiado con electrones entre 400 y 500 K (Etapa IV) la que daría origen a una subetapa de recuperación que no fue observada.
- c) No explica la retención de defectos observada por encima de la Etapa III.



Fundamentación del Trabajo

§ I. 5 Fundamentación del Presente Trabajo de Tesis

§ I. 5. 1 Importancia del Tema

Las etapas de recuperación de los metales, § I. 4. 4 constituyen un medio muy utilizado, desde el punto de vista *experimental*, para la medición de parámetros cinéticos (energías de activación, órdenes de reacción, factores de frecuencia) asociados a las reacciones entre los defectos producidos por irradiación neutrónica.

Estas medidas son necesarias para comparar los valores predecidos por los distintos modelos teóricos o las simulaciones por computadora.

La comprensión de los procesos de producción de defectos, de la dinámica de interacción entre los mismos y de las cinéticas de disolución de los aglomerados de defectos, es la clave para:

- *predecir la ocurrencia de fenómenos presentes en los materiales irradiados* [86]. Son de particular interés tecnológico aquellos fenómenos asociados a la variación dimensional ocurrida en los metales sometidos a severos entornos de radiación en los reactores nucleares (crecimiento, hinchazón, formación de cavidades, etc) [87,88].
- la producción de *nuevos materiales*.
La estructura de defectos producida por los neutrones de fisión es comparable a la originada por neutrones de fusión (14 MeV) o por neutrones energéticos producidos en reacciones nucleares en elementos livianos (reacciones de *spallation*) [89]. Estos neutrones se producen para estudiar los efectos en materiales expuestos a severas condiciones de irradiación exigidas por las futuras tecnologías de reactores de potencia. Luego, a partir de todos estos nuevos emprendimientos, la irradiación neutrónica y la evolución térmica de los defectos originados en las cascadas de desplazamientos atómicos, desde un punto de vista básico, ha cobrado un creciente impulso en los últimos años. En particular, los resultados surgidos a partir del cambio en las propiedades mecánicas [90,91] son los más utilizados para establecer comparaciones entre los distintos tipos de radiación neutrónica.

§ I. 5. 2 Antecedentes en el Tema del Grupo Daño por Radiación (D×R-CNEA)

El éxito obtenido por el grupo de Daño por Radiación (D×R-CNEA) en el estudio de los metales hexagonales Mg y Zn, en cuanto a la ubicación de las etapas de recuperación III, IV y V, por primera vez y por plasticidad [10,11,27,28] y a la medición de las energías de activación asociadas a las mismas en Zn [92], demostró que, trabajando en las condiciones experimentales adecuadas, el recuperado térmico de metales irradiados a bajas dosis y temperatura, era un campo promisorio de investigación.

El tema del presente Trabajo de Tesis es: *El Recuperado Térmico ($T > 450$ K) de los Aglomerados de Defectos producidos por Irradiación Neutrónica a 77 K y a Bajas Dosis en Cu de Alta Pureza, a través de la Tensión Crítica Resuelta de Corte medida a 77 K, $TCRC_{77K}$.*

La elección del cobre como material de estudio se fundamenta en varios aspectos que, si bien ya han sido discutidos en la parte introductoria, debido a su importancia en el desarrollo de este trabajo se desean destacar:

Las investigaciones de *la dependencia de la TCRC_{TK} con la dosis de Cu irradiado a bajas dosis y temperatura*, realizadas en el grupo mencionado, demostraron en forma concluyente que:

- la dependencia de la tensión de fluencia -o Tensión Crítica Resuelta de Corte en monocristales- *es lineal con la raíz cuadrada de la dosis* ($\tau \sim (\phi t)^{1/2}$) [28]. Estos estudios, que también fueron realizados en Mg y Zn, resolvieron, para las condiciones experimentales citadas, una larga controversia entablada entre el grupo de bajas temperaturas de Argonne [24,25] que sostenía la dependencia $\tau \sim (\phi t)^{1/3}$ en un amplio rango de dosis contradiciendo, de este modo, la teoría clásica de dislocaciones y el grupo Max Plank Institut [29,93] que afirmaba la dependencia $\tau \sim (\phi t)^{1/2}$. El problema para las dosis altas sigue abierto;
- la desviación a la ley anterior (fenómeno de saturación) ocurre en Cu, a la dosis de $\sim 4.5 \times 10^{16}$ n cm⁻² [28], siendo este valor dos órdenes de magnitud menor que los obtenidos en otros estudios realizados en Cu irradiado con neutrones, como se puede ver en los múltiples ejemplos presentados en el capítulo I. 4;
- por encima de la dosis anterior se produce el fenómeno de *canalización de dislocaciones*, es decir, la formación de canales libres de defectos [27]. En estas condiciones, los defectos no son estables a la deformación plástica dando lugar a la aparición de un *upper* y un *lower yield point* [25], que hace discutible el uso de la plasticidad como observable macroscópico para la caracterización de los defectos. En Zn, la desviación ocurre a la misma dosis que para Cu [28], y en Mg el mecanismo es tan marcado que imposibilita el uso de la plasticidad como observable para la medición de cinéticas de defectos [27];
- la componente atérmica de la tensión de fluencia inicial es aditiva a las tensiones de largo alcance. Pero esta aditividad se pierde cuando entran en juego otros mecanismos térmicamente activados (por ej. en probetas predeformadas) [28];
- existen similitudes en el tamaño de los aglomerados defectos producidos por irradiación neutrónica en Zn (deslizamiento basal) y el correspondiente en Cu, lo que permite realizar analogías entre ambas estructuras cristalinas, siempre que se trate de monocristales de Cu orientados de modo tal que se facilite el deslizamiento en un único sistema de los 12 posibles en la estructura ccc [43]

§ I. 5. 3 Aspectos Discutidos de la Etapa V

A partir de I. 4. 4. 9 la Etapa V ($T > 450$ K) es una etapa insuficientemente estudiada

Esta Etapa se asocia generalmente a la disociación de los *aglomerados de vacancias* con la aniquilación sistemática de los *aglomerados de intersticiales* por vacancias térmicas. Pero los detalles de este proceso no están bien establecidos. La resistividad eléctrica y la MIET fueron tradicionalmente las técnicas más usadas para el estudio de la recuperación térmica en metales irradiados. Pero, para el rango de temperatura de la Etapa V hay que considerar que:

- La *resistividad eléctrica* es un medidor eficiente de la concentración *de pares de Frenkel*. Permite individualizar los distintos procesos de recombinación de defectos puntuales dentro de la Etapa I ($T < 65$ K) en la cual se recupera el 80 % del valor postirradiación. Pero, en la Etapa V ($T > 450$ K), los defectos están *aglomerados*. La resistividad eléctrica

es indiferente a su naturaleza y configuración y, en consecuencia, el porcentaje de recuperación durante esta Etapa sólo es del 15 % del valor postirradiación.

- Las numerosas observaciones por MET de los aglomerados presentes en las distintas etapas de recuperación de materiales irradiados realizadas a partir de los años 60', actualmente son discutidas y están siendo revisadas a la luz de los resultados obtenidos en experimentos a muy bajas temperaturas y de las predicciones surgidas en estudios de la fase de enfriamiento de la cascada.
- Existen inferencias de la existencia de un espectro de energías de activación y por lo tanto, de que el *proceso de recuperación es multiactivado* con energías de activación entre 1.8 y 2.5eV [24].

Los únicos antecedentes de bibliográficos que estudian la Etapa V por esta técnica, son los trabajos de Blewitt y col. [24] y de Makin y col. [94] quienes, repitiendo las mediciones de Blewitt obtuvieron que el proceso es uniactivado con una energía de 2.2 eV. Ambos estudios fueron realizados en probetas predeformadas, $\tau_{in} \sim 6$ MPa, a dosis por encima de la de saturación a temperatura de reactor y sumergiendo las probetas en sales.

§ 1. 5. 4 Elección de las Condiciones Experimentales del Presente Trabajo

El objetivo del presente trabajo fue estudiar la Etapa V mediante el recuperado isócrono e isotérmico de la Tensión Crítica Resuelta de Corte medida a 77 K en monocristales de Cu de alta pureza, irradiados con neutrones de fisión en el reactor R.A-1 de la Comisión Nacional de Energía Atómica (CNEA).

A partir de lo analizado a lo largo de toda la Parte I, las condiciones experimentales elegidas fueron:

i) Elección de blanco

Probetas de tracción monocritalinicas de Cu de alta pureza y baja tensión de fluencia inicial, orientadas de modo de deslizar en un único sistema durante la deformación plástica en un ensayo de tracción uniaxial.

ii) Condiciones de irradiación:

• *Irradiación con neutrones*

La irradiación con neutrones de fisión permite la introducción de defectos en las redes metálicas en forma controlada y sin variar los parámetros físicos de referencia. Es decir, los defectos creados por irradiación se adicionan al estado inicial, el cual debe ser recuperado cuando se elimina el daño

Por su parte y debido a que el camino libre medio de un neutrón en cobre es del orden del centímetro, el daño se distribuye en *forma homogénea* a lo largo del *volumen* de la probeta. Esta es la razón más fuerte por la cual se eligen los neutrones de fisión, para la creación de defectos en probetas masivas. La irradiación iónica, dependiendo de la masa, la carga y energía de los proyectiles, es también muy utilizada, pero el daño es *superficial y altamente inhomogéneo*

- ***Dosis $< 4.5 \times 10^{16} \text{ n/cm}^2$ (cerca pero inferior a las dosis de saturación y de transición)***

A esta dosis la TCRC será proporcional a la raíz cuadrada de la densidad planar de obstáculos creados por irradiación. Luego:

1) las cascadas de desplazamiento son independientes entre sí durante la irradiación, y están distribuidas homogéneamente en volumen.

2) los defectos creados por la irradiación son estables a la deformación plástica (ausencia de canalización de dislocaciones).

3) se verifica la aditividad simple de la tensión de fluencia debida a los obstáculos creados por irradiación con la tensión pre-irradiación.

- ***Temperatura de irradiación: 77 K***

Cuanto menor es la temperatura menor es el peso de los procesos térmicos.

La interacción con los neutrones excede en varios órdenes de magnitud a la energía térmica kT . De modo que en primera aproximación la temperatura del blanco no es importante en el tiempo en que se producen las cascadas (picosegundos). Pero la temperatura de irradiación se vuelve decisiva durante la etapa de enfriamiento de la cascada ya que los defectos creados están en equilibrio térmico con el medio y sus cinéticas dependen de la temperatura del mismo ($\sim \exp(-E/kT)$).

A 77 K y según el modelo de un intersticial, durante la irradiación sólo migran intersticiales mientras que las vacancias están inmóviles hasta la Etapa III (250 K).

De allí que, desde el punto de vista de los aglomerados, se puede considerar que la estructura formada por los neutrones ha sido muy poco perturbada por activación térmica. Por su parte los aglomerados que se disocian durante la Etapa V son de menor tamaño que si la irradiación se verifica a temperatura de reactor.

iii) Elección del observable físico:

La Tensión Crítica Resuelta de Corte medida a 77 K (TCRC--K).

La alta sensibilidad de la TCRC a los defectos creados por la irradiación asegura que durante el proceso de recuperación térmica los defectos que se están estudiando son los originados durante la irradiación.

La temperatura elegida para los ensayos de tracción uniaxiales fue de 77 K La sensibilidad de la TCRC a los aglomerados de defectos aumenta cuanto más baja es la temperatura del ensayo. Por debajo de 77 K hay un marcado apartamiento al endurecimiento predicho por la teoría de endurecimiento de Seeger ya que, a diferencia de un obstáculo de tamaño medio, la dislocación ve un espectro creciente de diámetros.

§ 1. 5. 5 Plan de Trabajo

El estudio de la Etapa V se realizó a lo largo de las siguientes Series:

- 1) Realizar del Recuperado Térmico de la TCRC_{77K} en monocristales de Cu en las condiciones de irradiación dadas por los escasos trabajos de la bibliografía. Mostrar así por primera vez, en forma detallada (abundancia de puntos experimentales), el espectro de recuperación de esta Etapa y comparar con los resultados previos de Argonne [24,25]
- 2) Realizar el recuperado térmico de la TCRC_{77K} desde 200 K, luego de irradiar a 77 K, en probetas monocristalinas de Cu que contenían sumideros para los defectos creados por la irradiación. El objetivo es determinar:
 - a) La influencia de la temperatura de irradiación con respecto al caso presentado en 1).
 - b) La sensibilidad de la Etapa V a los defectos introducidos por irradiación.
 - c) La resolución de la técnica respecto a las etapas previas III y IV
- 3) A partir del recuperado isócrono de la TCRC_{77K}, determinar si se encuentra evidencia experimental de la existencia de subetapas en la recuperación que revelen un proceso multiactivado durante la disolución de los aglomerados de defectos.
- 4) Determinar la energía de activación que caracteriza la Etapa en forma fenomenológica, es decir, a partir del recuperado isotérmico de la propiedad a distintas temperaturas representativas de la Etapa V y comparar con los resultados previos.

Para llevar a cabo este plan de trabajo fue necesario:

- 1) Producir los probetas monocristalinas de Cu de alta pureza. Para ello,
 - a) se puso a punto el equipo de crecimiento por la técnica de Bridgman de monocristales existente en el laboratorio. Fue necesario el aprendizaje de técnicas generales de vacío, de detección de pérdidas, de bobinados de hornos, etc.;
 - b) se crecieron probetas con la orientación adecuada para asegurar el deslizamiento en un único sistema. Los estudios se realizaron mediante la indexación de los patrones de retroreflexión de Laue.

Se obtuvieron probetas con una tensión inicial, $\tau^0 < 2$ MPa, que es el mínimo valor que se puede lograr con esta técnica de crecimiento y utilizando Cu de alta pureza.
- 2) Poner a punto el sistema de medición de la TCRC_{77K} en nitrógeno líquido (tracción invertida)

La adaptación, en una primera fase del trabajo, se llevó a cabo en una máquina de ensayos universales electromecánica, y en una segunda fase en el modelo Instron 4465. A esta última máquina se le instaló además la interfase para la adquisición digitalizada de datos.
- 3) Poner a punto un equipo de recocidos de alto vacío que permita llevar a las probetas de Cu a la temperatura cercana al punto de fusión
- 4) Estudiar el funcionamiento del crisotato de irradiación a baja temperatura instalado en el reactor RA-1, para tener una participación activa durante las irradiaciones.

Se realizaron estudios de su funcionamiento y de las normas de radioprotección requeridas para el trabajo con material irradiado

5) Modificar el equipo de recocidos para realizar los recuperados térmicos por irradiación de las probetas de tracción existente en el laboratorio destinado originalmente para realizar estudios a bajas temperaturas, para poder realizar recocidos a altas temperaturas y en vacío o con una sobrepresión de gas inerte.

A partir de los resultados experimentales obtenidos en los estudios isocronos del presente trabajo se diseñó, construyó y puso a punto un equipo de recocidos, basado en el anterior, con el objetivo de minimizar el tiempo que tarda la probeta de tracción en alcanzar la temperatura prevista del pulso, es decir, para lograr pulsos lo más “cuadrados” posibles.

§ 1.5.6 Aporte Original más Relevante del Presente Trabajo de Tesis

En las condiciones experimentales elegidas se determinó que en el intervalo de recuperación conocido como Etapa V ($T > 180\text{ }^{\circ}\text{C}$) se puede distinguir un espectro de recuperación que presenta, al menos, tres subetapas ubicadas entre ~ 220 y $250\text{ }^{\circ}\text{C}$ (Va), ~ 250 y $290\text{ }^{\circ}\text{C}$ (Vb) y ~ 290 y $325\text{ }^{\circ}\text{C}$ (Vc).

Se demostró experimentalmente que el proceso de disolución de aglomerados que tiene lugar durante la Etapa V es multiactivado y que los procesos son distinguibles utilizando la recuperación de la tensión de fluencia.

REFERENCIAS

- [1] G.E. Dieter, "Mechanical Metallurgy", Mc Graw Hill, London, 1976.
- [1a] idem [1], fig. 4-20, p. 128.
- [1b] idem [1], fig. 4-25, p. 135.
- [2] S.A. Delpech, "Estructura y Deformación de los Metales", Ed. Alsina, Buenos Aires, 1952. (Figs. 32 y 34, p.123 y 125 respectivamente).
- [2a] idem [2], fig. 35, p.125.
- [3] W.T. Brydges, *The Dependence of Yield Stress on Forest Dislocation Density in Copper Single Crystals*, Phil. Mag. 15, 1079, 1967.
- [4] F.W. Young, Jr., *Elastic-Plastic Transition in Copper Crystals as Determined by an Etch-Pit Technique*, J. appl. Phys. 32, 1815, 1961.
- [5] F.D. Rosi, *Stress-Strain Characteristics and Slip-Band Formation in Metal Crystals: Effect of Crystal Orientation*, Trans. AIME, 1009, 1954.
- [6] A.R. Rosenfield and B. L. Averbach, *Initial Stages of Plastic Deformation in Copper and Aluminium*, Acta Met. 8, 624, 1960.
- [7] T.H. Blewitt, *Deformation of Copper Single Crystals at 300 K and 78 K*, Phys. Rev. 91, 1115, 1953.
- [8] M.J. Makin, *Unloading Effects in the Plastic Properties of Copper Single Crystals*, Phil. Mag. 3, 287, 1958.
- [9] J. Delaplace, *Radiation Environments*, Sol. State Phenom. vol 30&31, fig. 2, 171, 1993.
- [10] H.C. González and C.J. Iriart, *The Mechanical Properties of Magnesium Irradiated by Fast Neutrons at 77 K*, Phil. Mag. A, 52, 243, 1985.
- [11] H.C. González, *Endurecimiento por Irradiación con Neutrones Rápidos en Monocristales de Mg, Zn y Cu a 77 K*, Tesis de Doctorado en Física, Inst. Balseiro, Univ. Nac. de Cuyo, 1973.
- [12] D.W. Miller, R.K. Adair, C.K. Bockelman and S.E. Darden, *Total Cross Sections of Heavy Nuclei for Fast Neutrons*, Phys. Rev. 88, 83, 1957.
- [13] M.T. Robinson, *Basic Physics of Radiation Damage Production*, J. Nucl. Mat. 216, 1, 1994.

- [14] S.J. Zinkle and B.N. Singh, *Analysis of Displacement Damage and Defect Production under Cascade Damage Conditions*, J. Nucl. Mat. 199, 173, 1993.
- [15] J.A. Brinkman, *On the Nature of the Radiation Damage in Metals*, J. Appl. Phys. 25, 961-970, 1954.
- [16] J.A. Brinkman, *Production of Atomic Displacements by High Energy Particles*, Am. J. Phys. 24, 246-267, 1956.
- [17] A. Seeger, *On the Theory of Radiation Damage and Radiation Hardening*, in Proceedings of the Second United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, 6, 250, United Nations, New York, 1958.
- [18] W. Schilling and H. Ullmaier, *Physics of Radiation Damage in Metals*, Materials Science and Technology, Eds. R.W. Cahn, P. Haasen, E.J. Kramer, 10B, part II, 193, 1994 (fig. 9-38, p. 227).
- [18a] idem [18], fig. 9-8, p. 193
- [18c] idem [18] Tabla 9-1, p. 188.
- [19] P.H. Dederichs, C. Lehmann and A. Scholz, *Resonance Modes of Interstitials in fcc Metals*, Phys. Rev. Lett. vol. 31, 18, 1130, 1973.
- [20] M.T. Robinson, *The Theory of Radiation Induced Defect Production*, "Radiation Damage in Metals", Ed. N. L. Petersen, S. A. Aarkness, Am. Soc. Met., Ohio, 13, 1975.
- [21] H.C. González y A.M. Fortis, "Daño por Radiación", Ed. Inst. de Tecnología J. Sábato, UNSAM-CNEA, 1994, fig. 11-8, p. 11-19
- [22] T.H. Blewitt and R.R. Coltman, AECD 3095, NSAS 3260, 1951
- [23] A. Seeger and U. Essmann, *The Mechanism of Radiation-Hardening of F.C.C. Metals by Fast Neutrons*, Proc. Int. School of Physics "Enrico Fermi" XVIII Course: Radiation Damage in Solids, Academic Press, New York, 717, 1962
- [24] T.H. Blewitt, R.R. Coltman, R.E. Jamison and J.K. Redman, *Radiation Hardening of Copper Single Crystals*, J. Nucl. Mat. 2, 277, 1960
- [25] T.H. Blewitt, *Low Temperature Irradiation Studies*, Proc. Int. Summer School of Physics "Enrico Fermi" XXIIIth Course: Radiation Damage in Solids, Academic Press, New York, 630, 1962 (Fig 67, p. 699)
- [26] A.H. Cottrell, "Vacancies and Other Point Defects in Metals", p. 1, London, 1958

- [27] H.C. González, *Hardening of Single Crystals of Magnesium by Low Neutron Doses at 77 K*, phys. stat. sol. (a) 86, 169, 1984. (Fig.2, p. 171).
- [28] H.C. González and E.A. Bisogni, *Radiation Hardening at 77 K in Zn and Cu Single Crystals at Low Doses*, phys. stat. sol. (a) 62, 351, 1980.
- [29] J. Diehl, Ch. Leitz and W. Schilling, *Hardening of Copper Single Crystals by Neutron Irradiation at Low Temperatures*, Phys. Lett. 4, 236, 1963.
- [30] T.H. Blewitt, T.L. Scott and R.A. Conner Jr., *Radiation Hardness of Copper Crystals*, J. Nucl. Mat. 108 & 109, 442, 1982.
- [31] D.R. Olander, "Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements", Technical Information Center Energy Research and Development Administration, California, 431, 1976.
- [31a] idem [31], Fig. 18-17, p. 431.
- [31b] idem [31], Fig. 18-19, p. 433.
- [32] M.J. Makin and F.J. Minter, *Irradiation Hardening in Copper and Nickel*, Acta Met. 8, 691, 1960.
- [33] M.J. Makin and T.H. Blewitt, *The Hardening of Copper Single Crystals by Electron Irradiation*, Acta Met. 10, 241, 1962.
- [34] G.H. Kinchin and R.S. Pease, *The Displacement of Atoms in Solids by Radiation*, Prog. Phys. 18, 1-51, 1955
- [35] M.J. Makin, F.K. Minter and S.A. Manthorpe, *The Correlation between the Critical Shear Stress of Neutron Irradiated Copper Single Crystals and the Density of Defect Clusters*, Phil. Mag. 13, 729, 1966
- [36] M.W. Thompson, "Defects and Radiation Damage in Metals", Cambridge University Press, p. 339, 1969
- [37] T.J. Koppenaal, *The Strain Rate Dependence of the Flow Stress in Neutron Irradiated Copper Single Crystals*, Phil. Mag. 8, 1313, 1963
- [38] T.J. Koppenaal, *Neutron Irradiation Strengthening in Copper Single Crystals*, Phil. Mag. 11, 1257, 1967
- [39] M.J. Makin and J.V. Sharp, *A Model of "Lattice" Hardening in Irradiated Copper Crystals with the External Characteristics of "Source" Hardening*, phys. stat. sol. 9, 109, 1965.

- [40] R.L. Fleischer, *Solution Hardening by Tetragonal Distortions Application to Irradiation Hardening in F.C.C. Crystals*, Acta Met. 10, 835, 1962.
- [41] W. Frank, *Thermally Activated Dislocation Motion in a Solid Containing a Multiple Spectrum of Dislocation Obstacles*, phys. stat. sol. 26, 197, 1968
- [42] H.C. González, T.H. Blewitt and E. Bisogni, *Micromáquina de Tracción y Criostato que Opera en el Reactor RA-1*, CNEA, NT/29/1976.
- [43] A.H. Cottrell, *Dislocations and Plastic Flow in Crystals*, Oxford University Press, 1953.
- [44] J. Friedel, *Low Temperature Physics*, Summer School of Theoretical Physics, Univ. Grenoble, Ed. C. De Witt, B. Dreyfus and P. G. De Gennes, New York, 624, 1961.
- [45] H. Wiedersich, *Effects of the Primary Recoil Spectrum on Microstructural Evolution*, J. Nucl. Mater. 179-181, 70, 1991.
- [46] B.L. Eyre, *Transmission Electron Microscopy Studies of Point Defect Clusters in FCC and BCC Metals*, J. Phys. F: Metal Phys. vol. 3, 423, 1973.
- [47] H.R. Brager, F.A. Garner and N.F. Panayotou, *Damage Development and Hardening in 14 MeV Neutron Irradiation of Copper Alloys at 25 °C*, J. Nucl. Mat. 103&104, 955-960, 1981.
- [48] D. Hull and D.J. Bacon, "Introduction to Dislocations", 3th Ed., Pergamon Press, New York, p. 91, 1984.
- [49] C.A. English, *Low Dose Neutron Irradiation Damage in FCC and BCC Metals*, J. Nucl. Mater. 108&109, 104-123, 1982.
- [50] M.M. Wilson and P.B. Hirsh, *The form of Defect Clusters produced in Copper by Cu⁺ Ion Irradiation*, Phil. Mag. 25, 983, 1972.
- [51] A.Y. Stathopoulos, *The Study of Heavy-Ion Damage in Pure Copper*, Phil. Mag. A vol. 44, 2, 285-308, 1981
- [52] M. Ruhle and M. Wilkens, *Small Vacancy Dislocation Loops in Neutron Irradiated Copper*, Phil. Mag. 15, 1075, 1967
- [53] K.G. McIntyre, *Interstitial Dislocation Loops in Neutron Irradiated Copper*, Phil. Mag. 15, 205, 1967
- [54] E.J. Savino and R.C. Perrin, *The Morphology of Planar Vacancy Aggregates in Copper*, T. P 562, Theoretical Physics Division UKAE, AERE, Harwell, HL 74/1725, 1974

- [55] F. Pleiter and C. Hohenemser, *Interpretation of Vacancy Migration, Trapping, and Clustering in FCC Metals as Observed through Perturbed Angular Correlations and Distributions of γ Rays*, Phys. Rev. B, 25, 106, 1982.
- [56] F.W. Young Jr., *Defect Annealing Processes in Metals* in "Radiation Damage in Metals" Am. Soc. Met, Metals Park, Ohio, Fig.3, p.98, 1976.
- [57] W. Schilling, G. Burger, K. Isebek and H. Wenzl, *Annealing Stages in the Electrical Resistivity of Irradiated FCC Metals*, in "Vacancies and Interstitials in Metals", North-Holland, Amsterdam, 255, 1969.
- [58] J.T.E. Nihoul, *Radiation Damage and Recovery in Metals*, in "Radiation Damage in Reactor Materials vol. 1, Proc. Symposium Vienna 2-6 June, IAEA, p.3, 1969.
- [59] W. Schilling, *Properties of Frenkel Defects*, J. Nucl. Mat. 216, 45, 1994.
- [60] P. Schiller, *Review of Materials Selection for Fusion Reactors*, J. Nucl. Mat. 206, 113, 1993.
- [61] H.C. González y M.T. Miralles, *Utilización de la Tensión de Fluencia en la Determinación de la Energía de Activación de Defectos Producidos por Irradiación Neutrónica*, Poc. IV Cso Gral. Energ. Nuclear (IV-CGEN), Associação Brasileira de Energia Nuclear, (ABEN) Rio de Janeiro, 1996.
- [62] S.J. Zinkle and B.N. Singh, *Analysis of Displacement Damage and Defect Production under Cascade Damage Conditions*, J. Nucl. Mat 199, 173, 1993.
- [63] J.W. Corbett, R.B. Smith, and R.M. Walker, *Recovery of Electron-Irradiated Copper. I. Close Pair Recovery*, Phys. Rev. 114, 1452, 1959.
- [64] W.E. Parkins, G.J. Dienes and F.W. Brown, *Pulse-Annealing for the Study of Relaxation Processes in Solids*, J. Appl. Phys. 22, 1012, 1951.
- [65] J.W. Corbett, R.B. Smith and R.M. Walker, *Recovery of Electron-Irradiated Copper. II. Interstitial Migration*, Phys. Rev. 114, 1460, 1959.
- [66] R.R. Coltman Jr., C.E. Klabunde, D.L. McDonald and J.K. Redman, *Reactor Damage in Pure Metals*, J. Appl. Phys. 33, 3509, 1962.
- [67] B. von Guerard and J. Peisl, *Annealing Behaviour of Copper after Low Temperature Neutron Irradiation* in "Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals", Proc. Int. Conf., Tennessee, USA, 309, 1975.
- [68] R.R. Coltman, C.E. Klabunde and J.K. Reedman, *Survey of Thermal-Neutron Damage in Pure Metals*, Phys. Rev. 156, 715, 1967.

- [69] D.O. Thompson, D.K. Holmes and T.H. Blewitt, *Neutron Irradiation Effects Upon Young's Modulus and Internal Friction of Copper*, J. Appl. Phys. 26, 1188, 1955.
- [70] D.O. Thompson and D. Holmes, *Effects of Neutron Irradiation upon the Young's Modulus and Internal Friction of Copper Single Crystals*, J. Appl. Phys. 27, 713, 1956.
- [71] D.O. Thompson, T.H. Blewitt and D.K. Holmes, *Low Temperature Measurements of Young's Modulus and Internal Friction of Copper during Irradiation*, J. Appl. Phys. 28, 742, 1957.
- [72] D.O. Thompson and V.K. Paré, *Effect of Fast Neutron Bombardement at Various Temperatures upon the Young's Modulus and Internal Friction of Copper*, J. Appl. Phys. 31, 528, 1960.
- [73] A. Sosin, D.W. Keefer, *The Trapping of Point Defects by Dislocations*, in "Radiation Effects", Metallurgical Soc. Conf., Ed. E. F. Sheely, New York, vol 37, 51, 1965
- [74] Th. Wichert, M. Deicher, O. Echt and E. Recknagel, *Defect Annealing in Copper around Stage III*, Phys. Rev. Lett. 41, 1659, 1978.
- [75] E.E. Gruber, J.A. Tesk, T.H. Blewitt and R.E. Black., *Recovery of Lattice Parameter and Electrical Resistivity in Low-Temperature Neutron-Irradiated Copper*, Pys. Rev. B 2, 2849, 1970.
- [76] C. Minier, M. Minier and R. Andreani, *Nuclear-Magnetic-Resonance Characterization of the Defect Migrating during Stage III in Electron - Irradiated Copper*, Phys. Rev. B 22, 1980.
- [77] S. Mantl and W. Triftshauser, *Defect Annealing Studies on Metals by Positron Annihilation and Electrical Resistivity Measurements*, Phys. Rev. 17, 1645, 1978.
- [78] Landolt-Börnstein, "Zahlenwertw und Funktionen aus Naturwissenschaften und Technik", Band 25: Atomare Fehlstellen in Metallen, H. Ullmaier, Spring Verlag, Berlin, p 233, 1994
- [79] F. Dworschak, K. Hershbach and J.S. Koehler, *Experiments on Stage III Annealing in Noble Metals*, Phys. Rev. 133, A293, 1964
- [80] J.C. Slater, *The Effects of Radiation on Materials*, J. Appl. Phys. 22, 237, 1951.
- [81] A.W. Overhauser, *Isothermal Annealing Effects in Irradiated Copper*, Phys. Rev. 90, 393-400, 1953
- [82] C.J. Meechan, A. Sosin and J.A. Brinkman, *Thermally Activated Point Defect Migration in Copper*, Phys. Rev. 120, 411, 1960

- [83] W. Schilling, P. Ehrhar and K. Sonnenberg, *Interpretation of Defect Reactions in Irradiated Metals by The One Interstitial Model*, en "Fundamental Aspect of Radiation Damage in Metals", Ed. M.T. Robinson and F.W. Young, U.S.A, Conf.-751006, 470, 1996.
- [84] S. Glasstone, K.J. Laidler and H. Eyring, "The Theory of Rate Processes", Mc. Graw-Hill Book Company, New York, 1941.
- [85] S. Glasstone y D. Lewis, *Cinética de las Reacciones Químicas* en "Elementos de Química Física", 2da. De. Médica Química, Buenos Aires, 1962, p. 719.
- [86] V.V. Penkovskii, "Effect of Radiation on Metals", Elsevier Publishing Company, Amsterdam, 1964.
- [87] H.C. González, A.M. Fortis and T.H. Blewitt, *Radiation-Induced Dimensional changes in Zirconium*, J. Nucl. Mater. 108&109, 485, 1982.
- [88] G.D.H. Coccoz, A.M. Fortis and H.C. González, *Irradiation Growth Kinetics in ^{235}U -doped Zirconium*, J. Nucl. Mater. 229, 73, 1996.
- [89] T. Muroga, H.L. Heinisch, W.F. Sommer and P.D. Ferguson, *A Comparison of Microstructures in Copper Irradiated with Fission, Fusion and Spallation Neutrons*, J. Nucl. Mat. 191 &194, 1150, 1992.
- [90] H.L. Heinisch, M.L. Hamilton, W.S. Sommer and P. D. Ferguson, *Tensile Property Changes of Metals Irradiated to Low Doses with Fission, Fusion and Spallation Neutrons*", J. Nucl. Mat. 191&194, 1177, 1992.
- [91] H.L. Heinisch, *Effects of the Neutron Spectrum of Mechanical Property Changes in Low Dose Irradiation*, J. Nucl. Mat. 155&157, 121, 1988.
- [92] H.C. González and C. J. Iriart, *The Recovery of Zinc after Fast-Neutron Irradiation at Low Doses in Liquid Nitrogen*, Phil. Mag. A 54, 441, 1986.
- [93] J. Diehl, *Quench Hardening and Irradiation Hardening of Face Centred Cubic Metals*, en "Vacancies and Interstitials in Metals", North Holland, Amsterdam, 1969.
- [94] M.J. Makin and S.A. Manthorpe, *The Annealing of Neutron Irradiation Hardening in Copper Crystals*, Phil. mag. 10, 580, 1964.

Segunda Parte

Desarrollo Experimental

II. SEGUNDA PARTE: DESARROLLO EXPERIMENTAL

Debido al carácter experimental del presente Trabajo de Tesis esta sección está dividida en tres capítulos íntimamente ligados a la Primera Parte, introductoria del trabajo, que fundamenta lo realizado en el laboratorio y a cuyos temas se hará permanente referencia.

En el *Capítulo II. 1* se desarrolla el proceso de fabricación de las probetas monocristalinas y su caracterización preirradiación. Se presenta, en forma detallada, la medición de $TCRC_{77K}$, es decir, el cómo se midió el único observable físico utilizado en el trabajo. En el *Capítulo II.2* se describe la forma en la que se introducen los defectos, es decir, el daño neutrónico a baja temperatura. Se presentan las características del Reactor RA-1 y del Criostato para realizar las irradiaciones a 77 K. Lo central de este capítulo es la disposición experimental del Criostato dentro del Reactor RA-1 para asegurar que a las probetas le llegue un espectro normal de fisión. La calibración del flujo que llega a las probetas se realiza mediante monocristales de Zn, simultáneamente irradiados con los de Cu. En el *Capítulo II. 3* se trata la forma en la que se realizaron los recuperados isócronos e isotérmicos. Las escasas mediciones análogas encontradas en la bibliografía de la TCRC en cristales irradiados, se realizaban mediante la inmersión de las probetas en sales a temperaturas prefijadas. La necesidad de realizar recuperados con la continuidad de temperaturas requerida para el estudio de las etapas de recuperación por plasticidad, llevó al diseño y desarrollo en el laboratorio, de un Equipo de Recocidos concebido inicialmente para el estudio de las Etapas III, IV y V en metales hexagonales (Etapas de baja temperatura). Este Equipo fue adaptado, durante este trabajo de Tesis, para el estudio de la Etapa V en Cu. Para conseguir los pulsos “más cuadrados”, físicamente posibles, fue diseñado y construido, un horno nuevo, basado en el anterior, pero dimensionado a la geometría de las probetas del presente trabajo. En el Capítulo 3 se describen los Equipos de Recocido utilizados para realizar los recuperados en las distintas probetas y la respuesta en temperatura de los mismos. Se demuestra, en forma concluyente, que las inflexiones en las curvas de recuperación isócrona son físicamente existentes y no introducidas durante el proceso de medición o por la particular forma de cálculo del observable

Al final de esta sección se encuentra una serie de notas, señaladas con supraíndices numéricos en el texto, que son ilustrativas y complementarias, a muchos de los puntos tratados. Se cierra este Capítulo con el listado bibliográfico correspondiente.

CAPITULO II.1: LAS PROBETAS MONOCRISTALINAS DE COBRE

§ II. 1 La Fabricación de las Probetas

§ II. 1. 1 El Material de Base

Las probetas monocristalinas de Cobre utilizadas en este trabajo, se crecieron a partir de barras cilíndricas de Cobre ($\varnothing = 4.5$ mm) provistas por Jhonson Matthey & Co., Limited. El valor especificado de pureza fue 99.999%. El contenido de impurezas presentes en el material, determinado a partir del examen espectrográfico, se resume en la Tabla II.1 [1].

Elemento	Cantidad presente (ppm)
Plata	5
Hierro	1
Magnesio	< 1
Silicio	< 1

Tabla II.1 Exámen espectrográfico del Cu utilizado para este trabajo [1].

En el análisis químico, no se detectó ni selenio ni telurio por encima del límite de detección 0.0002 %. El exámen metalográfico no reveló presencia de oxígeno ni de ningún otro elemento dentro del límite de resolución del análisis [1].

Dada la dependencia de la TCRC con la pureza del material (§I. 1. 4. 2), es necesario utilizar Cu de alta pureza para mimimizar el valor de la TCRC preirradiación. La temperatura de irradiación del presente trabajo (77 K) corresponde a la Etapa II. (§ I. 4. 2. 2). Las impurezas representan posibles centros de nucleación para átomos intersticiales que están migrando libremente y por lo tanto tienen influencia en la formación de aglomerados de intersticiales y en la evolución térmica de los mismos. Luego, cuanto menor sea el contenido de impurezas, más limpio será el daño y por el ello la necesidad adicional de utilizar material de alta pureza.

§ II. 1. 2 Los Crisoles

El crisol utilizado fue de grafito de alta pureza y grano fino, partido en mitades. La Fig. II. 1. 1 muestra un esquema del mismo:

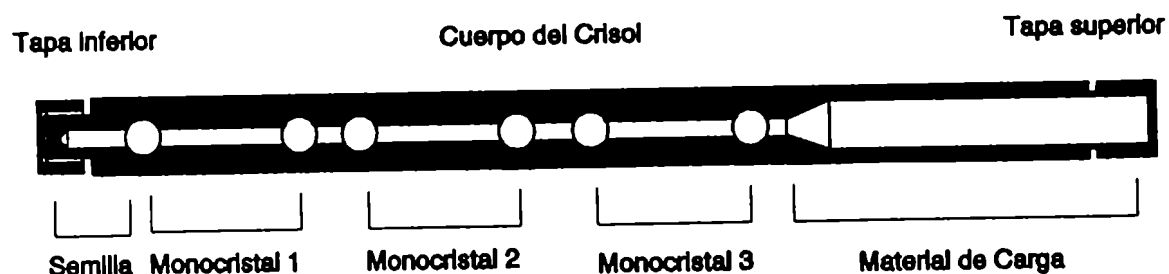


Fig. II. 1. 1 Esquema de una de las mitades del crisol de grafito utilizado para el crecimiento de las probetas

Visto de izquierda a derecha, el crisol dispone de un volumen para la colocación de una semilla, el cuerpo de las tres probetas de tracción, con sus respectivas cabezas, y el volumen donde se introduce el material de carga.

La semilla no sólo garantiza la repetitividad de la orientación en posteriores crecidas, sino que permite mejorar la calidad cristalina¹.

Las semillas utilizadas se cortaron a partir de monocristales previamente crecidos que aseguraban el deslizamiento en un único sistema (§I. 1. 2).

Los monocristales crecidos tienen forma de probetas de tracción de sección cuadrada y dos cabezas esféricas ($\varnothing = 6.35$ mm). La Fig. II. 1. 2 muestra un esquema de las mismas. La sección es de 9 mm^2 y su largo, de cabeza a cabeza, de 30 mm. Estas dimensiones aseguran que, en la longitud de trabajo (I), es decir, la parte de la muestra de sección constante, comprendida entre las cabezas, se establezca durante el ensayo uniaxial, un estado de tensión lineal de tracción, dirigido estrictamente a lo largo de su eje longitudinal.

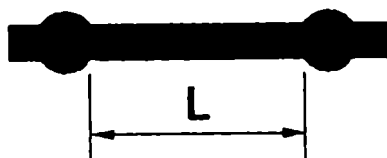


Fig. II. 1. 2 Esquema de un monocristal en forma de probeta de tracción. Esc. 1:1.

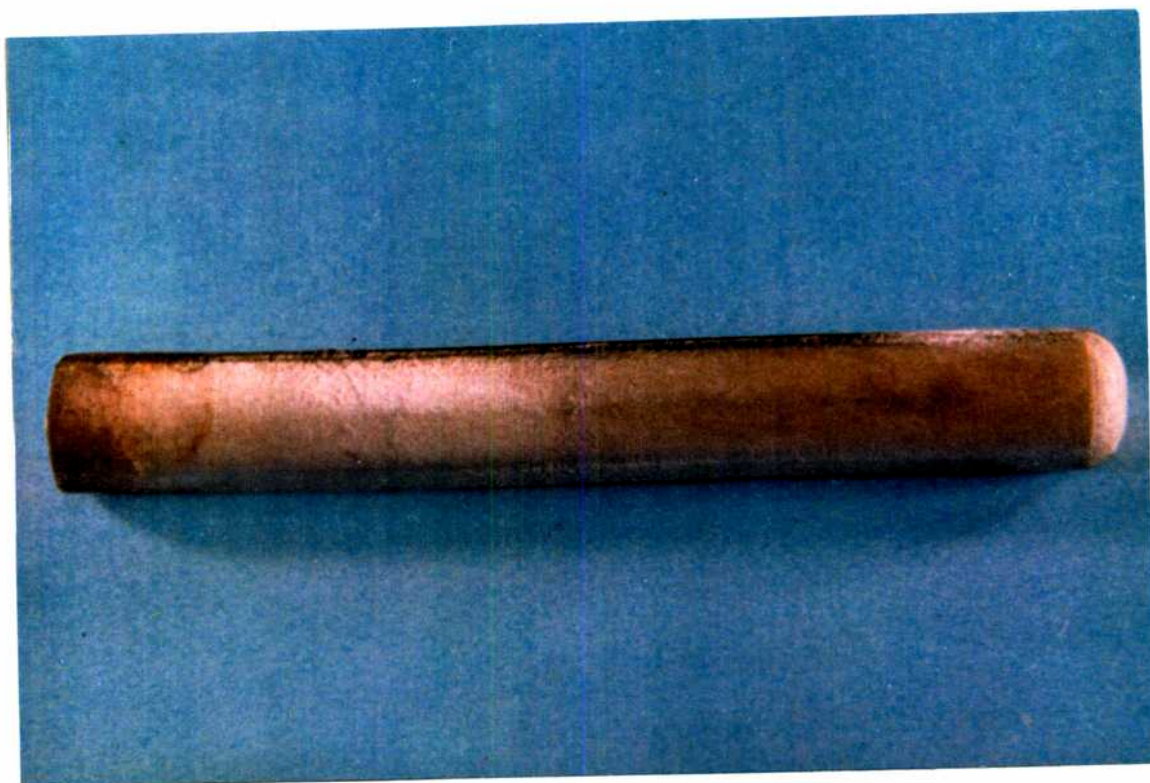
El material de carga consiste de barras de 5 cm de largo y 8 mm de diámetro, que se crecen previamente en un crisol diseñado para tal fin siguiendo el mismo procedimiento que para el crecimiento de las probetas descrito en § II. 1. 3. Las dimensiones de estas barras, se calculan para cubrir el volumen de material necesario para el crecimiento de las probetas, y la presión de carga adicional requerida para lograr un buen llenado. De estas barras se corta, con una sierra ácida, la última porción fundida, para eliminar cualquier impureza. Las barras se limpian con una solución de ácido nítrico y agua destilada al 50 % y a 0 °C. Estas barras son monocristalinas. La Fotog. II. 1 muestra uno de estos monocristales luego de un pulido químico con una solución de ácido nítrico: 30 ml, ácido fosfórico: 15 ml, ácido acético: 55 ml y glacial: 55 mg, a 85 °C.

La obtención de monocristales está sujeta a muchas variables. En particular y aún en condiciones óptimas de trabajo, es frecuente obtener barras policristalinas, con nítidos granos .

El hecho de que el crisol esté formado por dos mitades no solamente permite el fácil vaciado del mismo, sino que tiene la ventaja de que su uso repetido disminuye la probabilidad de introducir impurezas en el material de carga y por lo tanto en las probetas [2].

Antes de la crecida, los crisoles son desgasados, en vacío, a temperaturas superiores a la de trabajo, es decir, $T > 1100\text{ °C}$, para liberar gases absorbidos.

En el crisol desgasado y limpio se introduce la semilla y se lo cierra mediante tapas roscadas en sus extremos. Luego, debido a la expansión térmica del metal líquido se ata el crisol con alambre Kanthal a intervalos regulares para evitar el derramamiento del material durante la crecida. Las barras del material de carga se introducen por la parte superior, gracias a un orificio practicado en la tapa que cierra al crisol en ese extremo y que finalmente se obtura con un tapón de grafito.



Fotog. II. 1. 1 Monocrital de 5 cm de largo y $\varnothing = 8$ mm, utilizado como material de carga para el crecimiento de las probetas de tracción monocristalinas de este trabajo.

§ II. 1. 3 El Equipo de Crecimiento de Monocristales

La línea de "Endurecimiento y Fragilización por Irradiación Neutrónica a Baja Temperatura" del laboratorio D×R-CNEA, en la cual se llevó a cabo el trabajo experimental, dispone de un Equipo de Crecimiento de Monocristales (Técnica de Bridgman) construido en el laboratorio.

El equipo debió ser adaptado para el crecimiento de monocristales de Cu ya que era utilizado para el crecimiento de monocristales de Mg y Zn, de menores punto de fusión respecto al Cu ($1086\text{ }^{\circ}\text{C}$)². Luego de la puesta a punto del sistema de vacío, de los dispositivos de seguridad, de la fabricación del horno con el perfil de temperatura requerido, del reemplazo de termocuplas y de la adaptación de los crisoles a la geometría del equipo, se realizaron las crecidas para obtener, primero el material de carga, y luego los monocristales necesarios para el presente trabajo de Tesis.

La Fig. II. 1. 3 muestra un esquema del Equipo de Crecimiento. El mismo consiste de un tubo de mulite dentro del cual se introduce el crisol de grafito con el material de carga. Este tubo se encuentra alineado y centrado respecto al horno móvil.

El material a fundir se introduce en la parte posterior del crisol. Se funde con el horno colocado inicialmente en la posición superior A y lentamente se va bajando manualmente, fundiendo el material, hasta B. Todo el procedimiento se realiza en vacío dinámico del orden de 10^{-5} mm Hg mediante una bomba difusora *ad hoc*. Desde esta posición se inicia la crecida propiamente dicha, es decir, se conecta el motor del horno para que éste se desplace automáticamente hacia la posición A.

EQUIPO DE CRECIMIENTO DE MONOCRISTALES

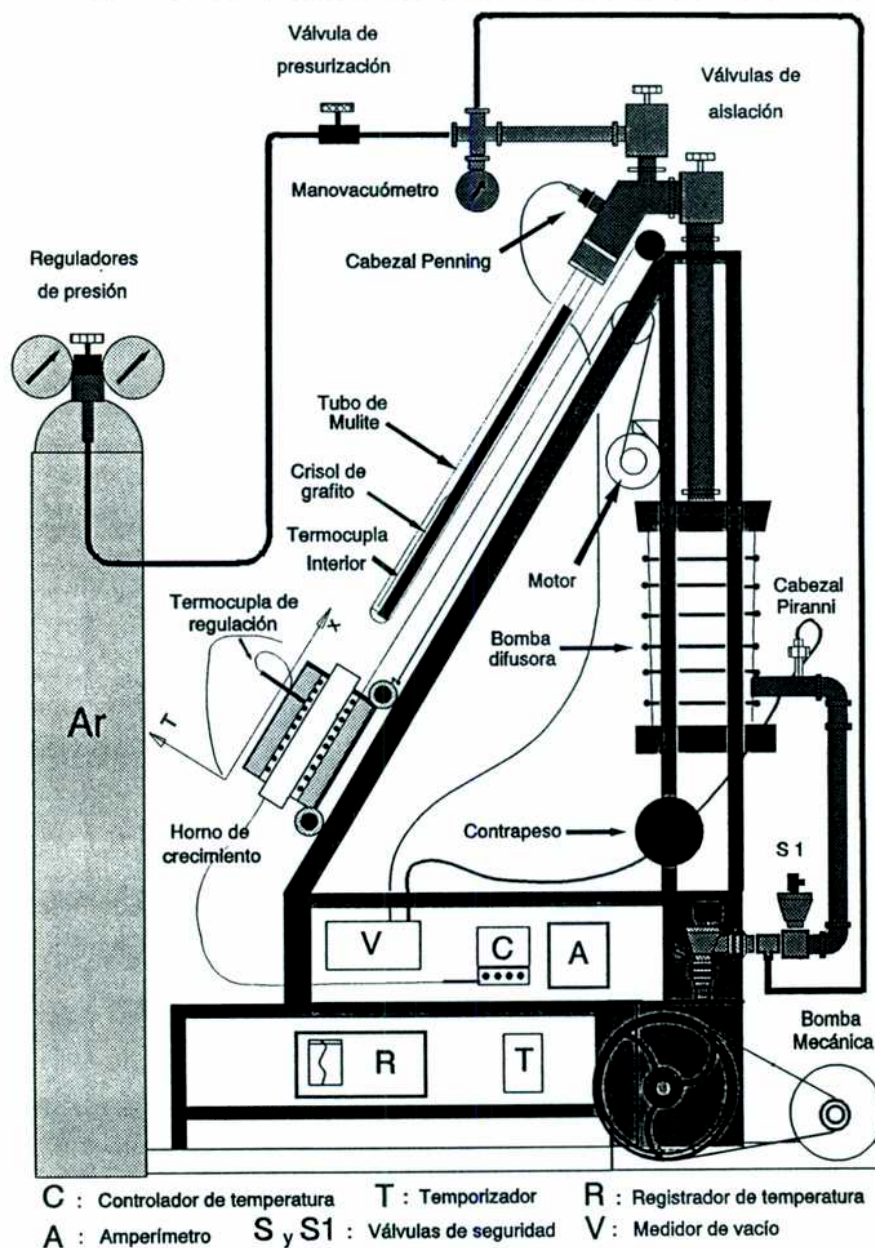


Fig.II. 1. 3 Esquema del Equipo de Crecimiento de Monocristales utilizado para el crecimiento de las probetas del presente trabajo.

El horno avanza a lo largo del tubo de mulite y en una dirección que forma 60° con la horizontal, a 2cm/h, durante el tiempo requerido para recorrer la longitud del crisol. Completado ese tiempo, el cual se fija en el temporizador (T), se cierra automáticamente el circuito de alimentación de corriente del horno y un interruptor detiene simultáneamente el avance del mismo.

El control de temperatura se realiza mediante tres termocuplas:

i) la termocupla del horno o Termocupla de Regulación, TC_H , de Ni-Cr, se encuentra ubicada en la zona de máxima temperatura y se utiliza como señal que el regulador (C) compara permanentemente con el valor de referencia cercano a 1120°C .

ii) La termocupla del crisol o Termocupla Interior, TC_C , se encuentra ubicada en el punto medio de la semilla y la señal ingresa a un registrador (R) que grafica la evolución de temperatura de este punto a lo largo de la crecida. Esta señal además es simultáneamente monitorcada en mV, en un multivoltímetro conectado en paralelo con el registrador.

iii) La termocupla exterior, TC_E , se encuentra ubicada entre el tubo de mulite y la pared interior del horno (no se muestra en el esquema). Permite, mediante su desplazamiento, conocer la temperatura de cualquier otro punto de interés a lo largo del crisol.

Un circuito adicional permite la introducción en el interior del tubo de mulite de una sobrepresión de gas inerte, durante el tiempo de enfriamiento o de almacenamiento del crisol en este recinto.

Una vez crecido el material, el crisol se abre, y es vaciado cuidadosamente en una cama de acrílico de forma idéntica a la mitad separada del crisol, para ser cortado con una sierra de hilo.

Durante este trabajo el molde de grafito no mostró alteración alguna luego de repetidas crecidas. Las superficies del cristal se obtuvieron limpias y brillantes.

Las probetas se marcaron con la sierra en la prolongación de sus cabezas para reconocer la cara en que se toma el diagrama de Laue y para diferenciarlas entre sí.

§ II. 1. 4 Caracterización de las Probetas

La TCRC, según lo expresa la Ec.I. 1. 1 (§ I. 1. 1) depende de la orientación de la probeta y de la sección de la misma. Luego, es necesario medir el valor de ambas magnitudes.

§ II. 1. 4. 1 La Orientación de las Probetas

La orientación de las probetas se determinó a partir de los diagramas de retroreflexión de Laue ($\pm 1^\circ$). El polo correspondiente al eje de tracción quedó en el interior del triángulo estereográfico de modo que, en todos los casos, las probetas deslizaron en un único sistema de deslizamiento (§I. 1. 2).

Para este estudio la probeta es montada en un soporte especialmente diseñado en acrílico, que asegura que una de las caras rectangulares de la probeta quede perfectamente perpendicular a la dirección del haz de rayos-X y quede fija, respecto a cualquier rotación angular en el plano perpendicular al mismo.

El cálculo de la posición del polo del eje de tracción en el triángulo estereográfico, se realizó, inicialmente, a partir del procedimiento descrito en [3]. Luego, se utilizó un programa de cálculo desarrollado por el Dpto de Materiales de la CNEA, que determina los índices de Miller del polo, luego de la coincidencia de más de 16 puntos experimentales [4].

Para cada crecida, el control de la orientación se realizaba tomando un diagrama de Laue a cada probeta y a la semilla, en caras distintas. De este modo se aseguraba la igualdad en la orientación cristalográfica de las probetas entre sí y con la semilla. El valor de orientación asignado a las probetas, era el promedio de las cuatro medidas.

II. 1. 4. 2 Medición de las Secciones

La sección de las probetas se midió con un error de 0.005 mm con un sistema de medición micrométrico. La longitud de cabeza a cabeza de las probetas se midió con un error 0.5 mm.

§ II. 1. 5 El Recocido Preirradiación

Dada la dependencia de la TCRC con la foresta de dislocaciones presentes en el material (§ I. 1. 4. 1), los cristales fueron recocidos a 900 °C durante tres horas en vacío (10^{-5} mm Hg), en un equipo Veeco RG-31X. De esta forma las dislocaciones se arreglan en el material en la llamada red de Frank [5]. La densidad de dislocaciones no fue medida, pero es típicamente de 10^6 a 10^7 mm⁻² y aumenta rápidamente con la deformación plástica. El tratamiento de recocido descrito es el habitualmente utilizado en la bibliografía³.

§ II. 1. 6 La Medición de la Tensión Crítica Resuelta de Corte

Los primeros ensayos de tracción uniaxiales se realizaron en una Máquina de Ensayos Universales electromecánica INSTRON/TTM, con celda de carga de 100 kgf. En una segunda etapa del trabajo se utilizó el nuevo modelo INSTRON 4465 con celda de carga de 500 kgf y con sistema de control y adquisición de datos computarizado.

II. 1. 6. 1 El Ensayo de Tracción a 77 K

La necesidad de llevar a cabo las tracciones uniaxiales a temperatura de nitrógeno líquido (NL) requirió -en ambas Máquinas de Ensayos- el diseño de mordazas. Para la INSTRON 4465 fue necesario, además, la modificación del cabezal de la misma. La celda de carga de 500 kgf fue trasladada del carro móvil al barral superior. Se montó un tubo de acero inoxidable en la parte inferior del carro móvil y concéntrico con éste se montó una varilla. En su extremo superior la varilla se fija al barral superior (celda de carga) y el inferior rosca el sistema de mordazas superiores, en que va colgada la probeta.

Con la probeta en posición vertical, el par de mordazas que se muestra en la Fig. II. 1. 4 (a), sujeta la cabeza esférica. El conjunto queda contenido en una pieza cilíndrica roscada que se fija a la varilla de la INSTRON. Esta pieza se indica con el número 3 en el esquema de conjunto de la Fig. II. 1. 4 (d). Las mordazas inferiores, Fig. II. 1. 4 (b), sujetan la cabeza inferior y quedan posicionadas por encastre. El sistema de mordazas queda centrado mediante la acción de un tubo cilíndrico mostrado en la Fig. II. 1. 4 (c). La base de las mordazas inferiores esta diseñada de modo que la pieza cilíndrica, adosada al cabezal, apoye en dicha superficie. De este modo, moviendo el cabezal hacia abajo, es decir, en el sentido compresivo de un ensayo normal, se realiza la tracción. A esta disposición experimental se la denomina “*tracción invertida*”.

El montaje de la probeta y el ensayo de tracción se realizan con el sistema sumergido en un termo que contiene NL. Este termo se fija a una base móvil que permite el desplazamiento del mismo entre las cotas prefijadas para la experiencia. En todo momento debe evitarse el calentamiento de la probeta.

II. 1. 6. 2 La Velocidad de Deformación

En un ensayo de tracción uniaxial la *velocidad de deformación* de la probeta es constante. En todos los casos el valor elegido fue de $200\mu\text{m}/\text{min}$ ($3.2 \times 10^{-4} \text{ min}^{-1}$). Este valor es característico de ensayos de probetas monocristalinas y es coincidente con el utilizado en la bibliografía.

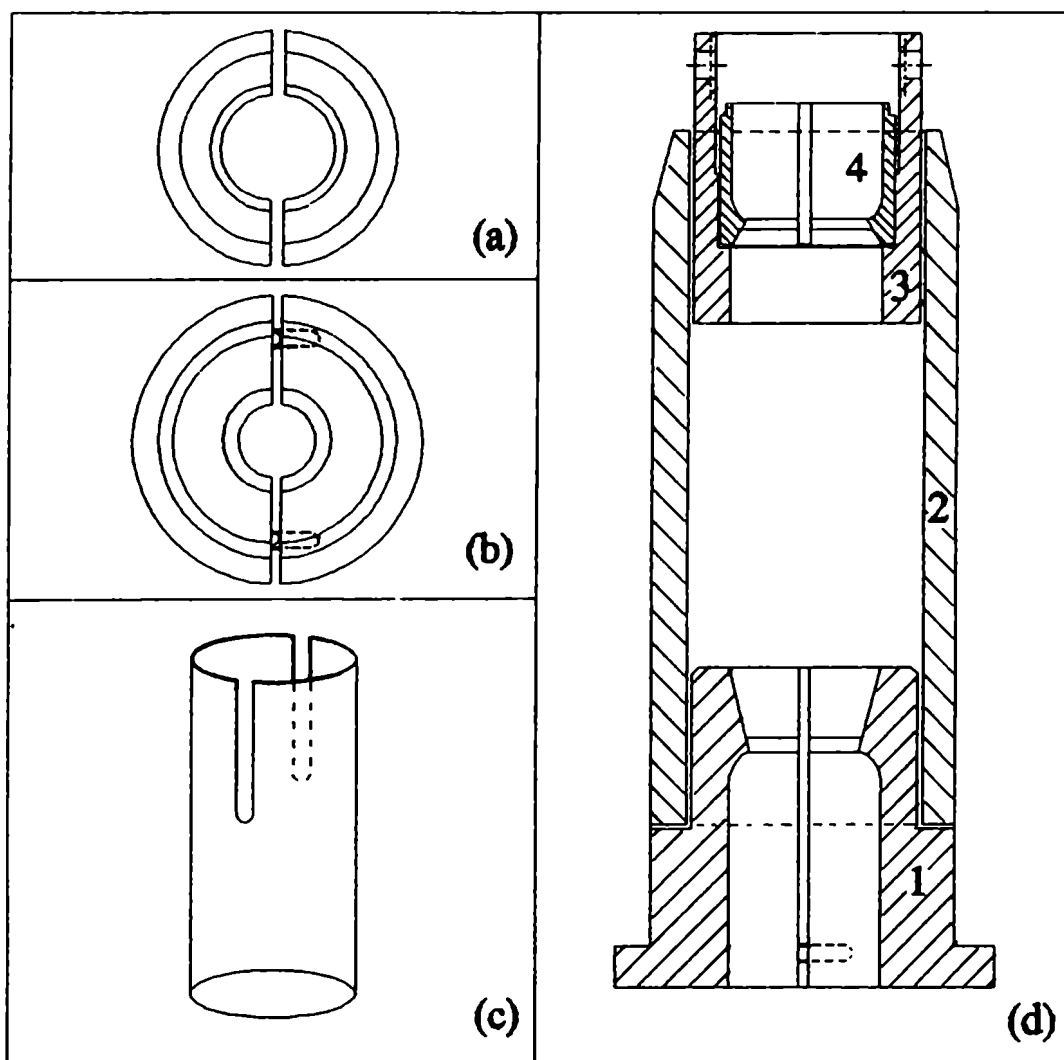


Fig. II. 1. 4 Esquema de las mordazas para realizar la tracción invertida: a) mordaza superior (4) vista de arriba, b) mordaza inferior (1) vista de arriba, c) tubo guía (2) vista isométrica, d) corte del conjunto. El número (3) corresponde a la pieza cilíndrica roscada que se ajusta en la varilla fijada al carro móvil de la INSTRON.

II. 1. 6. 3. La Tensión Crítica Resuelta de Corte Preirradiación

La $TCRC_{77K}$ preirradiación (τ^{∞}) de los cristales crecidos para este trabajo estuvo entre 1.95 y 2.5 MPa, valores que coinciden con los de bibliografía, para cristales de alta pureza crecidos por técnicas similares [2]. Estas diferencias no son sorprendentes, los valores de TCRC obtenidos por plasticidad son sumamente dependientes del estado metalúrgico inicial (§ I.1.4). Se puede afirmar que el valor medio obtenido de τ^{∞} es ~ 2.25 MPa, con un error $< 15\%$ en todos los casos.

II. 1. 6. 3. 1 Análisis de un Ensayo Tipo

A continuación se presenta el ensayo de tracción a 77 K de la probeta Cu 32-1, irradiada a baja dosis y a 77 K (§ II. 2) realizada luego de un pulso a 270 °C (§ II. 3. 2) durante el recuperado isócrono.

El ensayo es simultáneamente registrado en dos periféricos. La gráfica **carga (P) vs elongación (Δx)** se registra a una velocidad de $10\mu\text{m/cm}$ ($1000\times$) en un registrador “Flatbed Recorder”, de alta sensibilidad, calibrado en mV. Este alto factor de amplificación permite un buen control de la elongación de la probeta cuando inicia el comportamiento plástico. Ambos valores, P y Δx , en unidades de kgf y mm respectivamente, son adquiridos a una velocidad de dos datos por segundo, mediante la interfase IEEE-488. Luego los valores son importados a la planilla de un programa de graficación. La reproducción gráfica de la curva de tracción a partir de sus valores inatantáneos permite el mejor análisis de cada uno de los ensayos y la comparación entre los mismos.

La Fig. II. 1. 5 muestra la representación gráfica de los datos adquiridos por PC del ensayo de tracción correspondiente al pulso de 270 °C, durante el recuperado isócrono de la probeta Cu 32-1 (§ III. 3. 2. 2). La región comprendida entre los puntos A y E, se encuentra amplificada, a la derecha.

La región OA no debe ser confundida con la zona elástica de una probeta virgen. La pendiente de la recta no coincide con el módulo de Young. El ensayo se lleva a cabo en una máquina dura y por lo tanto, el valor obtenido es aparente y representa a la resultante elástica de todo el sistema. Para el espécimen Cu 32-1 se obtuvo el valor 348.06 kgf/mm^2 . El intervalo característico dado para el módulo de Young en monocristales de Cu es $6.825 \times 10^3 - 1.96 \times 10^4\text{ kgf/mm}^2$ [6]. La pendiente OA es la resultante del módulo elástico del sistema total (probeta-máquina) y de la deformación microplástica de la probeta.

La región AC corresponde a la llamada **zona de microplasticidad** (§ I. 1. 5.1). Si se descarga por ejemplo en el punto B, perteneciente a esta zona, se obtiene una recta con la misma pendiente que OA, pero en la probeta queda la deformación permanente OB-OA. Si $\Delta l/l_0$ se mide con una sensibilidad de 10^{-6} en esta zona, se observan lazos de histéresis entre la carga y la descarga. Si se carga nuevamente, la zona microplástica es ahora OB. A medida que progresa la deformación, por ej. en el punto C, las dislocaciones comienzan a llegar a la superficie del cristal, y aparecen líneas de deslizamiento. Las ordenadas de los puntos D y D' representan fuerzas de fluencia.

El **punto D**, indica el inicio de la zona de **deformación plástica**. Este es un punto crítico y muy difícil de medir experimentalmente de allí que sea necesario definir criterios para normalizar los ensayos (§I. 1. 5. 2). El punto D' representa un estado intermedio y el E al cristal perturbado en su valor metalúrgico inicial por el efecto de la medición. Se puede decir que representa a la fuerza de fluencia inicial del cristal para el próximo ensayo.

En el presente trabajo, el cálculo del valor de la carga cuando la probeta inicia la fluencia, **D**, se estimó a partir del punto de intersección, **D''**, de las rectas correspondientes a la región de comportamiento microplástico y plástico respectivamente. Dichas rectas se ajustaron a los puntos experimentales usando programas de regresión lineal, basados en el cálculo de cuadrados mínimos.

De este modo, en cada ensayo se cuantificó el valor de la carga y de la extensión en el punto de fluencia **D''** y en el momento de la descarga, **E**, es decir, el valor máximo alcanzado durante el ensayo. Dichos valores también son almacenados en la memoria de la máquina y pueden ser leídos en el tablero de comando al finalizar el ensayo.

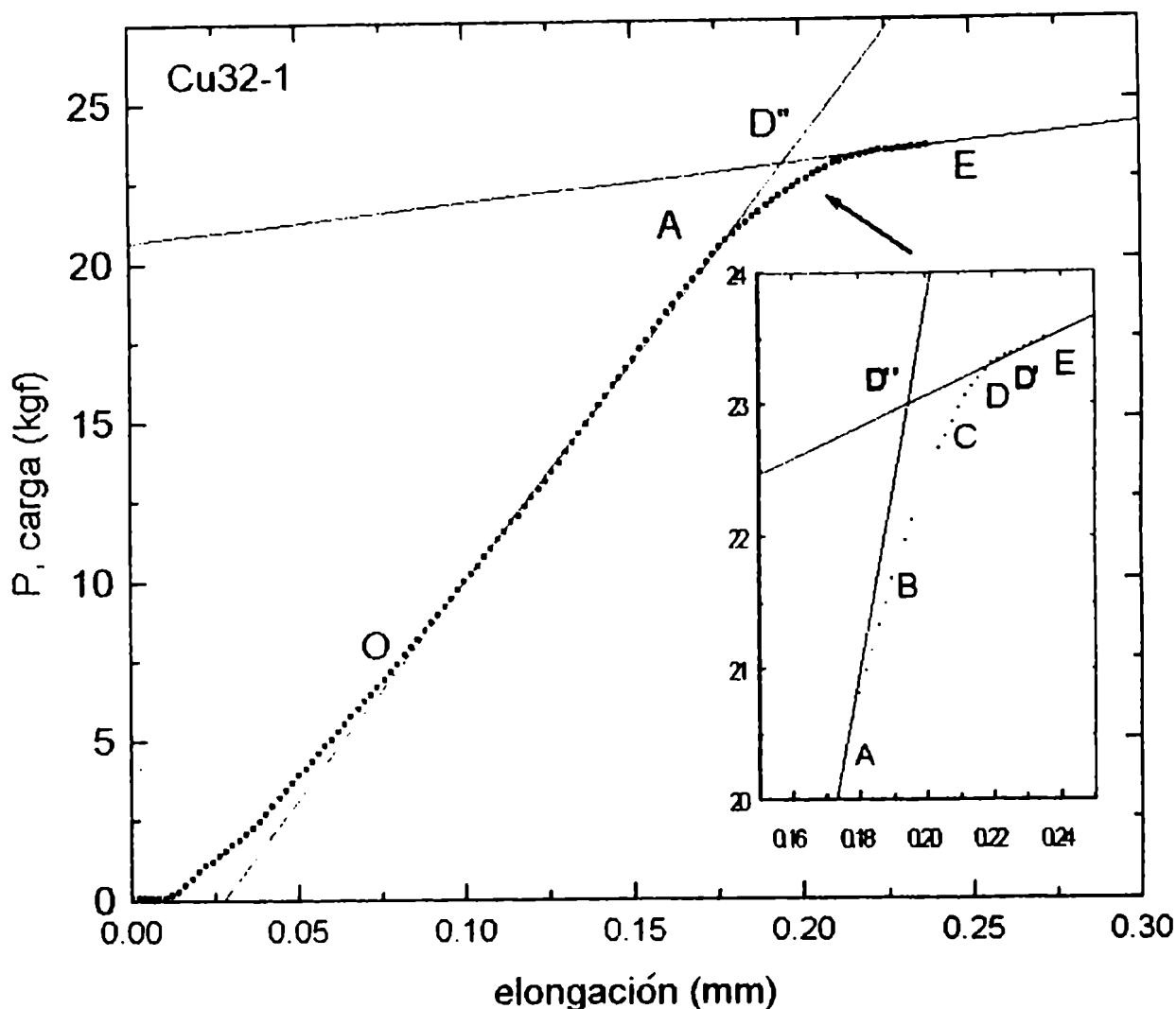


Fig. II. 1. 5 Curva de carga vs elongación del ensayo de tracción uniaxial, a 77 Kde la probeta Cu 32-1. El ensayo es simultáneamente registrado en un graficador convencional y adquirido a 2 datos por segundo, en una PC. Se amplifica el intervalo A-E de la curva (ventana a la derecha) para facilitar su visualización. La explicación de cada punto señalado en el gráfico se encuentra en el texto.

En el caso de probetas irradiadas, con una elección de escalas adecuada, es muy evidente la entrada en fluencia ya que la curva carga-elongación muestra un plateau casi horizontal que no deja lugar a dudas del inicio de la deformación.

A medida que progresa el recuperado térmico, se espera que aumente la pendiente en la zona plástica con respecto al valor casi horizontal postirradiación. Es necesario, por lo tanto, evaluar en cada ensayo la mínima deformación que asegure la efectiva entrada en fluencia por parte de la probeta.

El *criterio* adoptado para asegurar la entrada en fluencia de cada ensayo, es:

$$\Delta l/l_0 \geq 10^{-3}$$

El mismo surge de un estudio realizado por Blewitt et al [7] en monocristales de Cu sin irradiación. A partir de toda una secuencia de ensayos de carga y descarga define la zona de micro y macro deformación para probetas similares a las de este trabajo (§ I. 1. 5. 2).

Para un Δl del orden de los $20\mu m$, y eligiendo una escala de 0 a 50 kgf se obtiene una clara visualización de la entrada de fluencia de la probeta. Este valor es algo menor al del criterio mencionado. La longitud de tracción efectiva de las probetas es de 30 mm, y por lo tanto el valor predicho a partir de este criterio sería de alrededor de $30\mu m$. Si se calcula la Deformación Crítica Resuelta de Corte (γ), mediante la Ec. I. 1. 2 (§ I. 1. 3), se obtiene que el γ promedio es alrededor de 0.116×10^{-4} .

Respecto a la pendiente de la zona plástica no hubo grandes diferencias durante el recuperado térmico en el rango de temperaturas correspondiente a la Etapa V.

A partir de los resultados obtenidos, se concluye que:

- a) todos los puntos experimentales se midieron en igualdad de condiciones,
- b) se midió efectivamente en la zona plástica, es decir, en la zona de macroplasticidad y, por lo tanto, el valor de la TCRC -calculado a partir del punto D''- es una medida indirecta de la densidad planar de los aglomerados producidos por irradiación que actúan como obstáculos al movimiento de las dislocaciones.
- c) la perturbación introducida durante la medida de la TCRC es la mínima posible.

CAPITULO II. 2: LA PRODUCCIÓN DE DEFECTOS

§ II. 2 Facilidades de Irradiación

§ II. 2. 1 El Reactor RA-1

Las irradiaciones se realizaron en el Criostato instalado en el Reactor RA-1 de la CNEA a la temperatura de 77 K.

El RA-1 es un Reactor de Investigación, de tipo tanque abierto, con un *núcleo* de U^{238} (material fértil) enriquecido al 20 % con U^{235} (núcleo fisil). *La Potencia térmica* es 40 kW. El *reflector central* (para reducir la pérdida de neutrones por escape y contradispersar los que han logrado escapar) es de grafito de pureza nuclear. *El moderador* (cuya función es frenar los neutrones de gran energía procedentes de la fisión principalmente por medio de colisiones elásticas) es agua liviana y *el refrigerante* (extracción del calor que se genera en el núcleo debido a las fisiones nucleares) es agua desmineralizada. Otras características de interés se listan a continuación [8]:

El Núcleo está formado por 228 elementos combustibles distribuidos en 5 círculos concéntricos, formando una geometría anular de 153 mm de diámetro interno y 335 mm de diámetro externo.

Los Elementos combustibles son barras cilíndricas de UO_2 y grafito de 549 mm de longitud activa. Un reflector de grafito en cada extremo de las barras las prolonga a una longitud total de 660 mm. El óxido de uranio está encapsulado en vainas de aluminio de 1 mm de espesor y 10 mm de diámetro externo.

El Control se efectúa por medio de 4 barras de Cd encapsuladas en acero inoxidable. Las barras están ubicadas entre el núcleo y el reflector externo, en posiciones ubicadas a 90° entre sí. Están acopladas, con electroimanes, a los mecanismos de accionamiento ubicados en una estructura metálica sobre el tanque. Las barras son accionadas por motores eléctricos paso a paso, comandados desde la sala de control. Una serie de sensores permite monitorear, desde la consola, la posición exacta de cada una de ellas.

La Instrumentación consta de 2 Canales de Arranque; 3 Canales de Marcha de Protección; 2 Canales de Marcha de Regulación y de 1 sistema de detección de Radiación de Area (con detectores colocados en todo el edificio en lugares estratégicos). Se encuentran además medidores de parámetros convencionales (caudal, conductividad, temperatura de agua, etc) cada uno con su respectivo disparo de seguridad.

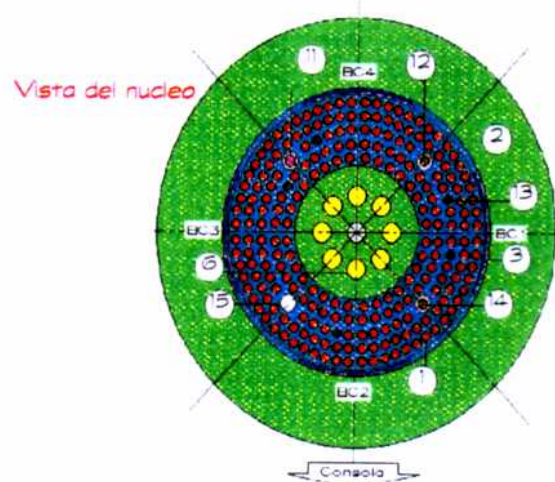
Circuito de Refrigeración Primario: El agua desmineralizada circula en sentido ascendente por acción de bombas centrífugas. Dos torres de desmineralización con resinas aniónicas y catiónicas mantienen el agua en los valores de pureza requeridos.

Circuito de Refrigeración Secundario: Por medio de un intercambiador de calor modular del tipo de placas, se transfiere el calor del circuito primario al secundario.

El flujo de neutrones térmicos en el reflector central es $10^{12} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$

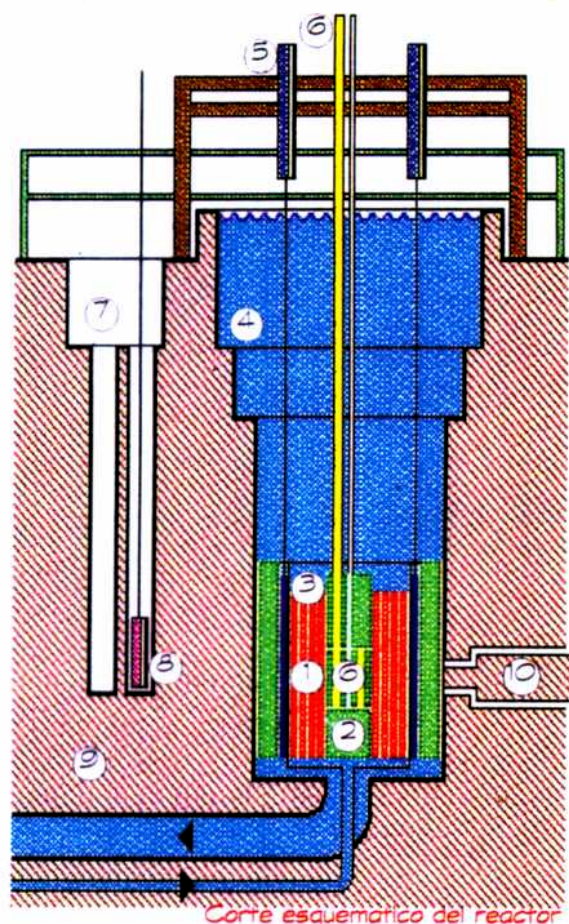
La relación entre los flujo rápido y térmico en la facilidad del criostato es de 1.27 [9].

Las características de bajo ruido térmico y de mínimo nivel de vibraciones mecánicas lo convierten en un **Reactor óptimo** para los estudios básicos en materiales bajo irradiación, ya que se facilita el control de la temperatura de irradiación y la estimación del tiempo de irradiación (dosis). Cabe recordar, además, que la profundidad del tanque es de 2 m, lo que acorta considerablemente la longitud de las facilidades de irradiación y facilita el montaje y manipuleo de las mismas⁴. La Fig. II. 2. 1 (a) muestra un corte esquemático del Reactor RA-1 y la II. 2. 1. (b) presenta una vista del núcleo donde la posición del Criostato se indica con el número (12).



(a)

- 1 Elementos combustibles.
- 2 Reflector de grafito.
- 3 Barras de control de cadmio.
- 4 refrigerante y moderador Agua común.
- 5 Mecanismos de control (accionan las barras).
- 6 Dispositivo de irradiación en el reflector central.
- 7 Paso de detectores.
- 8 Detector de marcha (Cámara de ionización).
- 9 Blindaje de hormigón.
- 10 Canal de irradiación lateral.
- 11 Detector de arranque (tubo de FB_3).
- 12 Criostato de Daños por radiación.
- 13 Lugar vacío para elemento combustible.
- 14 Loop de Daños por radiación.
- 15 Canales de irradiación verticales.



(b)

Fig. II. 2. 1 (a) Vista del núcleo del Reactor Experimental RA-1 CNEA y Fig. II. 2. 1 (b) Corte esquemático del Reactor. El número (12) indica la posición el Criostato en el núcleo del reactor.

La disposición de los elementos combustibles alrededor del criostato es incorrecta ya que la misma fue modificada para asegurar que a las probetas llegue el espectro normal de fisión.

§ II. 2. 2. El Criostato

El Criostato es básicamente un condensador a reflujo [10]. Consiste en un tubo de aluminio donde se ubican las muestras de modo que queden en el punto medio de los elementos combustibles. La ubicación del criostato dentro del núcleo del reactor asegura la repetitividad de la forma del espectro neutrónico presentado en § I. 2. 1 en todas las irradiaciones. Los neutrones rápidos provienen de la corona que forman los elementos combustibles más próximos al criostato con una separación entre sí de 1 mm. El resto del espectro proviene de los elementos combustibles más alejados, es decir, corresponde a los neutrones que sufren mayor moderación.

Una vez colocadas las muestras, se hace vacío en el tubo de irradiación y se inyecta nitrógeno gaseoso de alta pureza. Este último se condensa en un intercambiador de calor con nitrógeno líquido comercial que se encuentra por encima del Reactor.

El flujo de neutrones rápidos en el Criostato se determinó a partir de la comparación de la $TCRC_{77K}$ de monocristales de Zn irradiados simultáneamente con las probetas de cobre⁵ con curvas de $TCRC_{77K}$ vs dosis, previamente publicadas [10a, 11].

La Fig. II. 2. 2 muestra un esquema de la facilidad criogénica descrita:

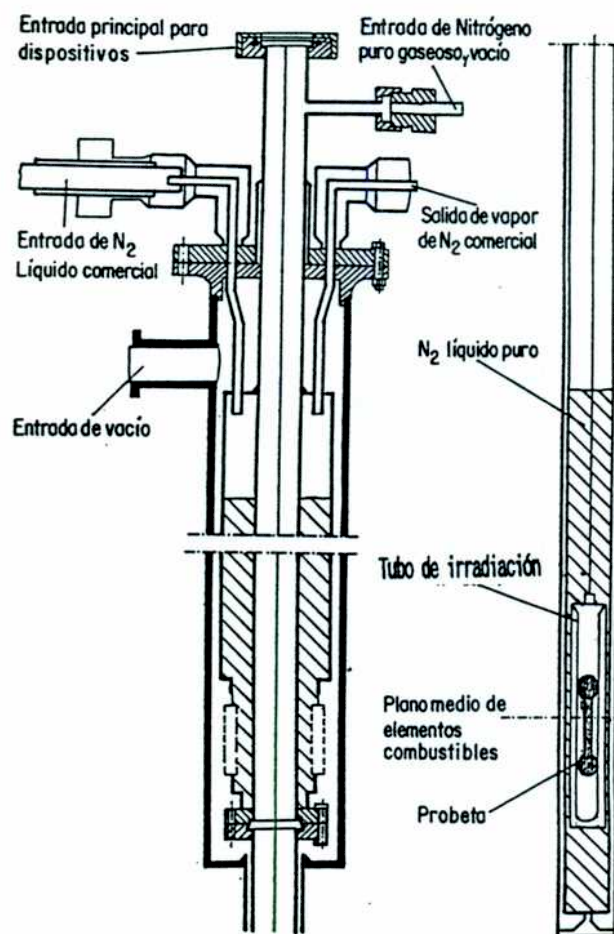


Fig.II.7 Esquema del Criostato para irradiar a 77K [11].

Para evaluar la uniformidad de la dosis que llega a las probetas se colocaron, a lo largo de la cazoleta de irradiación, 5 hojuelas de Mn a 3 cm de distancia entre sí.

La diferencia en la dosis fue menor del 5 % entre las posiciones inferior y superior. De allí que, cualquier diferencia en el endurecimiento sufrido por las probetas, es consecuencia de las diferencias en el estado preirradiación presente en las mismas.

Para las dosis utilizadas en este trabajo $\sim 3 \times 10^{16} \text{ n cm}^{-2}$, las probetas

a) sufrieron un endurecimiento promedio de un orden de magnitud, lo que representa un incremento promedio de $\sim 570 \%$, respecto al valor de $\text{suTCRC}_{77\text{K}}$ inicial, τ^{00} ,

b) presentaron una $\text{TCRC}_{77\text{K}}$ postirradiación de 10.042 MPa en promedio. Las desviaciones a este valor fueron menores al 4 %.

La Fotog. II. 2. 1 muestra la boca del reactor RA-1. El tubo horizontal amarillo a la derecha es la línea de inyección de NL, vacío y sistemas de detección para las irradiaciones a baja temperatura. El Criostato se ubica en una posición equivalente al tubo de inoxidable central que se muestra en primer plano.



Fotog. II. 2. 1 Vista de la boca del Reactor RA-1. El tubo horizontal a la derecha, de color amarillo, es la línea de inyección de NL, de bombeo y de los sistemas de detección del Criostato [12].

§ II. 2. 3 Decaimiento Nuclear del Cu Irradiado con Neutrones

El Cu tiene dos isótopos estables que reaccionan durante la irradiación neutrónica. La Tabla II. 2. 1 resume las características de los mismos:

Isótopo	Abundancia	Sección eficaz	Vida media	emisión
Cu ⁶³	~ 70 %	4.5 barns	12.7 h	β (0.7 MeV)
Cu ⁶⁵	~ 30 %	2.16 barns	5 min	β y γ (1 MeV)

Tabla II.2. 1 Isótopos estables del Cu [13].

La primera evaluación que se realiza, luego de la irradiación, es la determinación de la actividad de la muestra. Para ello se utilizan las siguientes expresiones [14,15,16]:

$$R = R_o (1 - e^{-\lambda t})$$

$$R_o = \frac{\phi \sigma \Lambda m}{M}$$

$$\lambda = \frac{0.693}{T_{1/2}}$$

donde

φ es el flujo neutrónico

σ es la sección eficaz de captura neutrónica

m la masa de la muestra irradiada

M la masa atómica del Cu (en gr.)

A el número de Avogadro

t el tiempo de irradiación

T_{1/2} la vida media del isótopo

A partir de la actividad, se calcula la dosis de exposición D_E [Roetgen g⁻¹ h⁻¹], dada en la ecuación:

$$D_E = \frac{E R}{4\pi d^2} \mu_{arc}$$

siendo,

E la energía del fotón emitido

R la actividad de la muestra

d la distancia a la muestra

μ_{arc} el coeficiente másico de absorción (~0.03 cm² g⁻¹)

De este modo se estima el tiempo necesario de decaimiento de las probetas para su extracción del Criostato. Los valores se comparan con los medidos por los detectores.

Luego las probetas se almacenan en un termo con nitrógeno líquido, hasta su completo decaimiento (~ 5 T_{1/2}).

CAPITULO II. 3: EL RECUPERADO TÉRMICO

§ II. 3 Los Dispositivos de Recuperado Térmico

§ II. 3. 1 Descripción del Equipo de Recocidos Utilizado en esta Tesis

Los recocidos isócronos e isotérmicos (§ I. 5) se realizaron, inicialmente, en un equipo de recocidos existente en el laboratorio, diseñado para estudiar las etapas de recuperación de Mg y Zn, es decir, para realizar pulsos a baja temperatura [11]. Este equipo fue modificado mediante el diseño de una tapa para evitar la oxidación de las probetas de Cu durante el estudio de la Etapa V. Además, se agregó una vía para bombeo y otra para introducción de gases inertes en el recinto que aloja a la probeta [17].

Cualquier recuperado isotérmico presenta inicialmente una disminución rápida del valor de la propiedad en función del tiempo. Las primeras mediciones son de enorme interés físico pero el tiempo de recocido de estos primeros puntos experimentales está ligado a la relación existente entre el tiempo en que la probeta alcanza la temperatura del pulso y la duración del mismo.

Con el objetivo de mejorar el tiempo en el cual la probeta alcanza la temperatura del pulso, se diseñó un horno, basado en la misma idea del anterior, pero adaptado a la geometría de las probetas de Cu y con las modificaciones necesarias para optimizar la transmisión de calor a la probeta.

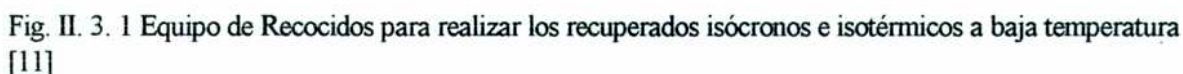
A continuación se detallan las características funcionales de los equipos utilizados para el recuperado térmico de las probetas de este trabajo.

II. 3. 1. 1 El Equipo de Recocidos para Recuperados Isócronos e Isotérmicos a Baja Temperatura

El Equipo de Recocido prototipo para realizar recuperados a baja temperatura se muestra en la Fig. II. 3. 1. Con este dispositivo se midió la Etapa V del Zn (§ IV. 5). El horno está insertado dentro de un cilindro de Cu macizo que permite estabilizar la temperatura de la probeta. El mecanismo de transmisión de calor, a las temperaturas de trabajo, es conductivo. Dada la alta capacidad calórica del cobre, una vez que el horno está en temperatura, debido a la enorme diferencia entre las masas del bloque y del sistema portaprobeta, la inercia térmica hace que el horno no varíe su temperatura. El conjunto se monta dentro de un Dewar al que se hace vacío dinámico, para aislar el sistema.

La *temperatura del bloque* se mide mediante una termocupla de Chromel-Alumel, envainada en acero inoxidable. Esta temperatura es la señal que se compara permanentemente con la temperatura de referencia fijada en el Regulador Eurotherm (con ajuste proporcional-integral y diferencial), que mide a la centésima de miliVolt ($1\text{ }^{\circ}\text{C} = 0.039\text{ mV}$). La *temperatura de la probeta* se mide mediante una termocupla, de las mismas características que la del horno, colocada en el punto medio de una de las mitades del homogeneizador partido. El homogeneizador envuelve al cuerpo de la probeta mejorando la conductividad térmica a lo largo de la misma y minimizando los gradientes longitudinales. Durante el pulso de recocido a baja temperatura, la temperatura se regula, manualmente, mediante la introducción de nitrógeno líquido por un embudo colocado tangencialmente a la pared exterior del bloque y en el punto opuesto a la termocupla de regulación del horno.

La probeta, sumergida en NL, se monta sobre el homogeneizador y el conjunto se introduce en un tubo portaprobeta, rebosante de NL, dentro del horno. De este modo la temperatura de la probeta pasa de 77 K hasta la temperatura de regulación prevista para el pulso.



Debido a que la parte superior del horno está abierta al exterior en el equipo de recocido descrito, la realización de pulsos a alta temperatura ($T > 100\text{ }^{\circ}\text{C}$) ocasiona la oxidación de la probeta durante el pulso. Luego fue necesario modificar el sistema. Para ello se diseñó una tapa de acero inoxidable con tres entradas independientes una para introducir la probeta, otra para el bombeo del recinto y una adicional para la inyección del gas inerte que se muestra en el esquema general del Equipo en la Fig. II. 3. 2.

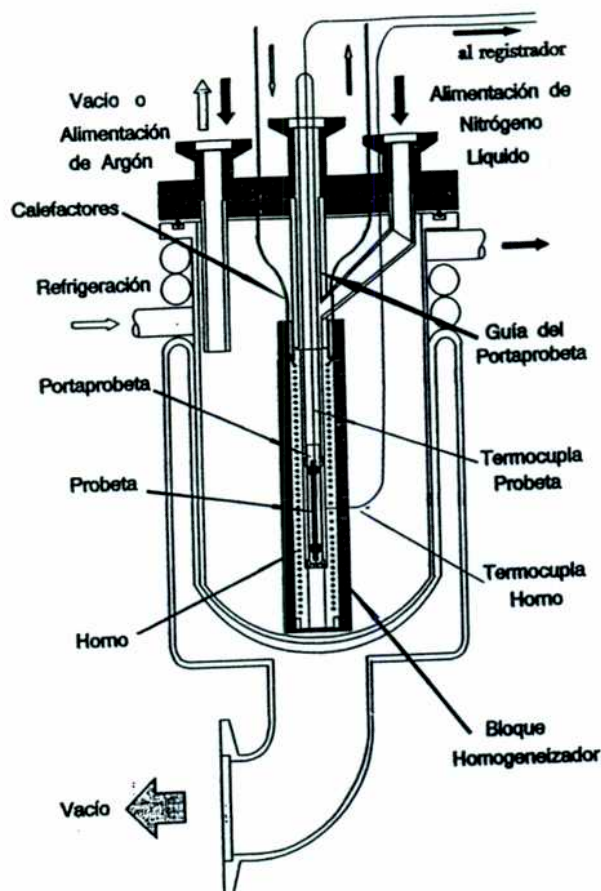


Fig. II. 3. 2 Esquema del horno especialmente diseñado para realizar los recuperados isócronos e isotérmicos de la Etapa V, del Equipo de Recocidos utilizado en esta Tesis.

Introducida la probeta por el tubo central, se hace vacío (10^{-3} torr). Los tratamientos térmicos se llevan a cabo a unos pocos milímetros de mercurio de gas inerte. Con este dispositivo no se observó oxidación en la probeta presentando ésta el mismo aspecto antes y después del recocido.

II. 3. 1. 3 Diseño de un Horno para el Recuperado Térmico de Probetas de Tracción entre 70 y 700 K

Los motivos que condujeron a la realización de un nuevo horno para el estudio de la Etapa V, como ya fue mencionado (§ II. 3. 1), se basan en las limitaciones del Equipo precedente y en la necesidad de optimizar el tiempo de alcance de temperatura de la probeta masiva de Cu. De este modo se puede medir, en recuperados isotérmicos, la rápida recuperación de la $TCRC_{77K}$ durante los primeros instantes del proceso.

El equipo precedente presentaba dos inconvenientes:

- 1) El tiempo que tardaba el horno en llegar a 300 °C ,temperatura media de la Etapa V, era del orden de 7 h, al que había que adicionar el tiempo de estabilización.

2) Con respecto al pulso, el tiempo de alcance de temperatura de la probeta hasta 5 °C por debajo de la temperatura de referencia, era del orden de 6 min.

Luego, a partir de la curva de potencia del horno prototipo, se diseñó un nuevo horno, con el doble de potencia disipada por unidad de superficie y adaptado a las dimensiones de las probetas de Cu del presente trabajo. Las modificaciones esenciales consistieron en:

- a) disminución de la masa del bloque de Cu
- b) disminución del diámetro interno del horno
- c) disminución del gradiente de temperatura en la probeta
- d) disminución al máximo del espacio entre las distintas componentes
- e) duplicación de la potencia por unidad de superficie

Todas las mejoras se realizaron a partir del estudio de la respuesta en temperatura del horno descrito en (§ II. 3. 1. 1). Por ejemplo, la dependencia de la conducción del calor con la masa de la probeta y la influencia de los espaciados entre las paredes homogeneizador-cazoleta se realizó mediante estudios con cilindros macizos de cobre de diferentes diámetros que simulaban probetas.

Algunas de las características a destacar son las siguientes:

a) El horno

El horno fue bobinado sobre un cilindro de cobre de 17.8 cm de longitud, y diámetro interior de 9 mm. Este diámetro se reduce a 7.5 cm en los últimos 7 cm del horno. Este cambio de sección permite apoyar la cazoleta portaprobeta, en forma repetitiva y en la misma posición, dentro del horno. La distancia de la pared interior al centro del alambre calefactor es de 1.5 mm. Sobre el bobinado se realizó una proyección de cobre fundido y luego se maquinó hasta un espesor de 5.5 mm. En estas condiciones se lo introdujo en un homogeneizador de cobre de 5 mm totalizando así un diámetro exterior de 30 mm. El homogeneizador está partido a la mitad del horno y consiste de dos cilindros huecos, el superior abierto por ambos extremos y el inferior cerrado en su base. Cada mitad se fija al horno con tres tornillos a 120°. Entre ambos homogeneizadores se colocó un anillo posicionador para termocupla. Éste consiste en un toroide de sección cuadrada de 5 mm de arista. El horno tiene en su punto medio un agujero pasante para colocar la termocupla. Esta pieza tiene por objeto obturar el orificio diametralmente opuesto de la termocupla y posicionar a la misma. La pieza se fija por medio de un tornillo radial al horno. Un tornillo especialmente diseñado para ser colocado en forma tangencial permite fijar la posición de la termocupla en el lugar deseado. La termocupla se fijó en una posición que permite el contacto con el borde interior del horno.

b) El bobinado

El horno fue bobinado con un alambre calefactor compacto de 14.05 Ω/m y $\varnothing = 1$ mm. Sobre el cuerpo del horno se maquinaron ranuras de 0.5 mm sobre las que luego se bobinaron las espiras. En uno de los extremos del horno se colocó un tornillo, con el alambre de bobinado doblado por la mitad. A partir de allí se bobinaron espiras dobles. Este procedimiento permite sacar por la parte inferior del horno, a los dos cables calefactores. El bobinado se realizó en forma continua sobre una longitud de 87.5 mm. Luego se retiró la herramienta, se avanzó 3 mm y se continuó con el resto del maquinado. Para extraer el conductor por la parte superior del horno, se hizo una pieza auxiliar. Para unir el calefactor con el conductor (junta caliente) se diseñó un procedimiento de soldadura⁶.

c) La cazoleta porta-probeta

La probeta se introduce por medio de una cazoleta de cobre de 7.25 mm de diámetro interior y 8.05 mm de diámetro exterior (espesor 0.4 mm). En la base y a 5mm de la parte superior de la cazoleta se maquinaron cuatro aletas que aseguran el centrado, la disminución del contacto térmico y la convección del calor. El espacio entre el borde exterior de la cazoleta y la pared interna del horno es de 0.45 mm. La cazoleta se introduce y se extrae del horno mediante dos cintas delgadas de cobre soldadas a la misma y que llegan hasta la tapa superior. El espacio entre la cazoleta y la pared interior del homogeneizador de la probeta es de 0.125 mm.

d) El homogeneizador de la probeta

El homogeneizador se encuentra partido en mitades. El largo es de 36.4 mm y $\varnothing = 7$ mm. El mismo rodea el cuerpo de la probeta hasta la mitad de las cabezas.

La termocupla de la probeta es de Chromel-Alumel con conector, de $\varnothing = 1$ mm. La termocupla pasa por un pasante de termocupla que tiene tres O'rings de sellado y un tornillo exterior que permite el ajuste mecánico de la misma, en la posición deseada, evitando desplazamientos involuntarios.

A diferencia del horno prototipo, la termocupla no está fija al homogeneizador. La probeta se introduce dentro de la cazoleta y una pieza de cobre soldada en el extremo de la termocupla a modo de tapa, se introduce en la parte superior de la cazoleta y de este modo se ingresa al horno.

El esquema general del equipo, con estas modificaciones, se muestra en la Fig.II. 3. 3. *El sistema de calentamiento* consiste del horno (H) descrito, ubicado en el interior de un Dewar (D). La tapa de acero inoxidable, ya mencionada, cierra herméticamente al horno. La entrada central para el ingreso de la probeta, es concéntrica al horno. La entrada lateral izquierda está destinada a la evacuación del recinto y a la introducción de gases inertes. La entrada lateral derecha se utiliza en los recocidos a baja temperatura y está destinada a la introducción de NL. El cuello del Dewar, se enfría mediante una serpentina por la que circula agua. *El sistema de control y regulación de la temperatura del horno* consiste del controlador de temperatura (Eurotherm) con el tiristor (T) y el supresor (S) y un amperímetro (A) que mide la corriente que llega al horno. Los periféricos para el registro de la temperatura son el registrador (R) que simultáneamente registra la señal de la termocupla del horno y de la probeta. El mismo está conectado en paralelo al multivoltímetro digital (Md) que permite monitorear la temperatura a la milésima de mV. *El sistema de inyección de gases inertes* consiste del balón de gas (Ar), de las válvulas de regulación (Vr), de seguridad (Vs), de presurización (Vp) y del manómetro (M) que mide la sobrepresión de gas (en mm Hg) en el recinto que aloja a la probeta. Finalmente, *el sistema de evacuación* consiste de una bomba mecánica (Bm) que permite la evacuación dinámica del Dewar, mediante la apertura de la válvula Va o del recinto interior mediante la válvula Ve.

El agregado de cilindros huecos de cobre con espesores de pared previamente calculados, concéntricos al cuerpo del horno, permite la realización de pulsos de temperatura entre 77 y 700 K. De este modo el horno diseñado es versátil para realizar estudios de recuperación térmica en todas las etapas de recuperación, en probetas de tracción, con las dimensiones de las utilizadas en este trabajo.

La duplicación de la potencia por unidad de superficie en el nuevo diseño, permite alcanzar 300 °C en 15 min, con una inyección de corriente de 1.5A.

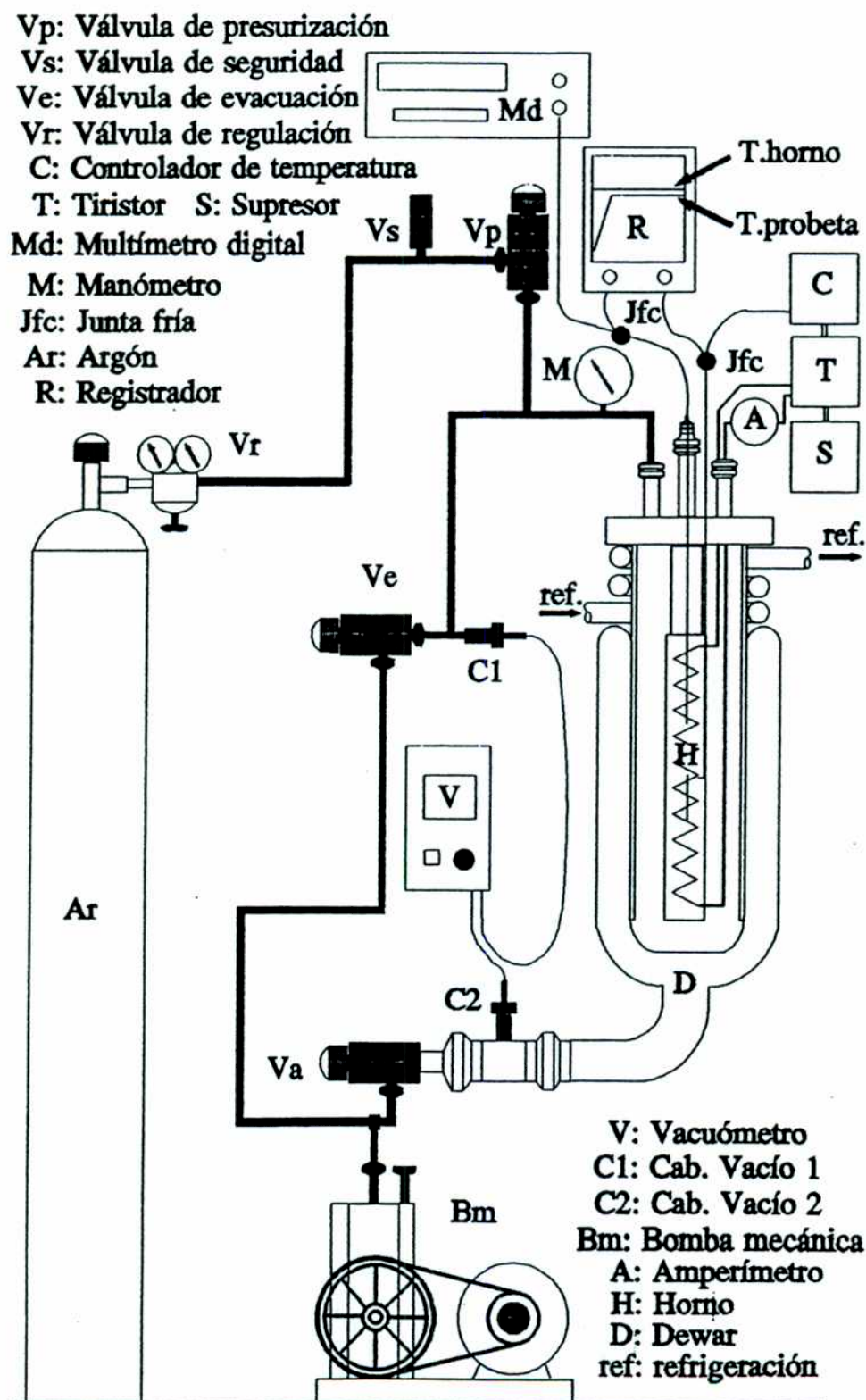


Fig. II. 3. 3 Diagrama Esquemático del Equipo de Recocidos con el que se realizaron las últimas mediciones en este trabajo.

§ II. 3. 2 Estudio de los Pulsos de Temperatura

La respuesta en temperatura del Equipo de Recocidos es de suma importancia en este trabajo ya que, la realización de *pulsos isócronos e isotérmicos*, es el medio por el cual se estudian las etapas y se mide la energía de activación aparente de los procesos de recuperación observados.

Cada pulso de temperatura se registra en un registrador de dos canales, en uno de los cuales se grafica la señal de la termocupla del horno y en el otro la de la probeta. Esta última señal se visualiza permanentemente en un multivoltímetro que permite asegurar la centésima de mV (0.25 °C). En todos los casos la probeta es introducida dentro de su cazoleta con NL. El criterio elegido para determinar el origen del tiempo en el pulso, es decir a partir de qué instante se comienza a medir los 10 min de duración en el recuperado isócrono, se estableció en el instante en el cual la probeta se encuentra a 5 °C por debajo de la temperatura prevista para el pulso (T_{∞}).

En la Fig. II. 3. 4 se puede comparar la respuesta en temperatura del horno prototipo y del horno con el que se realizaron las últimas mediciones. El gráfico con cuadrados oscuros corresponde a un pulso de temperatura de 214 °C realizado con el horno prototipo.

Las curvas con símbolos claros corresponden a la porción inicial de pulsos realizados con el horno adaptado a las probetas y a las siguientes temperaturas: 211 °C (triángulos invertidos), 214 °C (cuadrados) y 217 °C (círculos). Los pulsos se muestran desde 0 mV, 0 °C, hasta la temperatura prevista. El recocido se realizó a una sobrepresión de 40 mmHg de Ar. Durante los primeros 10 segundos se produce la evaporación de NL, luego la probeta comienza su calentamiento en forma lineal (14.28 mV/min ó ~ 350 °C/min) llegando a 0 °C en 27 seg. Luego, la pendiente continúa disminuyendo gradualmente hasta alcanzar en ~ 3,5 min la temperatura del pulso. Estas estimaciones corresponden a los valores promedios de medidas realizadas en las condiciones experimentales descriptas y varían con la sobrepresión y tipo de gas inerte utilizado.

Todas las curvas ajustan analíticamente a la expresión:

$$T(t) = a \left(1 - e^{-bt}\right) + c$$

siendo c el valor de la temperatura a $t = 0$, $a + c = T_{\text{pulso}}$ y $b^{-1} = \Gamma$ un tiempo característico que mide la demora que tarda la probeta en alcanzar la temperatura del pulso (en 5Γ se alcanza el 99 % del valor deseado). El valor promedio de 5Γ para el horno prototipo fue de 6.42 min para las temperaturas de la Etapa V. Con el horno nuevo este valor se ha reducido a 3.5 min representando una mejora del 54 % en el tiempo de alcance de temperatura por parte de la probeta. Se considera que este valor es inmejorable para la concepción del dispositivo adoptada ya que, como se puede ver en § II. 3. 1. 3 se trabaja con espesores y espaciados mínimos en las distintas partes del dispositivo.

En el caso de un *recuperado isócrono* (§ I. 4. 1) la probeta recibe sucesivamente pulsos de temperatura de 10 min de duración, a temperaturas crecientes dentro de la Etapa V. Luego de cada pulso se mide la $TCRC_{TK}$. A partir de las curvas con símbolos claros en la Fig. II. 3. 4 se desprende que *la repetitividad de la forma del pulso a distintas temperaturas* está determinada por la geometría y por el mecanismo predominantemente conductivo de la transmisión del calor.

Durante los *tratamientos isotérmicos*, la probeta es sometida repetidamente a pulsos a la misma temperatura de duración creciente, luego de cada uno de los cuales se mide la propiedad. La representación gráfica de un recocido isotérmico corresponde a una función que se caracteriza por una rápida variación inicial y luego un comportamiento asintótico para tiempos largos (§ III. 4. 2). La determinación de los primeros puntos experimentales es crítica ya que limita el valor al cual

pueden realizarse los cortes para calcular la energía de activación por el método de cruce. Lo mismo ocurre a tiempos largos. Con el nuevo horno se ha mejorado notablemente la relación entre el tiempo demorado por la probeta en alcanzar 5 °C por debajo de la temperatura prefijada para el pulso (tiempo de subida) y la duración del este último.

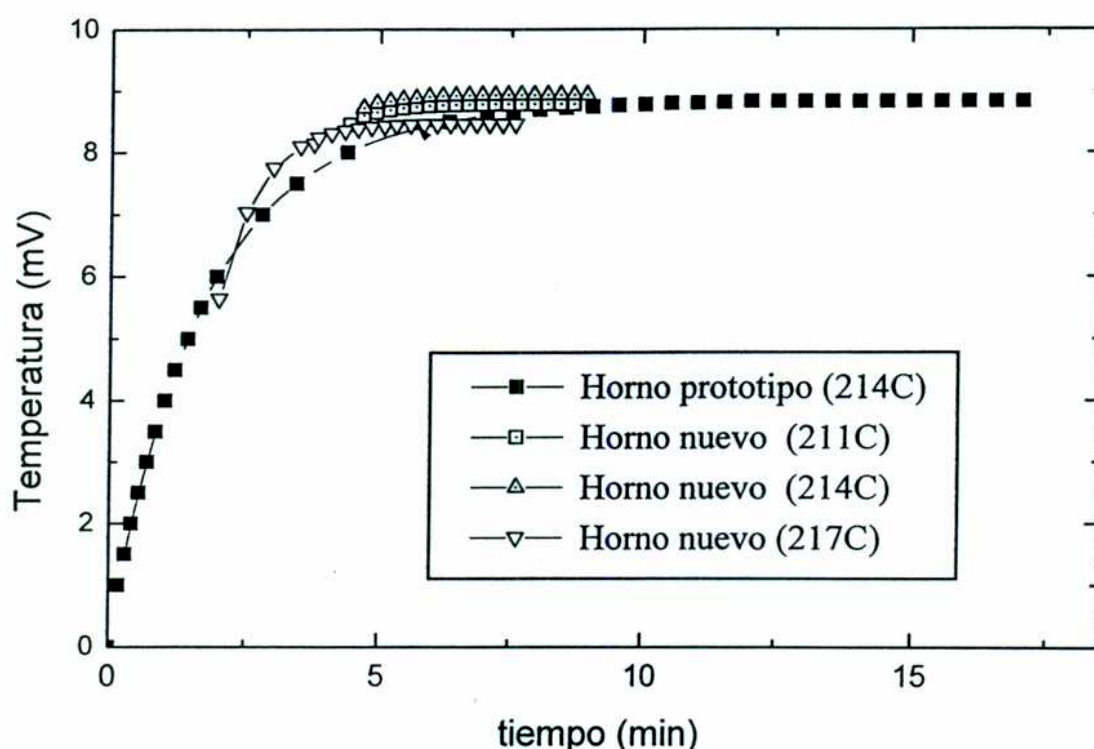


Fig. II. 3. 4 Comparación de la respuesta en temperatura del horno “prototipo” y del horno con el cual se realizaron las últimas medidas. El pulso con símbolos cuadrados oscuros corresponde al primero de los hornos (214 °C), y los pulsos con símbolos claros al segundo. Los pulsos graficados corresponden a las siguientes temperaturas 211 °C (triángulos), 214 °C (cuadrados) y 217 °C (círculos) respectivamente.

Debido a que el objetivo del presente trabajo de Tesis es demostrar la existencia de una subestructura de recuperación dentro de la Etapa V, en Cu irradiado con neutrones, la mayor parte de los tratamientos térmicos realizados fueron isócronos (10 min), a las temperaturas de interés. Solamente se realizaron recuperados isotérmicos, con el horno prototipo, para medir la energía de activación media de la Etapa V (§ III. 4. 2. 1).

Sin embargo, el recuperado térmico permite determinar parámetros termodinámicos que posibilitan la identificación de los defectos o al menos de su naturaleza, comparando los resultados con datos de la bibliografía. Los parámetros más frecuentes son, la ya mencionada energía de activación y el orden de la reacción. El formalismo para el cálculo de estas magnitudes es completamente análogo al utilizado en la teoría cinética química [18].

Cualquier estimación de parámetros asociados a defectos, realizada a partir de los datos experimentales, requiere la evaluación del tiempo asignado a cada pulso, debido a que los mismos no son perfectamente cuadrados, y a que durante el tiempo de subida, los defectos han empezado a reaccionar. Esto significa elaborar un *criterio de corrección del tiempo asignado a cada pulso*, especialmente para los primeros recuperados isotérmicos, de corta duración, donde el “peso” del tiempo de subida no es despreciable frente al tiempo total del recocido.

II. 3. 2. 1 Criterio de Corrección para los Pulsos de Temperatura

La elaboración de un criterio de corrección está ligada a la adopción de un conjunto de hipótesis acerca de la disolución de los aglomerados de vacancias ocurrida durante la Etapa V. El modelo más sencillo, aunque poco realista, es suponer que el proceso de disolución es uniactivado, es decir asumir la presencia de un único proceso, cuando en realidad son muchos, simultáneos, con diferentes velocidades de reacción.

Si se supone que un tipo de defecto, distribuido homogéneamente y no interactivo con los otros defectos presentes, requiere una cierta energía de activación E para sufrir alguna reacción la cual se cuantifica en el cambio de la propiedad medida, y que la fracción de defectos que posee esa energía está dada por el factor de Boltzmann, $e^{-E/kT}$, la velocidad de recuperación de la propiedad P (en nuestro caso la TCRC $_{TK}$) se puede describir mediante la Ec. II. 1:

$$\frac{dP(t)}{dt} = -A P(t)^n \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] \quad \text{Ec. II. 1}$$

donde $P(t)$ es el cambio en la propiedad remanente luego de un tiempo t a T [K], k es la constante de Boltzman, A es una constante, la cual para $n = 1$ es un factor de frecuencia. y “ n ” es el llamado “orden de la reacción”.

Si se asume que E es del orden de la energía de activación, ~ 2 eV, (§ III. 4. 2. 1) y que $n = 1$ [18], la Ec. II. 1 se puede integrar y se obtiene la Ec. II. 2:

$$P(t) = P_0 \exp\left[-At \exp\left(\frac{-E}{kT}\right)\right] \quad \text{Ec. II. 2}$$

Pero, si la probeta es sometida a un pulso de temperatura no cuadrado, es decir, la temperatura T de la Ec II. 2, no es constante, es necesario repetir la integración anterior teniendo en cuenta esta dependencia funcional. Luego, para calcular el tiempo equivalente se iguala la Ec II. 2 a la obtenida integrando el pulso real, para un dado valor de recuperación. El resultado está dado en la Ec. II. 3:

$$t_{eq} (t_{exp}) T_{\infty} = \frac{\int_0^{t_{exp}} \exp\left(\frac{-E}{kT(t)}\right) dt}{\frac{-E}{kT_{\infty}}} \quad \text{Ec. II. 3}$$

En la misma t_{eq} es el tiempo proveniente del formalismo correspondiente al caso “ideal”, y t_{exp} es el correspondiente a la evaluación del pulso “real”. La temperatura de regulación del horno, T_{∞} , es un parámetro fijo en la Ec. II. 3 y representa un valor asintótico al cual tiende lentamente la temperatura de la probeta.

La Fig. II. 3.5 (a) muestra los primeros 5 min de un pulso de recocido realizado en el horno nuevo a la temperatura de regulación, $T_{\infty} = 573$ K. El origen de tiempo corresponde a la temperatura inicial de -5.83 mV (nitrógeno líquido). La Fig. II 3. 5 (b) representa al integrando de la Ec. II. 3 para el pulso de la Fig.II. 3. 5 (a). Entre 2 - 4 min se puede ver la desviación del factor de Boltzman respecto al caso ideal de una función escalón.

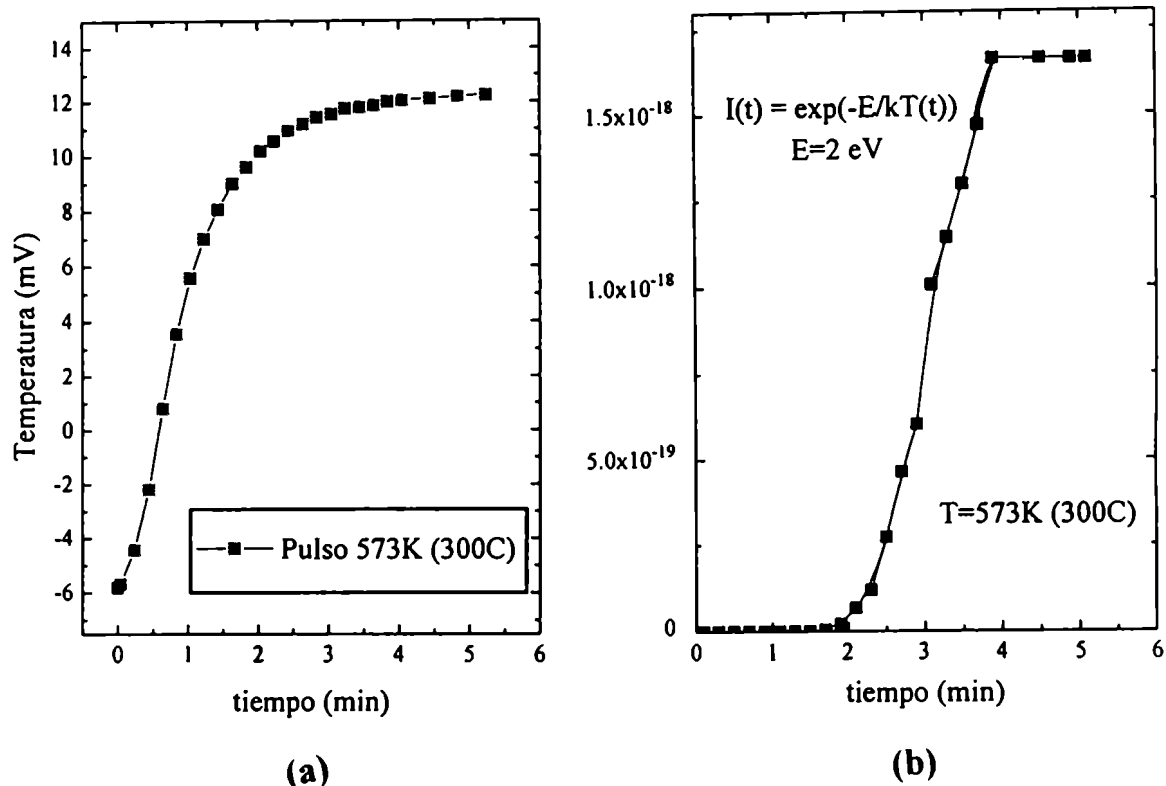


Fig. II. 3. 5 (a) Representación gráfica de los primeros 5 min del pulso temperatura $T = 573$ K, realizado con el horno nuevo; (b) integrando del numerador de la Ec. II. 3 para el pulso considerado.

Finalmente, la Fig. II. 3. 6 representa, en forma gráfica, a la Ec. II. 3. Las ordenadas corresponden al tiempo equivalente del pulso cuadrado de temperatura T_{∞} y las abscisas al tiempo experimental del pulso realizado. La curva con círculos oscuros es para $T_{\infty} = 568$ K y la curva con cuadrados oscuros es para $T_{\infty} = 573$ K.

A partir de esta Fig. II. 3. 6 se puede ver:

a) La sensibilidad de la Ec. II. 3 al valor del parámetro T_{∞} . Las rectas mostradas se trazaron a partir del ajuste por cuadrados mínimos a los últimos puntos experimentales. La pendiente de las rectas está dada analíticamente por el cociente entre el factor de Boltzmann correspondiente al experimento real, evaluado en la temperatura a la que estabilizó la probeta, T_{∞} , con respecto a $\exp(-E/kT_r)$. El criterio adoptado para la corrección de las medidas, en todos los casos, es tomar T_r .

b) La abscisa al origen de ambas rectas está en 3 min. Esto es esperable a partir de la repetitividad de los pulsos de temperatura del horno. Para tiempos de recocido menores a 3 min la corrección no es lineal. Para las medidas del presente trabajo no se han tenido en cuenta tiempos tan cortos. Luego, para realizar las correcciones a los tiempos, basta moverse a lo largo de una recta determinada por la abscisa al origen y un punto evaluado a partir de reemplazar en la Ec. II. 3 el tiempo experimental correspondiente.

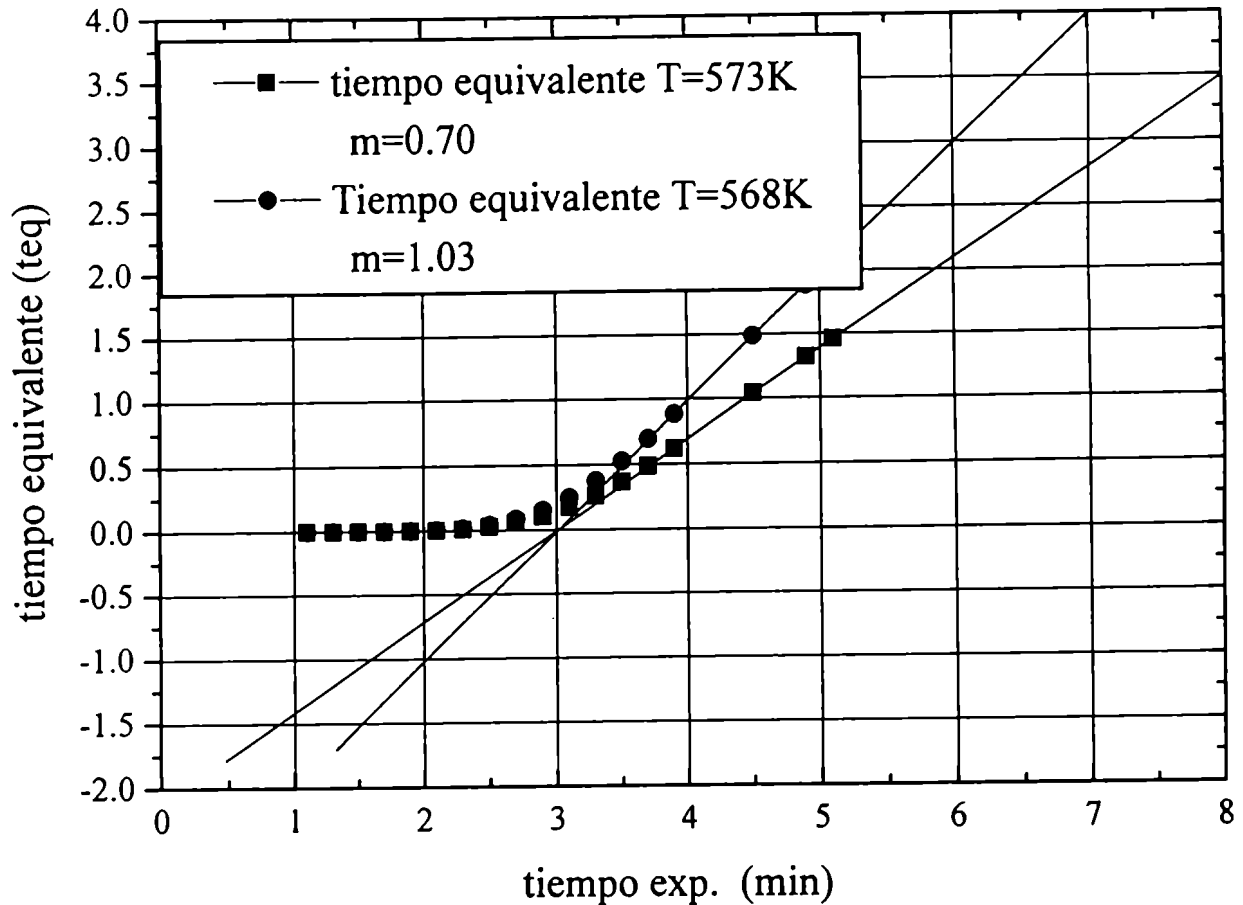


Fig. II. 3. 6 Representación gráfica de la Ec. II. 3. En la misma se muestra la sensibilidad de la ecuación a la variación del parámetro T_{∞} . Las rectas mostradas corresponden al ajuste por cuadrados mínimos de los últimos 6 puntos experimentales. La pendiente de las rectas se indica con la letra m .

c) Una vez determinados los recuperados isotérmicos se debe calcular la energía de activación y comparar el valor obtenido con los 2 eV propuestos a modo de incógnita en la Ec. II. 1. Si los valores no coinciden se debería tomar el determinado experimentalmente como nuevo punto de partida. Se espera que cuando la evaluación sea la correcta se debe obtener la reproducción del valor de la energía de activación aparente de la etapa.

d) Un análisis análogo se puede hacer suponiendo un orden $n > 1$. En este caso la Ec II. 1 debe ser reemplazada por la Ec. II. 4. De este modo también puede indagarse acerca de si el orden propuesto es el correcto.

$$P(t) = P_0 \left[1 - \frac{A(1-n)t}{P_0^{1-n}} \exp\left(\frac{-E}{kT}\right) \right]^{\frac{1}{1-n}} \quad \text{Ec. II. 4}$$

§ II. 3. 3 El Recuperado Isócrono y la Tensión de Fluencia

El núcleo de esta Tesis es el establecimiento de la existencia de subetapas dentro de la Etapa V de recuperación de Cu irradiado con neutrones a baja temperatura. Por lo tanto

fue necesario evaluar primero *si los puntos de inflexión presentes en un dado recuperado isócrono son introducidos en el proceso de medición o responden a un proceso físico subyacente* (disolución o cambios de configuración de los aglomerados de defectos que traban a la dislocación). Y, segundo, *asegurar la repetitividad del fenómeno en probetas similares*.

En las probetas Cu 29-2, Cu 26-1 y Cu 26-2 (§ III. 1 y § III. 2. 1), en que las temperaturas de los pulsos están suficientemente espaciadas, y por lo tanto los valores de carga son muy diferentes entre sí, la ubicación global de la Etapa V es muy clara. El ajuste del pico de la función derivada a una función gaussiana, permite ver el apartamiento de la simetría respecto a la campana, formándose hombros u escalones en el lado de las bajas temperaturas. Este hecho fue el primer indicio de la presencia de una subestructura de la Etapa V.

Pero la determinación de subetapas presentes en cualquiera de las etapas de recuperación y por cualquier técnica, es una tarea tediosa. Requiere barrer un intervalo estrecho de temperatura con la mayor cantidad posible de mediciones. Las mismas deben ser equiespaciadas para facilitar cualquier estudio de diferenciación matemática. Esto implica, en el presente caso, diferencias de temperatura entre pulsos menores o del orden de los 5 °C y diferencias en los valores de carga del orden de las decenas de gramos fuerza. Ambos requerimientos son cubiertos por los equipos utilizados. La INSTRON-4465 resuelve en el orden del gramo fuerza y las medidas de temperatura, durante el pulso son altamente estables, los pulsos son repetitivos y el error en las medidas de temperatura se considera inferior a medio grado.

La curva de recuperación isócrona de la tensión de fluencia debe mostrar puntos de inflexión inequívocos en esos intervalos. Debe permitir el ajuste de la misma, a funciones analíticas cuya derivada presente extremos dentro de los mismos. Luego, dada lo pequeña de las diferencias de carga involucradas, el resultado es un conjunto de puntos experimentales como el mostrado en la Fig.II. 3. 7.

En la misma se presenta el recuperado isócrono de la probeta Cu 32-1, realizado con el horno nuevo. La gráfica inferior (círculos claros) corresponde a tomar la carga en el punto de fluencia D'' y la superior (círculos oscuros) en el punto E, de carga máxima señalados en la Fig. II. 1. 5. Es decir, ignorando o teniendo en cuenta el efecto perturbativo de cada medición. El último caso corresponde a la peor situación ya que se está incluyendo en la medida los defectos producidos durante la medición.

La mayor diferencia se encuentra en el primer ensayo realizado luego de un pulso a 178 °C. El Δx correspondiente fue de 20.6 μm . El comportamiento es similar en ambas mediciones. Se encuentran tres puntos de inflexión en los recuperados isócronos. Estas curvas son ajustables a funciones gaussianas, graficadas dentro de cada intervalo con el único fin de ayudar a la visualización de los puntos de inflexión. Los ajustes mostrados corresponden al peor de los casos.

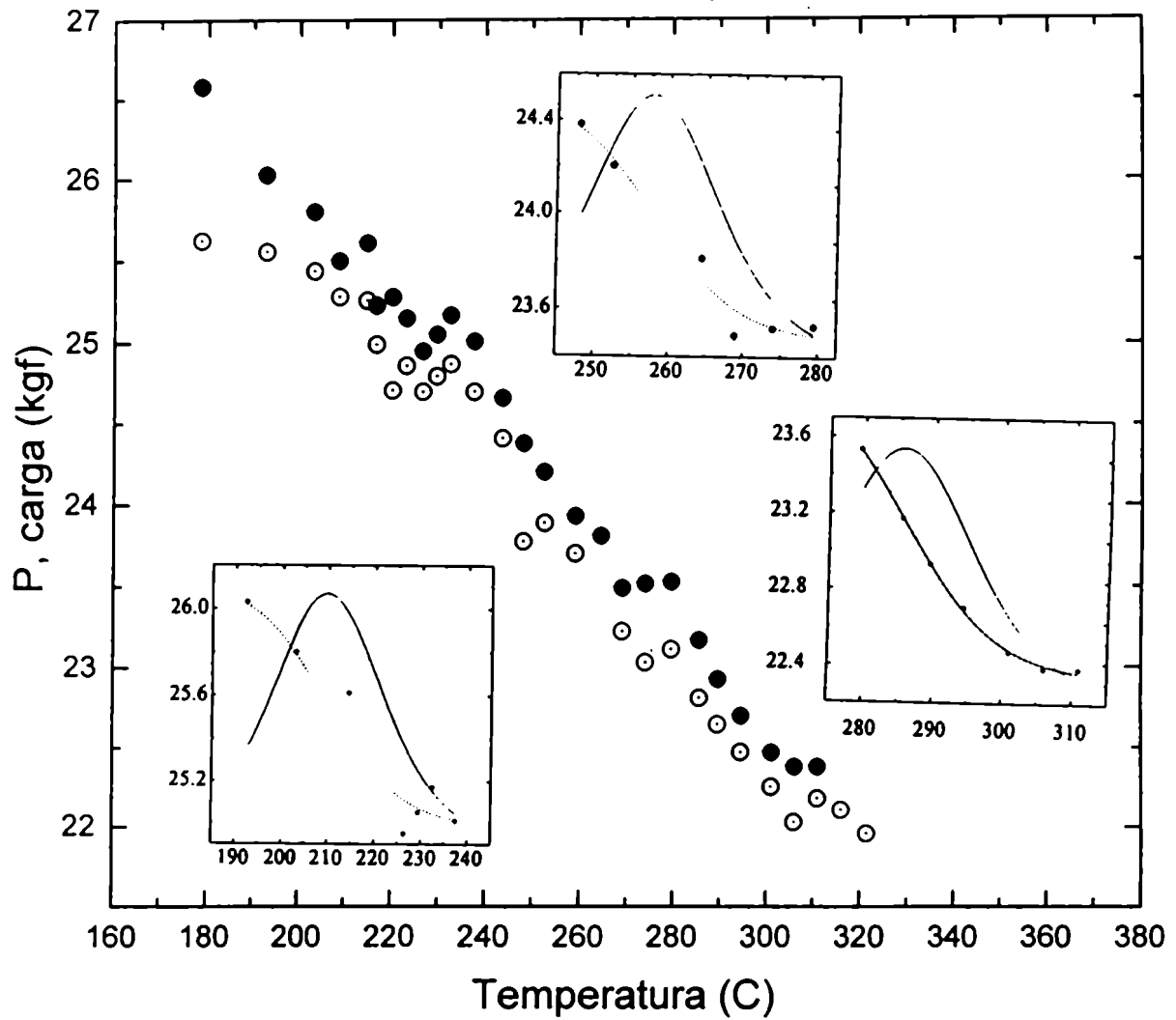


Fig. II. 3. 7 Recuperado isócrono de la probeta Cu 32-1, realizado con el horno nuevo. La gráfica inferior (círculos claros) corresponde a tomar la carga en el punto de fluencia D'' y la superior (círculos oscuros) en el punto E de carga máxima. Se muestran los ajustes en cada subintervalo a funciones gaussianas con el solo objetivo de permitir la rápida visualización de los puntos de inflexión dentro de cada uno de los intervalos tomados.

Notas

¹En monocristales crecidos sin semilla, se hacen evaluaciones cualitativas de la perfección cristalina tomando diagramas de Laue a largo de toda la crecida. Se han distinguido tres zonas (*J.H. Wernick and H.M. Davis, "Preparation of High-Purity Copper Single Crystals, J. Appl. Phys. 27, 2, 149, 1956*) según el orden de enfriamiento. La barra monocristalina crecida, si bien tiene la misma orientación, sufre de variaciones en la perfección a lo largo de la misma. La última porción del material que se enfria es la más perfecta. El prolongado recocido a altas temperaturas hace desaparecer el aterismo de los puntos de reflexión de la primera parte que se enfria, es decir la de más baja calidad. La explicación de este comportamiento reside en que el grafito no es tan buen conductor térmico como el cobre de modo que la primera porción que se enfria está sujeta a un agudo gradiente de temperatura respecto de la última porción. En monocristales crecidos con semilla se encuentra que la calidad cristalina es uniforme a lo largo de toda la crecida.

²El punto de fusión del Mg es 651 °C y el del Zn 420 °C.

³El tratamiento térmico de las probetas ha sido un tema muy discutido. En los primeros tiempos, la necesidad de lograr una alta relación ρ_{245K}/ρ_{42K} de cristales utilizados en mediciones galvanométricas o de magnetoresistencia Hall (*J.H. Gnicwek and A.F. Clark, "Preparation of Copper Crystals with Low Electrical Resistivity", J. Appl. Phys. 36, 3358, 1965*), motivó el inicio de numerosos estudios en el tema, que luego se prolongarían al estudio de otros observables físicos. Se observaban mejoras notables en función de la presión, de la naturaleza del gas en contacto con las muestras durante el recocido, de la temperatura y del tiempo en que se prolongaban los tratamientos.

⁴El Reactor Experimental RA-1 es óptimo para realizar las irradiaciones debido a:

- a) El flujo local, es decir, el que llega a las muestras, es constante durante la irradiación. Debido a la baja producción de venenos, la posición de las barras de control permanece fija durante el tiempo de irradiación (6-8 hs). Este hecho permite asegurar la dependencia lineal entre el flujo y el tiempo de irradiación.
- b) Un flujo de 10^{12} n cm⁻² s⁻¹ se obtiene con una potencia térmica de 40 kW. Esta potencia, y por lo tanto el bajo calentamiento gamma, se puede comparar con la correspondiente al RA-3 de 5000 kW y sólo un orden de magnitud adicional de flujo, 10^{13} n cm⁻² s⁻¹, o la de la Central Atucha -I de 300.000 kW, de 5×10^{13} n cm⁻² s⁻¹.
- c) Una buena relación de flujo rápido a térmico.

⁵Las calibraciones del flujo neutrónico se realizaron utilizando las medidas de la TCRC τ_K en Zn y no en Cu debido a las siguientes razones:

- a) El cinc presenta una TCRC τ_K preirradiación un orden de magnitud inferior al cobre (~ 0.2 Mpa). Este valor de tensión es despreciable respecto a la tensión debida a los obstáculos creados por irradiación. De este modo se puede considerar que el incremento $\Delta\tau^\circ$ postirradiación, es una medida directa del endurecimiento. Luego, el Zn permite la obtener una dispersión menor en los valores de dosis respecto al Cu.
- b) A diferencia del cobre, la tensión inicial de probetas de Zn irradiadas en las mismas condiciones experimentales se recupera dejando a las probetas 24 hs a temperatura ambiente. En Cu se necesitan recocidos prolongados, en vacío y a temperaturas superiores a los 800 °C.

⁶Las juntas elemento calefactor (NiCr)-elemento conductor de cobre fueron soldadas con alambre de aporte de aleación de plata 900. La unión fue enhebrada en un cilindro hueco de acero inoxidable AISI 316L de $\varnothing = 5$ mm y $L = 50$ mm. Este "casquillo" cumple las funciones de:

- a) centrar y proteger la unión elemento calefactor-elemento conductor de esfuerzos mecánicos,
- b) contener el material aislante (óxido de magnesio).

Establecida la corriente eléctrica, la unión fue desgasa en vacío dinámico durante un tiempo prolongado. Una vez obtenida la aislación adecuada (~ 20 M Ω) se introduce una sobrepresión de gas inerte de alta pureza, se cierra uno de los extremos con un tapón del mismo material y se suelda con plata 600. La Fig. II. 1 muestra un esquema ilustrativo de lo descrito (H.C. González, C.D. Anello y M. T. Miralles, *Dispositivo para realizar Recuperados Térmicos Postirradiación de Probetas de Tracción entre 77 y 700 K*, presentado y aceptado al Cso. IBEROMET-V, Rosario, Sept. 1998, Argentina).

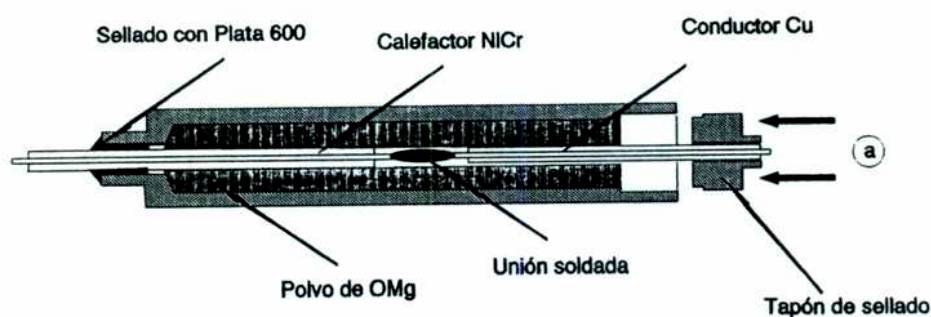


Fig. II. 1 Esquema ilustrativo de la unión elemento calefactor-elemento conductor. (a) indica la dirección de compactado y sellado

REFERENCIAS

- [1] Report on Matthey Spectrographically Standardised, Copper Rods, Lab. S.2065, J.M.31, Johnson, Matthey & Co., Limited, London, 1965.
- [2] T.H. Blewitt; "Deformation of Copper Single Crystals at 300 K and 78 K", Phys. Rev. 91, 1115, 1953.
- [3] B.D. Cullity, "Elements of X-Rays Diffraction", Addison Wesley, 1967.
- [4] Comunicación personal con la Dra. M. Ortiz (UAM-CAC-CNEA), marzo 1994.
- [5] D. Hull and D.J. Bacon; "Defects in Crystals", en: "Introduction to Dislocations", p. 22, Pergamon Press, 1984.
- [6] W. Hayden, W. Moffatt and J. Wulff; "Propiedades Elásticas", en: "Propiedades Mecánicas", Tabla 2.1, p. 47, Ed. Limusa-Wiley, S.A., México, 1968.
- [7] T.H. Blewitt, "Deformation of Copper Single Crystals at 300 K and 78 K", Phys. Rev., 91, 1115, 1953.
- [8] Informe de Seguridad para Licenciamiento de Reactores Experimentales, 1991.
- [9] M.D. Bovisio de Ricabarra, "Verificación de las Características de Irradiación en el RA-1", CNEA-Re-144, 1977.
- [10] H.C. González, T.H. Blewitt y E.A. Bisogni, "Micromáquina de Tracción y Criostato que operan en el Reactor RA-1", CNEA-NT 29/76.
- [10a] H.C. González, *Endurecimiento por Irradiación con Neutrones Rápidos en Monocristales de Mg, Zn y Cu a 77 K*, Tesis de Doctorado en Física, Inst. Balseiro, Univ. Nac. de Cuyo, 1973
- [11] C.J. Iriart; "Daño por Radiación en Zinc", Tesis de Doctorado, UBA, 1986.
- [12] <http://www.cnea.edu.ar/cac/ra1-498.thm>
- [13] W. Seelmann-Eggebert, G. Pfenning und H. Müntzel, NUKLIDCARTE, Institut für Radiochemie, Public. del Kernforschungszentrum Karlsruhe 4a. ed., 1974.
- [14] S. Glasstone and A. Sesonske, "Nuclear Reactor Engineering", D. Van Nostrand Company, Inc., 2a. de., New York, 1963.
- [15] A. Weinberg and E. Wigner, "The Physical Theory of Neutron Chain Reactors", The University of Chicago Press, 1960.
- [16] I. Kaplan, Nuclear Physics, 2nd Ed., Addison-Wesley Pub. Co.,

[17] H.C. González, C.D. Anello y M. T. Miralles, Dispositivo para realizar Recuperados Térmicos Postirradiación de Probetas de Tracción entre 77 y 700 K, Cso.IBEROMRET-V, Rosario, Sept. 1998, Argentina.

[18] B.T. Kelly, "The Annealing of Irradiation Effects in Solids", en "Irradiation Damage to Solids", Pergamon Press, Oxford, p. 179, 1966.

[19] W. Shilling, P. Ehrhart and K. Sonnenberg; "Interpretation of Defect Reactions in Irradiated Metals by the One Interstitial Model", en "Fundamentals Aspects of Radiation Damage in Metals", Proc. Internat. Conf. Tennessee, USA, 1, 470, 1975.

Tercera Parte

Resultados Experimentales

§. III. RESULTADOS EXPERIMENTALES

En esta sección se presentan los Resultados Experimentales obtenidos a lo largo de este Trabajo de Tesis.

La modalidad de presentación de los mismos es, en todos los casos, la siguiente:

a) *Nomenclatura:*

Todos los ensayos de tracción fueron realizados a 77 K, y se expresan, de aquí en adelante, con los símbolos: τ^{oo} (TCRC_{77K} preirradiación), τ^o (TCRC_{77K} postirradiación), τ^a ($< \tau^o$) (TCRC_{77K} luego de un pulso de recocido a temperatura $T > 77$ K). El endurecimiento inducido por el daño neutrónico a 77 K es $\Delta\tau^{irrad} = (\tau^o - \tau^{oo})$ es una constante para cada probeta y la condición inicial a partir de la cual se normalizan los recuperados isócronos e isotérmicos. El endurecimiento remanente en la probeta luego de un pulso de recuperación a temperatura $T (> 77$ K), se expresa como $\Delta\tau^a = (\tau^a - \tau^{oo})$.

b) *Datos de la probeta:*

Una **Tabla** reúne a todos los datos pertinentes de cada probeta. En la misma se detallan las medidas que caracterizan el estado preirradiación y postirradiación, las condiciones de irradiación y datos significativos del tratamiento térmico al que fueron sometidas.

c) *Representación gráfica de los puntos experimentales:*

Junto a la representación gráfica de los recuperados isócronos e isotérmicos (eje de ordenadas a la izquierda y símbolos oscuros) se incluye el gráfico correspondiente al módulo de la derivada de la curva experimental (eje de ordenadas a la derecha, símbolos claros). Esta representación es la habitual como surge del § I. 4. 2 ya que permite la rápida visualización del intervalo de temperatura en el cual la velocidad de recuperación es máxima para un dado proceso y permite, a partir de las áreas, calcular parámetros propuestos en los modelos teóricos. En todas las figuras del presente trabajo los datos experimentales se unen con líneas que no corresponden a ningún ajuste teórico y se dibujan simplemente para guiar la vista. Las temperaturas se expresan en grados centígrados. Cuando los recuperados son realizados desde bajas temperaturas es más conveniente adoptar la representación en temperatura absoluta, K. En estos casos se adjunta, entre paréntesis, el valor correspondiente en °C para evitar la discontinuidad en el análisis.

d) *Listado de las características sobresalientes*

e) *Comparación entre probetas semejantes:*

El estudio realizado de la Etapa V comprende cinco series de medidas:

La **Primera Serie** (Cu 29-2 y Cu 26-1) estuvo destinada a:

- reproducir los escasos resultados de la bibliografía referidos a la recuperación térmica de la TCRC en monocristales irradiados a dosis por encima de la saturación y temperatura de reactor.

- obtener la ubicación en temperatura de la Etapa V, en estas condiciones experimentales, pero con la continuidad y uniformidad de las medidas permitidas por el dispositivo de recocidos descrito en § II.3.1.1.

- observar la sensibilidad de la Etapa V con la dosis

La Segunda Serie (Cu 26-2 y Cu 32-1) tuvo por objetivo:

- repetir la recuperación de la Etapa V pero en las condiciones experimentales descritas en § I. 3. 2, es decir bajas dosis y temperatura de irradiación, iniciando la recuperación desde 200 K (Cu 26-2), es decir, pasando por las Etapas previas (III y IV) (§ I.4.4.6 y I.4.4.8).

- la insinuación de la existencia de una subestructura dentro de la Etapa V, puesta en evidencia gracias a la alta sensibilidad de la TCRC_{77K} a los aglomerados de defectos producidos por irradiación y a las condiciones de irradiación elegidas, indujeron a la realización de la recuperación isócrona cada 10 min y cada 3 °C de la probeta Cu 32-1, semejante a la anterior e irradiada en las mismas condiciones. La puesta en evidencia de tres procesos, sugerida a partir de las tres inflexiones de la curva de recuperación isócrona, a temperaturas coincidentes con los hombros observados en el pico de recuperación de la probeta Cu 26-2, fueron la primera confirmación obtenida experimentalmente por esta técnica de la presencia de las *subetapas* denominadas en este trabajo *Va*, *Vb* y *Vc*.

La Tercera Serie (Cu V-1, Cu V-2 y Cu V-8) consistió en el:

- estudio detallado de la subestructura de la Etapa V. El Cu V-2 fue destinado a la recuperación isócrona de la Etapa *Va* y las dos probetas restantes - Cu V-1 y Cu V-8- al estudio de la *Vb* y *Vc*. Estas probetas fueron crecidas en el laboratorio e irradiadas a baja dosis y a 77 K.

La Cuarta Serie (Cu 4 y las 8 probetas restantes) tuvo por finalidad:

- medir la energía de activación a partir del recuperado isócrono de las Etapas *Va*, *Vb* y *Vc*. El calentamiento involuntario a temperatura ambiente de este lote de probetas luego de la irradiación, condujo a la repetición del recuperado isócrono de la probeta Cu 4. Debido a que se observó la evidencia de una nueva subdivisión dentro de la Etapa *Vc*, se destinaron las restantes probetas a verificar si esta observación era reconfirmada a partir de estudios isotérmicos realizados en el intervalo de temperaturas de la Etapa *Vc*. Todas las probetas fueron crecidas en el laboratorio e irradiadas simultáneamente a bajas dosis y temperatura.
- se midió la energía de activación de la Etapa *Vc*, en forma fenomenológica, a partir de los recuperados isotérmicos, suponiendo un proceso uniactivado (§.I. 4.4.9)

La Quinta Serie (Zn 8-2) se centró en:

- el recuperado isócrono de la Etapa V en Zn, con la continuidad de medidas necesaria para poner en evidencia la posible existencia de una subestructura de recuperación, análoga a la del Cu, dentro de esta Etapa en este metal. Esta estructura no fue observada en la única curva de recuperación publicada [1] debido al número insuficiente de medidas verificadas en el intervalo correspondiente a la Etapa V.

§ III. 1 Primera Serie

§ III. 1. 1 Recuperado Isócrono correspondiente a la Etapa V de la TCRC_{77K} en Cu Irradiado con Neutrones a 350 K y Dosis $\sim 10^{22}$ n m⁻²

Se inicia el estudio de la Etapa V con la recuperación de dos probetas monocristalinas de Cu (Cu 26-1 y Cu 29-2) irradiadas a dosis por encima de la de saturación y a temperatura de reactor. El objetivo es obtener *por primera vez, mediante esta técnica*, el intervalo de temperatura en el que se produce la recuperación más significativa de la Etapa V en estas condiciones experimentales. La dosis y temperatura de irradiación, como se explicó en § I.3.2, no son las más adecuadas para inducir defectos cuya posterior recuperación pueda ser cuantificada a partir de medidas de la TCRC. Pero dichas condiciones de irradiación constituyen *el único* antecedente de estudio de la Etapa V existente en la bibliografía, por plasticidad. Para ello fue necesario realizar el recuperado isócrono con la continuidad de medidas pertinentes para poder efectuar una diferenciación de la curva experimental que muestre el pico de recuperación sin ambigüedad.

El Cu 26-1 y Cu 29-2 son probetas que se encontraban en el laboratorio y que fueron irradiadas en Argonne años atrás. Es decir, son completamente similares a las utilizadas por Blewitt y col. [2] en sus experiencias e irradiadas en las mismas condiciones. Estas probetas fueron almacenadas a temperatura ambiente y en vacío, durante un periodo prolongado.

Los datos de interés de las probetas asociados a las condiciones de irradiación y magnitudes pre y postirradiación se encuentran resumidos en la Tabla III.1:

	Cu 26-1	Cu 29-2
Sección (A)	$7.749 \pm 0.327 \text{ mm}^2$ ($\delta = 4.22 \%$)	$7.644 \pm 0.304 \text{ mm}^2$ ($\delta = 3.9 \%$)
Longitud entre cabezas (l)	$31.15 \pm 0.1 \text{ mm}$	$30.76 \pm 0.1 \text{ mm}$
eje-plano (111) (χ°)	$49^\circ 55' \pm 1^\circ$	$58^\circ 4' \pm 1^\circ$
eje-direcc. [101] (λ°)	$42^\circ 7' \pm 1^\circ$	$31^\circ 58' \pm 1^\circ$
Factor de Schimdt	0.4775	0.4567
τ°	$\sim 2 \text{ MPa}$	$\sim 2 \text{ MPa}$
T_{irrad}	80 °C	80 °C
Dosis (Φt)	$1.3 \times 10^{22} \text{ n m}^{-2}$	$6.33 \times 10^{22} \text{ n m}^{-2}$
τ°	31.4 MPa	49 MPa
$\Delta\tau^{\text{irrad}} = (\tau^\circ - \tau^{\circ\circ})$	29.4 MPa	47 MPa
% endur. $\times$ daño neutr. [($\Delta\tau^{\text{irrad}}/\tau^{\circ\circ}$) $\times$ 100]	1470 %	2350 %
Interv. de recup. isocr. (ΔT)	100 - 433 °C	134 - 380 °C
τ^a fin de la recup.	4.5 MPa	6.5 MPa
% recup del daño [($\tau^\circ - \tau^a$)/ $\Delta\tau^{\text{irrad}}$] $\times$ 100	91.5 %	90.42 %
eje-plano (111) postrecup.	$47^\circ 3' \pm 1^\circ$	$56^\circ 23' \pm 1^\circ$
eje-direcc [101] postrecup.	$43^\circ 35' \pm 1^\circ$	$33^\circ 40' \pm 1^\circ$
Factor de Schimdt post irrad	0.4948	0.4608

Tabla III. 1 Datos correspondientes a las probetas Cu 26-1 y Cu 29-2

Se puede observar a partir de la Tabla III. 1:

- La geometría de las probetas medidas es idéntica a las crecidas para este trabajo de tesis. (§ II. 1).
- La orientación del eje de tracción dentro del triángulo estereográfico garantiza el deslizamiento en un único sistema de los 12 posibles permitidos para el Cu (§ I.1.2).
- El valor preirradiación no fue medido, ya que las probetas estaban irradiadas. El consignado en la Tabla III. 1 es el especificado con el envío de las probetas y coincide con el obtenido para los monocristales crecidos por la técnica de Bridgman en el laboratorio (§ II.1.3). Este valor es indicativo además de la alta pureza del metal utilizado (§ I.1.4.2) (no se dispone de los datos del estudio espectrométrico).
- La temperatura de irradiación corresponde a la llamada temperatura de reactor, cuando se realizan irradiaciones a temperatura ambiente. El valor se debe al calentamiento gamma en los reactores de fisión (~ 80 °C).
- El valor de dosis asignado es el calculado a partir de las curvas publicadas de endurecimiento vs dosis, obtenidas por el grupo D×R [3]. Es decir, representa la dosis equivalente que tendrían las probetas si la irradiación se hubiera llevado a cabo en el reactor RA-1-CNEA (12 días de irradiación continuada).
- El valor de τ^0 pone en evidencia la alta sensibilidad de la tensión de fluencia, medida a 77 K, a los aglomerados de defectos producidos por la irradiación neutrónica. (Lo mismo ocurre en Mg y Zn irradiados a bajas temperaturas [4]).
- El τ^{irrad} es la variable experimental que se utilizó para cuantificar el daño. Si bien en estas condiciones experimentales es discutible la aditividad de las tensiones (§ I.3.5), se la adopta para poder entablar comparaciones con las restantes probetas de este trabajo.

Debido a que las probetas sufrieron una serie de tracciones, se redeterminó la orientación al final del recuperado térmico para evaluar si, a pesar de la pequeña deformación resuelta de cada ensayo (§ II.1.6.3.1), la hipótesis de mantener la orientación inicial constante era aceptable. La hipótesis se sostuvo inicialmente dado que el cálculo analítico del número de tracciones necesario para que el polo correspondiente al eje de tracción alcance el borde [001]- $[\bar{1}11]$ del triángulo estereográfico era siempre mucho mayor que el número de tracciones realizadas. Pero debido a lo discutido en (§I.1.2) en el sentido de que se trata de un límite físico y no matemático, se decidió la comprobación experimental. El resultado indica que el deslizamiento continúa siendo simple. La misma conclusión se obtuvo a partir del estudio de líneas de deslizamiento de la probeta al finalizar el trabajo.

La Fig. III. 1 muestra el recuperado isócrono (10 min) de la TCRC_{77K}, de las probetas Cu 26-1 y Cu 29-2, en función de la temperatura.

Los valores en el eje de las ordenadas están normalizados en cada probeta, de modo que el valor "1" corresponde al valor postirradiación ($\tau^a = \tau^0$) y el "0" al de recuperación total ($\tau^a = \tau^{00}$).

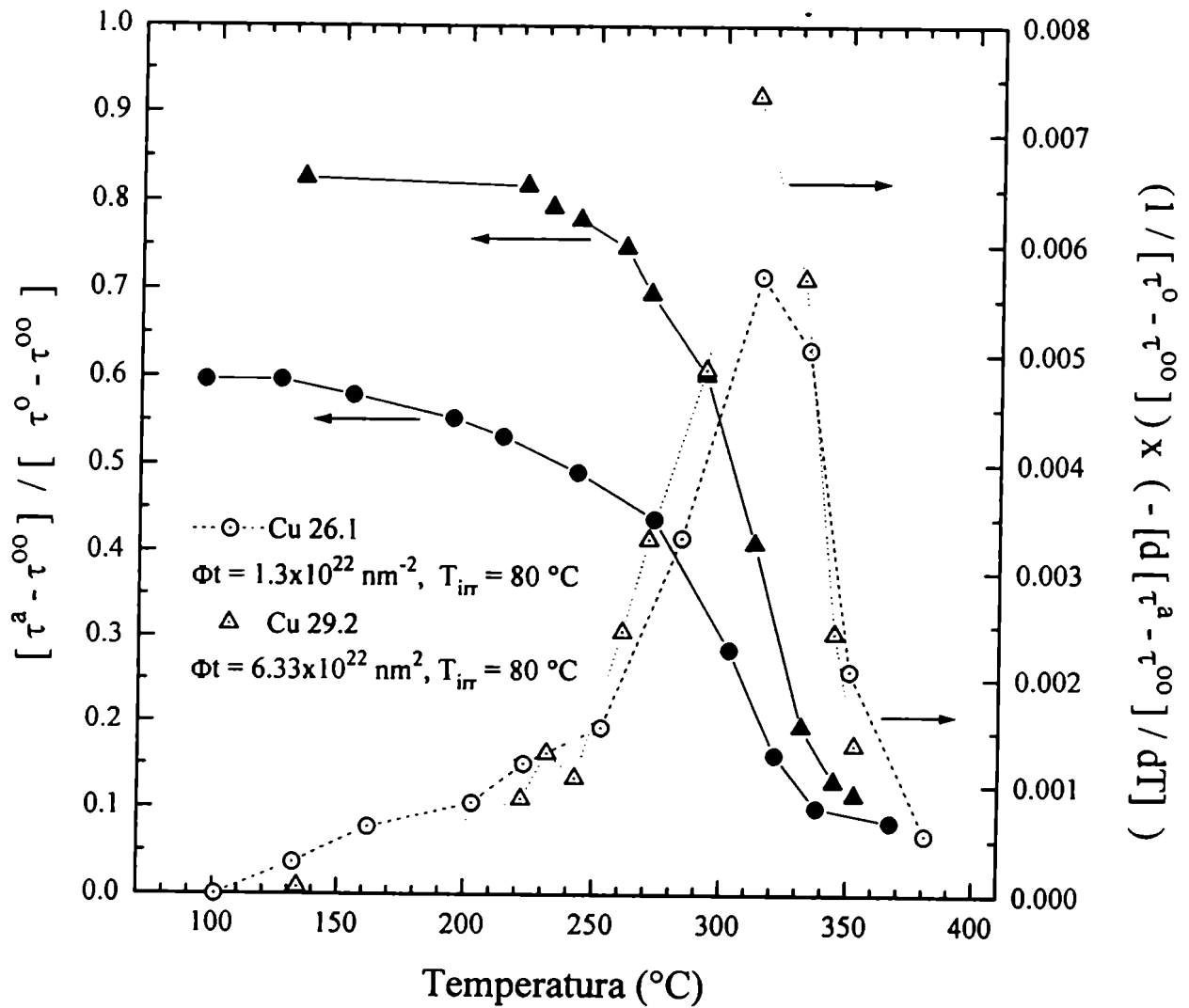


Fig III. 1 Recuperado isócrono (10 min) del endurecimiento de las probetas Cu 26-1 (círculos oscuros) y Cu 29-2 (triángulos oscuros) a lo largo de la Etapa V (eje de ordenadas a la izquierda) y del módulo de la función derivada correspondiente (eje de ordenadas a la derecha y símbolos claros). Los monocristales de Cu fueron irradiados con neutrones a dosis por encima del valor de saturación en Cu ($\sim 10^{22} \text{ n m}^{-2}$) y a temperatura de reactor.

§ III. 1. 2 Comparación de las Probetas Cu 29-2 y Cu 26-1

En la Fig III. 1. se puede ver que:

a) ambas probetas presentan un recuperado monótono decreciente con el incremento de la temperatura siendo la recuperación más significativa en el intervalo 220 a 350 $^\circ\text{C}$. Si bien el número de medidas es insuficiente para cualquier afirmación concluyente, la forma del pico en el lado de las bajas temperaturas sugeriría la presencia de diferentes procesos de disolución de aglomerados de vacancias.

b) La probeta Cu 29-2, presenta indicios de la presencia de un pequeño hombro en el intervalo 225-250 °C.

c) La posición del pico de recuperación de la Etapa V se encuentra, en ambas probetas, alrededor de 314 °C.

d) El endurecimiento promedio recuperado dentro de la Etapa propiamente dicha, es en promedio, del 80,2 % del valor postirradiación y se ubica entre ~ 250-380 °C.

e) En la Tabla III. 2 se encuentran discriminados los porcentajes de recuperación obtenidos a partir del recuperado isócrono a lo largo del intervalo estudiado, en ambas probetas. En el subintervalo 132-223 °C, la probeta expuesta a menor dosis presenta un 10 % de recuperación mayor que la probeta Cu 29-2, mientras que en el subintervalo 250-350 °C este comportamiento se invierte.

El criterio adoptado para la elección de los subintervalos de temperatura de la Etapa V surge del análisis de los recuperados térmicos del conjunto de todas las probetas restantes irradiadas a bajas dosis y temperatura.

	100-132C	132-223C	223-253C	253-350C	T>350C
Cu 26-1	3.1 %	11.18 %	7%	67.65 %	11.07 %
Cu 29-2	3.2 %	1%	6.6%	79.14 %	10.06 %
Δ %		10.18 %		11.49 %	

Tabla III. 2 Comparación de los porcentajes de recuperación del endurecimiento de las probetas Cu 26-1 y Cu 29-2

f) Ambas probetas quedan con un endurecimiento remanente (~ 10 %).

§ III. 2. Segunda Serie

§ III. 2. 1. Recuperado Isócrono correspondiente a la Etapa V de la TCRC_{77K} en Cu Irradiado con Neutrones a 77 K y Dosis $\sim 4.5 \times 10^{20} \text{ n m}^{-2}$

Con el objetivo de estudiar la Etapa V, pero en las condiciones experimentales elegidas para este trabajo, se decidió repetir el estudio anterior con dos probetas (Cu 26-1 y Cu 32-1), de la misma procedencia que las anteriores, a las que se les realizó un recocido previo de 40 min a 723 K. De este modo las probetas, que presentaban un τ^∞ de ~ 5 MPa, fueron nuevamente irradiadas a 77 K y a dosis menores a la de saturación. La Tabla III. 3 reúne los datos experimentales de las mismas:

	Cu 26-2	Cu 32-1
Sección (A)	$7.804 \pm 0.388 \text{ mm}^2$	$8.247 \pm 0.250 \text{ mm}^2$
Longitud entre cabezas (l)	$31.4 \pm 0.14 \text{ mm}$	$30.687 \pm 0.44 \text{ mm}$
eje-plano (111) (χ°)	$58^\circ 5' \pm 1^\circ$	$48^\circ \pm 1^\circ$
eje-direcc. [101] (λ°)	$32^\circ 24' \pm 1^\circ$	$42^\circ \pm 1^\circ$
Factor de Schimdt	0.4462	0.4915
Tiempo de Recocido	40 min (430 °C)	
$\tau^{\circ\circ}$	4.86 MPa	5.76 MPa
T_{irrad}	77 K	
Dosis (Φt)	$4.5 \times 10^{20} \text{ n m}^{-2}$	
τ°	18.86 MPa	49 MPa
$\Delta\tau^{\text{irrad}} = (\tau^\circ - \tau^{\circ\circ})$	14.0 MPa	47 MPa
% endur. $\times$ daño neutr. [$(\Delta\tau^{\text{irrad}} / \tau^{\circ\circ}) \times 100$]	$\sim 288 \%$	$\sim 247 \%$
Interv. de recup. isocr. (ΔT)	200 - 729 K (-73 - 456 °C)	453 - 593 K (180 - 320 °C)
τ^a fin de la recup.	12.5 MPa	13.14 MPa
% recup. del daño [$(\tau^\circ - \tau^a) / \Delta\tau^{\text{irrad}} \times 100$]	45.428 %	48.94 %

Tabla III. 3 Datos correspondientes a las probetas Cu 26-2 y Cu 32-1

§ III. 2. 2 La Probeta Cu 26-2 (Recuperación desde 200 hasta 623K, (-73 - 350 °C))

La introducción de daño en condiciones más controladas debía permitir clarificar los rasgos mostrados en el estudio anterior. Con la probeta Cu 26-2. se realizó el recuperado isócrono (10 min) en el intervalo 200 a 623 K que se muestra en la Fig. III. 2.

En la misma se puede observar:

- Entre 77-266 K (-196 a -7 °C) se produce la recuperación del endurecimiento asociado a las reacciones entre defectos que tienen lugar al final de la Etapa II y Etapa III (§ I.4.4.4 y § I. 4. 4. 6). Se continúa luego con una zona sin recuperación significativa hasta aproximadamente 460 K (187 °C) en que se inicia la Etapa V. La cual se extiende a lo largo del intervalo 460-623 K (187-350 °C).
- El pico de recuperación de la Etapa V se sitúa alrededor de 560 K (287 °C). Es decir, se observa un corrimiento de ~ 30 K con respecto a las probetas anteriores hacia las bajas temperaturas.
- Lo mismo ocurrió con la Etapa III, localizada alrededor de 205 K (~ 68 °C). Esta Etapa, se ubica generalmente alrededor de 223 K (-50 °C) (§ I. 4. 2. 3). Se observa la insinuación de un hombro alrededor de 235 K y de un pequeño pico de recuperación alrededor de 400 K. En ambos casos las medidas experimentales son insuficientes para tener certidumbre de los mismos.

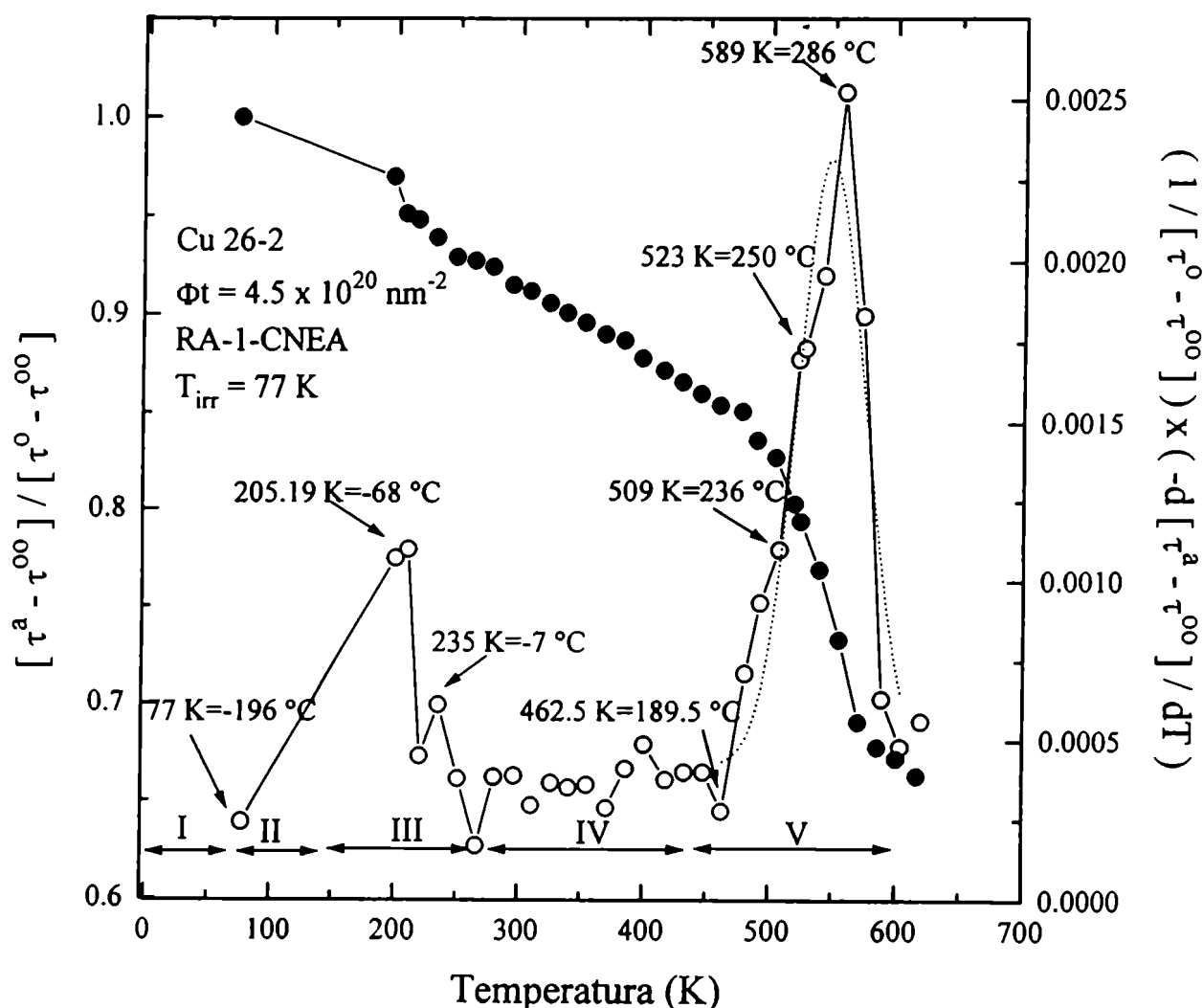


Fig III. 2 Recuperado isócrono (10 min) del endurecimiento de la probeta Cu 26-2 desde 200 K hasta finalizar la Etapa V (eje de ordenadas a la izquierda, círculos oscuros) y del módulo de la función derivada (eje de ordenadas a la derecha, círculos claros) respectivamente. La probeta monocristalina de Cu fue irradiada con neutrones a $4.5 \times 10^{20} \text{ n m}^{-2}$ y a 77 K en el Reactor RA-1-CNEA.

d) En el lado izquierdo del pico de recuperación de la Etapa V, aparecen dos hombros que se apartan del ajuste simétrico a una función gaussiana dibujada en línea punteada, con el único objetivo de estudiar ese borde. De corresponder a subprocesos de recuperación estos deberían esperarse entre 462-509 K (~ 189 -236 °C), 509-523 K (236-250 °C) y finalmente, entre 523-600 K (250-330 °C).

§ III. 2. 3 La Probeta Cu 32-1 (Recuperación desde 453 hasta 593 K (180 a 320 °C))

Con la probeta Cu 32-1, comparable a la anterior, se estudió la Etapa V en el intervalo 180-320 °C. El recuperado isócrono se llevó a cabo cada 3 °C, con pulsos de 10 min.

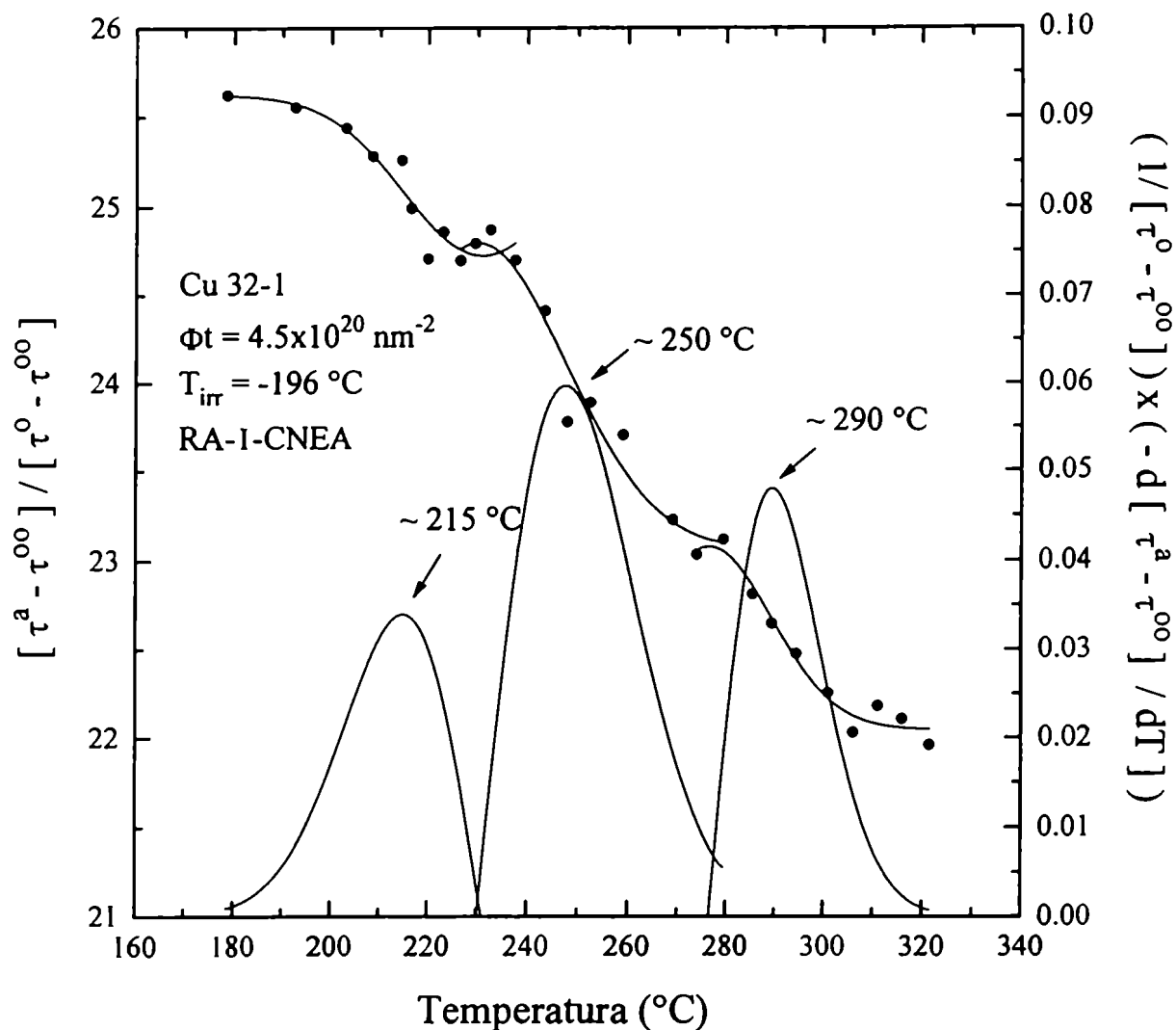


Fig III. 3 Recuperado isócrono (10 min) del endurecimiento de la probeta Cu 32-1 a lo largo de la Etapa V (eje de ordenadas a la izquierda, círculos oscuros). El módulo de la función derivada de 3 funciones gaussianas (eje de ordenadas a la derecha, círculos claros), ajustadas a los puntos experimentales en cada subintervalo, se dibuja al sólo efecto de poner en evidencia las temperaturas alrededor de las cuales ocurren las inflexiones en el recuperado isócrono respectivamente. Los monocristales de Cu fueron irradiados con neutrones a baja dosis y a 77 K en el reactor RA-I-CNEA.

En esta Fig. III. 3 se pueden distinguir:

- a) Tres inflexiones en la recuperación isócrona. Los picos que se muestran corresponden a la derivación de la curva promedio que pasa a través de los puntos experimentales en cada subintervalo. El primer pico (~ 213 °C) corresponde al punto de inflexión de la curva de recuperación isocrona del intervalo 180-230 °C (10 puntos experimentales). El segundo pico (~ 250 °C) al intervalo 230-270 °C (10 puntos experimentales) y el tercero (~ 290 °C) al

intervalo 270-320 °C (10 puntos experimentales). De aquí en adelante, en este trabajo, se hará referencia a estas **subetapas de recuperación** como **Va, Vb y Vc** respectivamente.

La ubicación “exacta” del máximo de los picos es función del ajuste usado. Simplemente se dibujan para ubicar alrededor de qué temperatura ocurre la máxima velocidad de reacción de los defectos cuya variación se refleja en un cambio en el incremento de la propiedad medida. Lo importante es la puesta en evidencia, mediante el recuperado de la tensión de fluencia, de diferentes procesos de disolución de aglomerados originados durante la irradiación neutrónica a bajas dosis y temperatura, que no fueron observados anteriormente en Cu, midiendo esta propiedad.

§ III. 2. 4 Comparación entre las Probetas Cu 26-1 y Cu 32-1

a) La ubicación de los picos de recuperación en la probeta Cu 32-1 es consistente con los intervalos de recuperación observados en la probeta Cu 26-2. En esta última no se llevó a cabo este análisis debido a la escasez de puntos experimentales. Simplemente y al igual que las probetas Cu 26-1 y Cu 29-2, se usó para tener un primer acercamiento a la Etapa V en las condiciones experimentales de bajas dosis y temperatura.

b) En la Tabla III. 4 se comparan los porcentajes de recuperación dentro de cada intervalo. En ambas probetas el endurecimiento remanente es similar y la recuperación del endurecimiento durante la Etapa (Va+Vb+Vc) es menor del 20 %.

c) En Cu 32-1 se observó una disminución del porcentaje de recuperación a lo largo de las tres subetapas. Este comportamiento no aparece en Cu 26-2, recuperada desde 200 K. Es decir, la recuperación de la Etapa V sería sensible a los procesos de recombinación de defectos en las etapas previas.

% de recuperación	Cu 26-2	Cu 32-1
Va	~ 4.2	~ 5.647
Vb	~ 7	~ 5
Vc	~ 7	~ 2.32
% remanente	~ 66.5	~ 65.82

Tabla III. 4 Porcentajes de recuperación en las subetapas

§ III. 2. 5 Comparación de la Probeta Cu 32-1 con las Probetas de la Primera Serie (Cu 29-2 y Cu 26-1)

A partir de la comparación de las probetas se destacan los siguientes rasgos:

a) El decaimiento del porcentaje de recuperación en la Etapa V con la dosis, pone en evidencia que los obstáculos creados durante esta Etapa se originaron durante la irradiación neutrónica (Cu 29-2 y Cu 26-1).

b) Un corrimiento del pico de la Etapa V en 30 °C hacia las bajas temperaturas (Cu 26-2) respecto a las irradiaciones a mayor dosis y a temperatura de reactor, confirma el ítem anterior. Las probetas Cu 26-2 y Cu 32-1 fueron recocidas a una temperatura insuficiente para disociar a todos los aglomerados creados durante la irradiación previa, de modo que durante la

irradiación a 77 K estos defectos actuaron como sumideros (radiation annealing) dejando en consecuencia una estructura de daño diferente, y recuperable a menor temperatura. Como era de esperar, el porcentaje de recuperación a lo largo de la Etapa V fue significativamente menor que en las probetas Cu 29-2 y Cu 26-1.

c) La disminución en el porcentaje de recuperación ocurrida durante de la Etapa V en las probetas irradiadas a baja temperatura, es esperable dada la menor dosis recibida (dos órdenes de magnitud menor).

§ III. 3 Tercera Serie

III. 3. 1. Recuperado Isócrono correspondiente a la Etapa V de la TCRC_{77K} en Cu Irradiado con Neutrones a 77 K y Dosis $\sim 4.5 \times 10^{20} \text{ n m}^{-2}$: Etapas Va, Vb y Vc

Con el objetivo de confirmar la existencia de la subestructura de la Etapa V, observada en las probetas anteriores, se decidió realizar recuperados isócronos en cada uno de estos intervalos. Para tal fin se crecieron en el laboratorio (§ II.1.3) tres probetas monocristalinas de Cu -Cu V-1, Cu V-2 y Cu V-8- de baja TCRC_{77K}, que fueron irradiadas a bajas dosis y temperatura, es decir en las condiciones de las dos probetas anteriores, pero sin sumideros iniciales.

Los datos experimentales de las probetas se presentan en la Tabla III. 5

	Cu V-2	Cu V-8	Cu V-1
Sección (A)	$10.619 \pm 0.175 \text{ mm}^2$		
Longitud entre cabezas (l)	30 mm		
eje -plano (111) (χ°)	$42^\circ \pm 1^\circ$		
eje-direcc. [101] (λ°)	$53^\circ \pm 1^\circ$		
Factor de Schimdt	0.4488		
Recocido preirradiación	900 °C (5 h)		
$\tau^{\circ\circ}$	$\sim 2 \text{ MPa}^*$		
T_{irrad}	77 K		
Dosis (Φt)	$\sim 4 \times 10^{20} \text{ n m}^{-2}$		
tiempo de irradiación	6 h 10 min		
τ°	13.58 MPa	12.95 MPa	14.98 MPa
$\Delta\tau^{\text{irrad}} = (\tau^\circ - \tau^{\circ\circ})$	11.58 MPa	11.95 MPa	13.98 MPa
% endur. $\times$ daño neutr. $[(\Delta\tau^{\text{irrad}} / \tau^{\circ\circ}) \times 100]$	579 %	596 %	698 %
Interv. de recup. isocr. estudiado (ΔT)	218-320 °C	227-378 °C	270-440 °C
τ^a fin de la recup.	3.03 MPa	5.86 MPa	10.32 MPa
% recup. del daño $[(\tau^\circ - \tau^a) / \Delta\tau^{\text{irrad}}] \times 100$	54.32 %	34.55 %	35.81 %

Tabla III. 5 Datos experimentales de las probetas Cu V-1, Cu V-2 y Cu V-8. * no se midió para evitar cualquier deformación, el valor asignado es el promedio obtenido en crecidas similares.

§ III. 3. 2 La Probeta Cu V-2 (Etapa Va)

El monocristal Cu V-2 se destinó a reconfirmar la Etapa Va en estas condiciones experimentales, mediante el estudio isócrono, cada 10 min y 5 °C a partir de 218 °C y prolongando su recuperación hacia las restantes Etapas.

Los resultados se muestran en la Fig. III. 4:

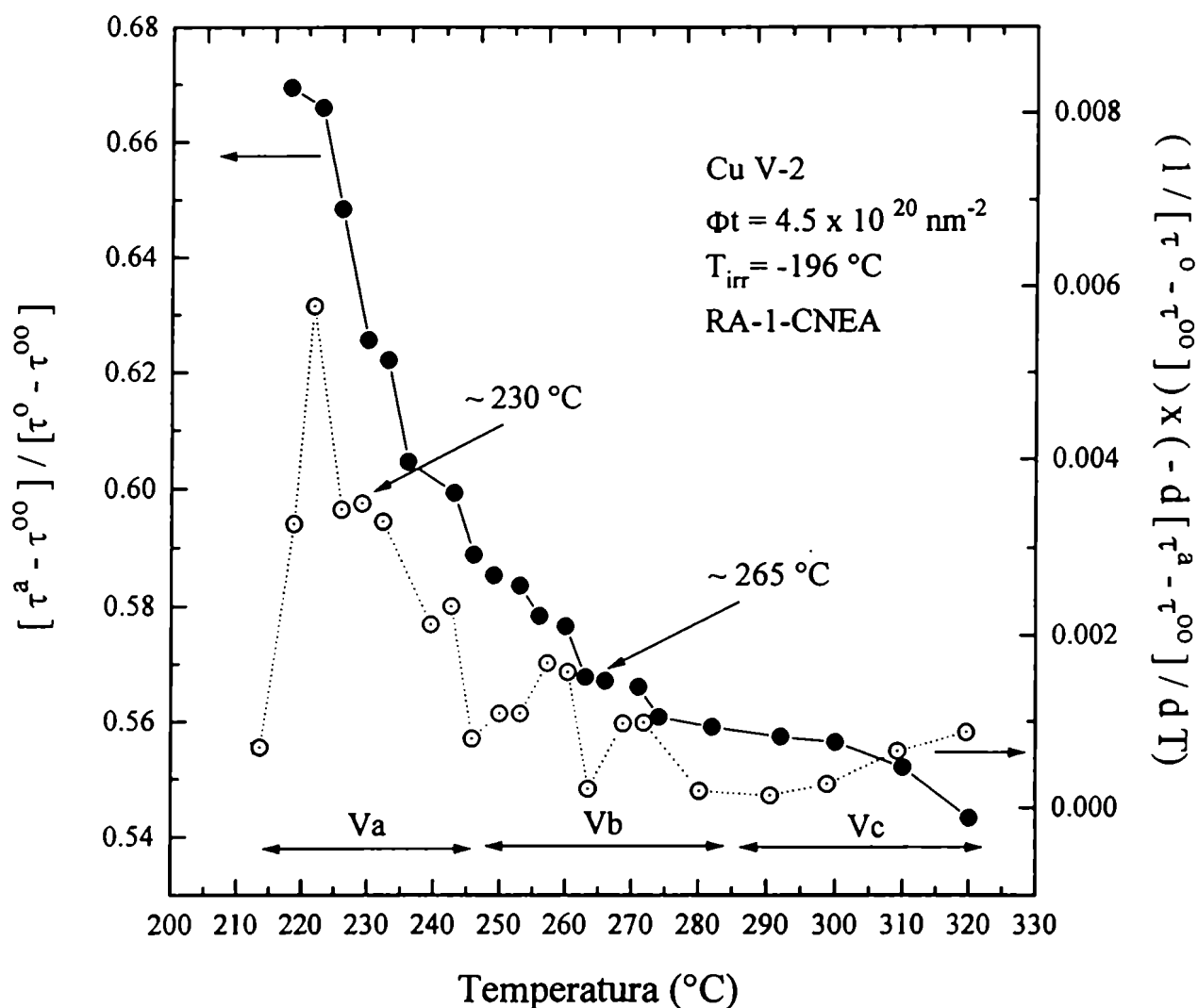


Fig. III. 4 Recuperado isócrono (10 min) del endurecimiento de la probeta Cu V-2 destinado al estudio de la Etapa Va (eje de ordenadas a la izquierda, círculos oscuros) y del módulo de la función derivada (eje de ordenadas a la derecha, círculos claros) respectivamente. El monocristal de Cu V-2 fue irradiado, junto a las probetas Cu V-8 y Cu V-1, con neutrones a 77 K y $4.5 \times 10^{20} \text{ n m}^{-2}$, en el Reactor RA-1-CNEA.

Se observa:

a) La Etapa Va (9 puntos experimentales) se extiende entre ~ 177 - $250 \text{ }^{\circ}\text{C}$, presentando un pico de recuperación alrededor de $227 \text{ }^{\circ}\text{C}$.

b) La Etapa Vb (8 puntos experimentales) se extiende entre ~ 250-287 °C

c) La Etapa Vc se inicia a partir de 290 °C. La recuperación se pudo seguir hasta 320 °C cuando se dobló accidentalmente la probeta.

§ III. 3. 3 La Probeta Cu V-8 (Estudio de Etapas Vb y Vc)

La probeta Cu V-8 se utilizó para estudiar la recuperación de la Etapa Va y Vb. El recuperado se inició a partir del máximo de la Etapa Va. Los resultados se muestran en la Fig. III. 5:

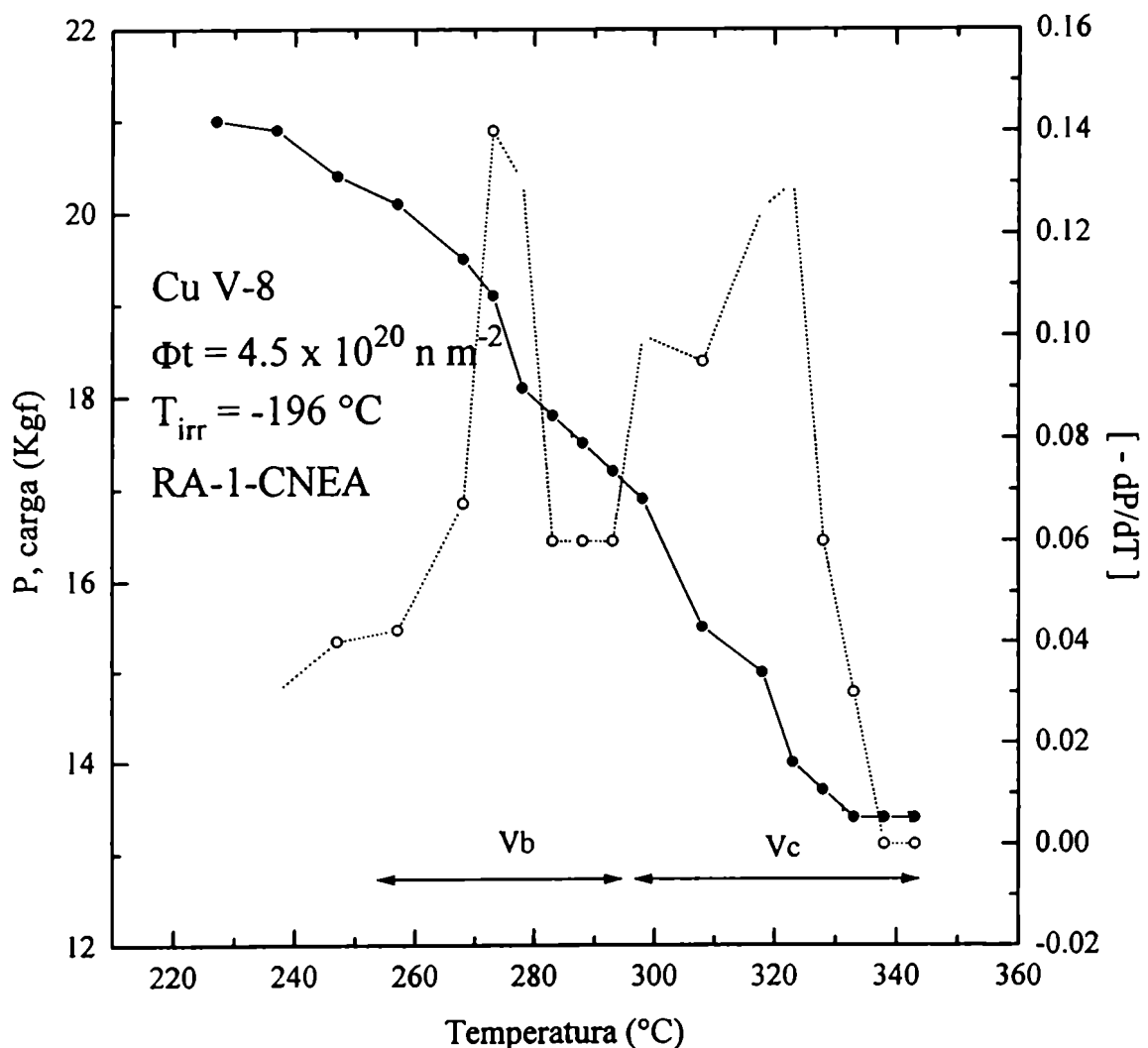


Fig. III. 5. Recuperado isócrono (10 min) de la carga (P) de la probeta Cu V-8 destinado al estudio de las Etapas Vb y Vc (eje de ordenadas a la izquierda, círculos oscuros) y módulo de la función derivada (eje de ordenadas a la derecha, círculos claros) respectivamente. El monocristal de Cu V-8 fue irradiado con neutrones, junto a las probetas Cu V-2 y Cu V-1, a $4.5 \times 10^{20} \text{ n m}^{-2}$ y a 77 K, en el Reactor RA-1-CNEA.

Dada las presentes condiciones experimentales (probetas “idénticas” por construcción e irradiación conjunta) y a los efectos de reconfirmar la ubicación de las Etapas Vb y Vc, podemos comparar directamente los valores de P (carga) vs Temperatura (T) obtenidos durante los ensayos de tracción uniaxiales de la probeta a lo largo del recuperado isócrono (§ II.1.6.3.1). En la Fig. III. 5 se observan dos puntos de inflexión en la recuperación isócrona ubicados alrededor de 273 y 323 °C respectivamente. La separación de las Etapas se visualiza claramente alrededor de 283 °C.

§ III. 3. 4. La Probeta Cu V-1 (Estudio de Etapas Vb y Vc)

El cristal Cu V-I estuvo destinado a ver las Etapas Vb y Vc en estas condiciones experimentales. La Fig. III. 6 muestra los resultados obtenidos:

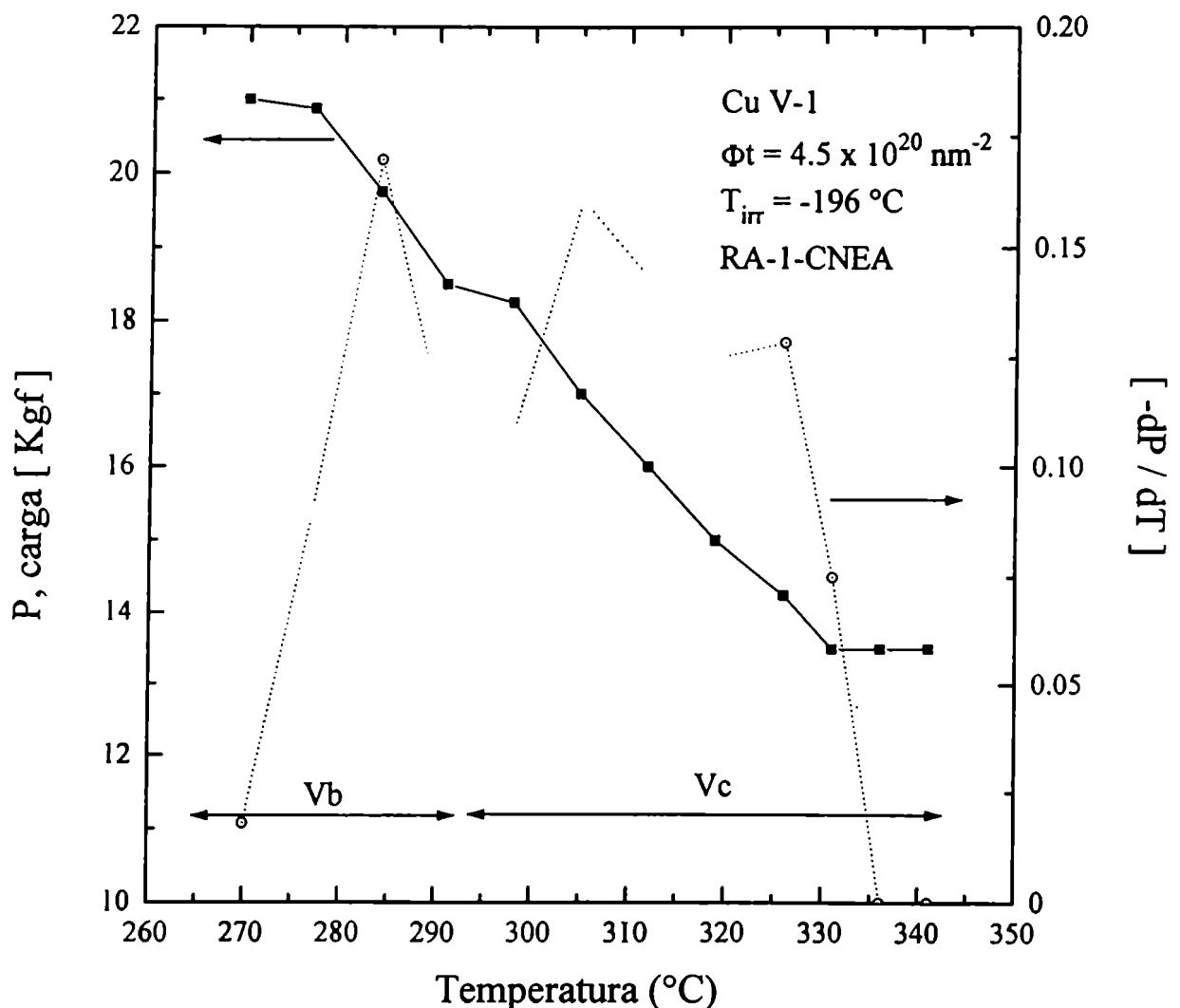


Fig. III. 6 Recuperado isócrono (10 min) de la carga (P) de la probeta Cu V-2 destinado al estudio de las Etapas Vb y Vc (eje de ordenadas a la izquierda, círculos oscuros) y módulo de la función derivada (eje de ordenadas a la derecha, círculos claros) respectivamente. El monocristal de Cu V-2 fue irradiado con neutrones, junto a las probetas Cu V-8 y Cu V-I, a $4.5 \times 10^{20} \text{ n m}^{-2}$ y a 77 K, en el Reactor RA-1-CNEA.

Nuevamente se grafica P (carga) vs T (°C). En la Fig. III. 6 se visualizan dos picos de recuperación ubicados en 284 °C y 305 °C respectivamente. La separación entre los mismos ocurre alrededor de 290 °C.

§ III. 3. 5 Comparación entre las Probetas Cu V-2, Cu V-8 y Cu V-1

a) En estas probetas se vuelve a confirmar la presencia de las Etapas Va (Cu V-2), Vb y Vc (Cu V-1 y Cu V-8).

b) Los porcentajes de recuperación obtenidos se presentan en la Tabla III. 6:

Probeta	T < 223 °C	Va	Vb	Vc	Va+Vb+Vc	Remanente
Cu V-2	~ 33.05 %	~ 8.4 %	3 %	23.72 %	35.12 %*	54.32 %
Cu V-8	~ 34 %	5 %	10 %	16 %	30 %	34.55 %
Cu V-1	~ 36	-	> 6 %	22.1 %	-	35.81 %
promedio	34.35 %	6.7 %	6.3 %	20.6 %	27.56 %	35.18 %

Tabla III. 6 Porcentajes de recuperación en las subetapas Va, Vb y Vc a partir del recuperado isócrono de las probetas Cu V-2, Cu V-8 y Cu V-1: *valor inferido a partir de suponer que el porcentaje remanente es similar al de las restantes probetas

De la Tabla III. 6 se deduce que:

a) La recuperación promedio de las Etapas Vb y Vc es comparable, siendo mayor el porcentaje de recuperación en la Etapa Vc.

b) Durante la Etapa V se recupera un 30 % del daño.

c) El porcentaje de endurecimiento remanente oscila alrededor del 35 %.

d) En las probetas V-1 y V-8, la Etapa Vc parece presentar una subestructura.

§ III. 3. 6. Comparación con las probetas anteriores

De las tres series de estudios realizados, la recuperación de la Etapa V presenta rasgos distintivos según las condiciones de irradiación. En el caso de irradiaciones a altas dosis y temperatura de reactor, al final de la Etapa V la TCRC_{77K} inicial se recupera totalmente. La irradiación a bajas dosis y temperatura representa una situación intermedia con respecto a la anterior y al caso de tener sumideros durante la irradiación. En este último caso los aglomerados son sumamente estables y dan un alto porcentaje de endurecimiento remanente

Los picos de recuperación observados ponen en evidencia la existencia de al menos tres procesos sucesivos en que se producen reacciones de defectos discernibles a partir de la recuperación de la propiedad mecánica utilizada en este trabajo.

§ III. 4 Cuarta Serie

§ III. 4. 1 Recuperado Isócrono correspondiente a la Etapa V de la TCRC_{77K} de la Probeta Cu-4 Irradiada con Neutrones a Bajas Dosis y Temperatura (involuntariamente calentada a temperatura ambiente)

Con el objetivo de determinar la energía de activación aparente de cada subetapa de la Etapa V, se crecieron e irradiaron a 77 K y a dosis por debajo de la de saturación, 12 monocristales de Cu

Debido a un imprevisto, finalizada la irradiación las probetas pasaron rápidamente de 77 K a temperatura ambiente, dentro del reactor. Permanecieron allí hasta su completo decaimiento, fueron limpiadas por inmersión en ácido nítrico diluido al 50 % y se repitieron las medidas de las secciones. Luego fueron almacenadas a temperatura ambiente, en vacío, durante 6 meses.

Las probetas en esta situación representan un caso diferente a los considerados previamente. Es decir el estado de los defectos al inicio de la Etapa V no tiene porqué coincidir con el correspondiente al de un recuperado gradual desde bajas temperaturas (Cu 26-2). Tampoco se puede asegurar que ese estado coincida con el generado a 77 K y mantenido a esta temperatura hasta el inicio de la Etapa V (Cu 32-1, Cu V-1, Cu V-2 y Cu V-8).

En consecuencia se realizó el recuperado isócrono con una de las probetas (cada 10 min y cada ~ 10 °C) con el fin de obtener la ubicación global de la Etapa V. Los datos experimentales de la probeta se muestran en la Tabla III. 7:

	Cu-4
Sección (A)	$10.27 \pm 0.236 \text{ mm}^2$ 2.29 %
Longitud entre cabezas (l)	30 mm
eje -plano (111) (χ°)	$58^\circ \pm 1^\circ$
eje-direcc. [101] (λ°)	$33^\circ \pm 1^\circ$
Factor de Schimdt	0.4462
$\tau^{\circ\circ}$	1.48 MPa
T_{irrad}	77 K
Dosis (Φt)	$4.5 \times 10^{20} \text{ n m}^{-2}$
τ°	12.16 MPa
$\Delta\tau^{\text{irrad}} = (\tau^\circ - \tau^{\circ\circ})$	10.68 MPa
% endur. x daño neutr. $[(\Delta\tau^{\text{irrad}} / \tau^{\circ\circ}) \times 100]$	721.6 %
Interv. de recup. isocr. (ΔT)	100-400 °C
τ^a fin de la recup.	5.276 MPa
% recup del daño $[(\tau^\circ - \tau^a) / \Delta\tau^{\text{irrad}}] \times 100$	50.6 %

Tabla III. 7 Datos experimentales de la Probeta Cu-4

El resultado se muestra en la Fig. III. 7:

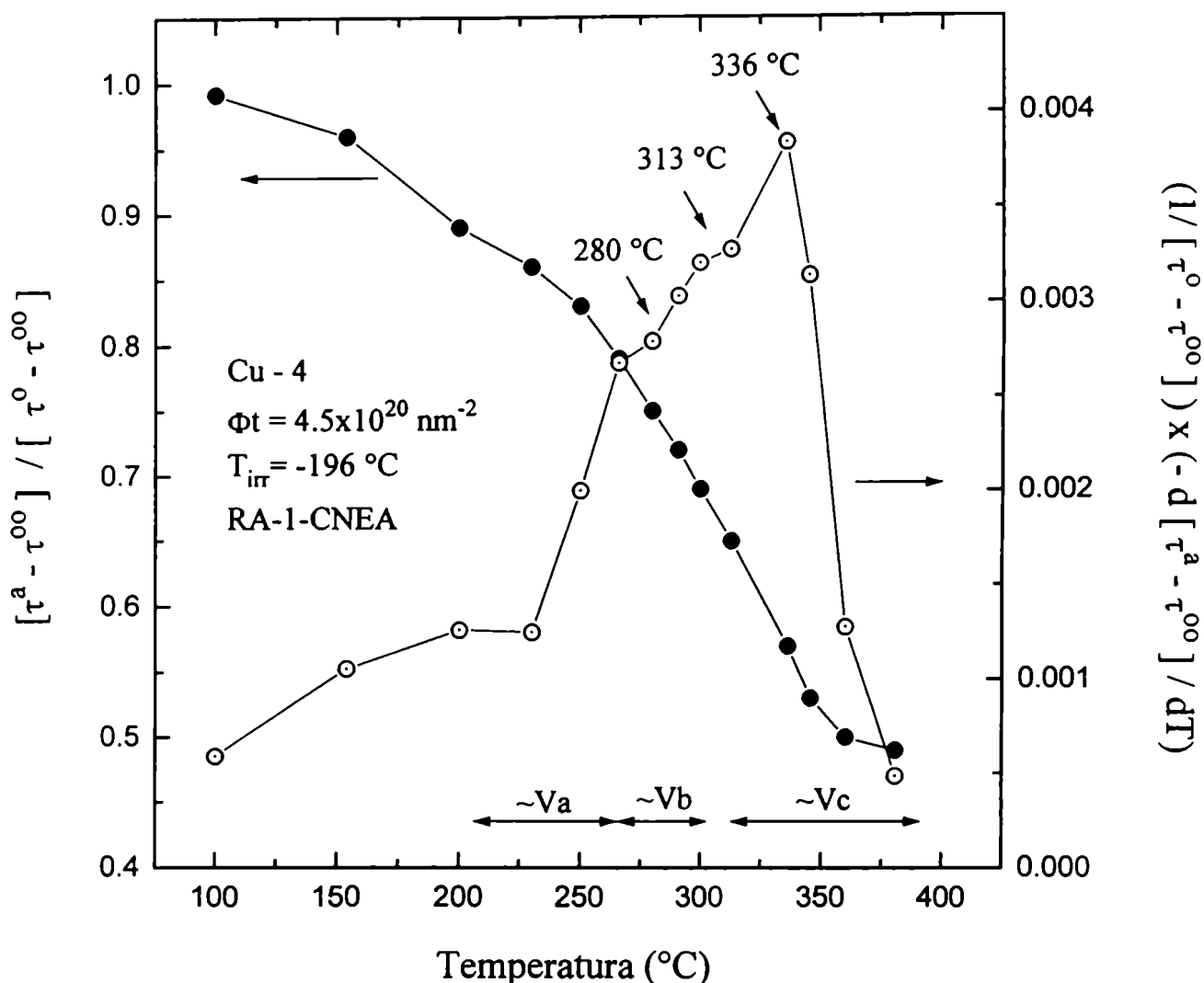


Fig. III. 7 Recuperado isócrono (10 min) del endurecimiento (eje de ordenadas a la izquierda, círculos oscuros) de la probeta Cu-4 irradiada con neutrones a $4.5 \times 10^{20} \text{ n m}^{-2}$ y a 77 K, en el Reactor RA-1-CNEA pero accidentalmente calentada a temperatura ambiente al finalizar la irradiación. Se adjunta el gráfico del módulo de la función derivada de la curva experimental (eje de ordenadas a la derecha, círculos claros).

En la misma se puede ver que:

- El intervalo de recuperación se extiende entre 230-380 °C. El mismo coincide con el obtenido para el Cu 26-1 y Cu 29-2.
- Nuevamente se observan asimetrías en el lado de baja temperatura del pico de recuperación de la Etapa V. No se realizaron medidas para determinar la subetapa Va. En el recuperado isócrono se puede distinguir un hombro ubicado a $\sim 250\text{-}290$ °C (Vb). La Etapa Vc parece estar, a su vez, subdivida en dos intervalos de temperatura: 290-325 °C y 325-380 °C respectivamente.

La Tabla III. 8 presenta el porcentaje de recuperación del endurecimiento, respecto al valor postirradiación a lo largo de la Etapa V a partir de la recuperación isócrona de la probeta Cu 4:

Probeta	100-274 °C	127-215 °C	215-253 °C	253-353 °C	T > 350 °C
Cu-4	2.4 %	10.1 %	6.5 %	29.5 %	51.5 %
	12.5 %		Va	Vb + Vc	

Tabla III. 8. Porcentajes de recuperación de la probeta Cu-4 a lo largo de la Etapa V, respecto al endurecimiento postirradiación.

En la misma se observa:

- a) La recuperación en el intervalo Va coincide con la correspondiente al de las probetas anteriores irradiadas en las mismas condiciones experimentales, pero mantenidas a 77 K.
- b) La recuperación dentro de la Etapa V corresponde a una situación intermedia entre las medidas de la Primera Serie y de la Tercera Serie.
- c) El endurecimiento remanente es igual al 50 %, al final de la Etapa V.

§ III. 4. 2 Los Recuperados Isotérmicos

El recuperado isócrono de la probeta Cu-4 presenta evidencias de la presencia de un proceso de recuperación dentro de la Etapa Vc, a ambos lados de 325 °C.

Se decidió profundizar en este aspecto de modo que se realizaron dos recuperados isotérmicos en 325 °C y a las siguientes temperaturas: 295, 305, 315, 335, 345 y 365 °C.

La Fig. III. 8 muestra los resultados obtenidos.

En la Fig. III. 8 la línea punteada corresponde al nivel de recuperación alcanzado por los recuperados isotérmicos a 365 °C y a 325, 335 y 345 °C para tiempos que superan los 1200 min. El endurecimiento remanente asociado al mismo es igual al 21 % del valor postirradiación.

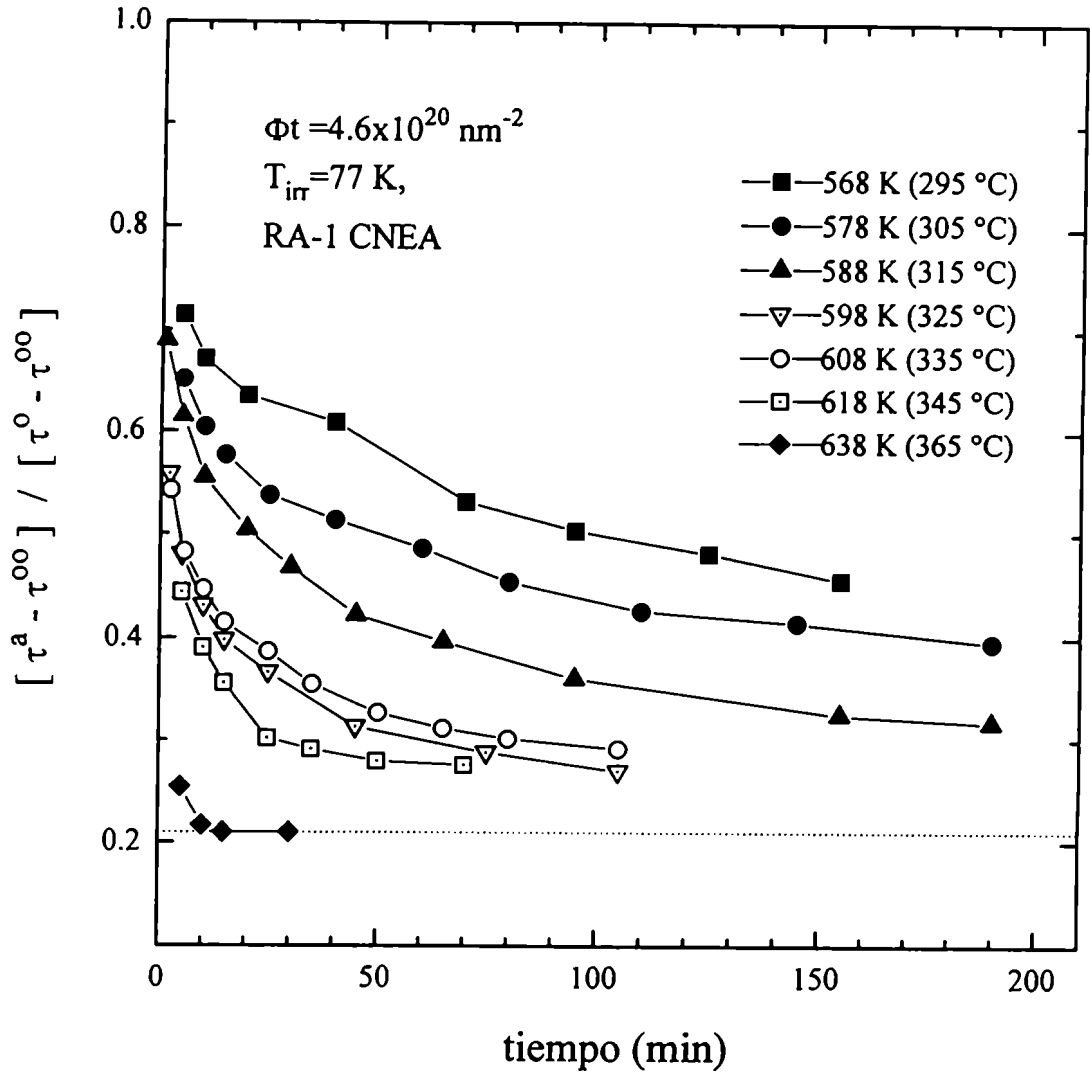


Fig. III. 8 Recuperados isotérmicos de las probetas crecidas en el laboratorio e irradiadas junto con la probeta Cu-4, a 77 K y a dosis por debajo de la de saturación, en el Reactor RA-1-CNEA. Las mismas se calentaron accidentalmente, a temperatura ambiente, al finalizar la irradiación.

§ III. 4. 2. 1 Determinación de la Energía de Activación Aparente de la Etapa Vc

Si se acepta en primera aproximación, que la disolución de los aglomerados de vacancias ocurrida durante la Etapa V es un proceso uniactivado, se puede estimar la energía de activación aparente § I.4.4.9.

El valor obtenido por este método, a partir de los recuperados isotérmicos 295, 305, 315, 325 y 345 °C, para cruces entre 0.44 y 0.40 de $\Delta\tau^a/\Delta\tau^{\text{irr}}$, fue de **2.20 eV (3%)**. Las rectas obtenidas se muestran en la Fig. III. 9.

La energía de activación para la autodifusión del Cu, obtenida a partir del promedio de varias medidas experimentales con distintas técnicas es de **1.98 eV** [5]. El valor obtenido es consistente con la migración de vacancias térmicas.

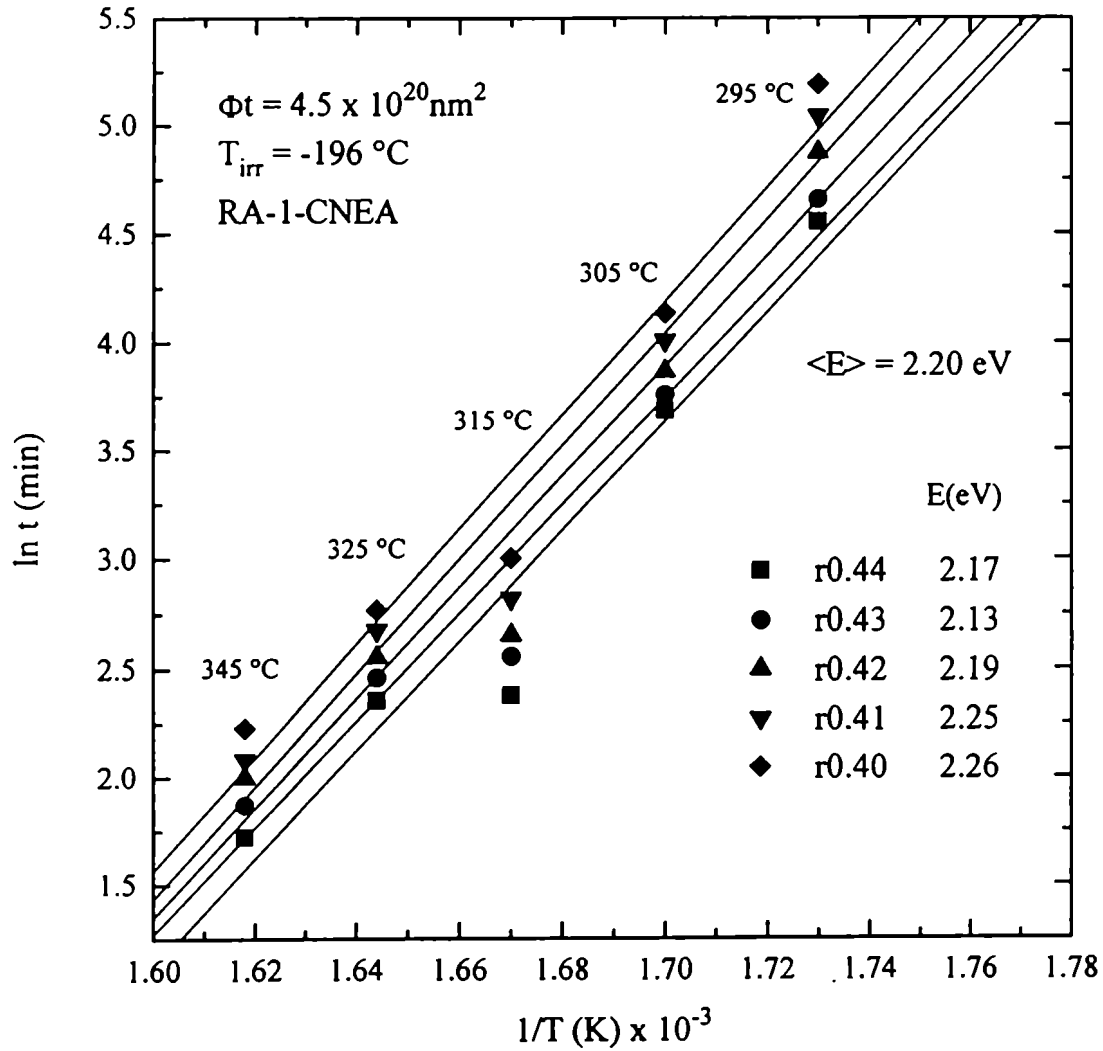


Fig. III. 9 Cálculo de la energía de activación aparente de la Etapa Vc, por el método de cruce, a partir del recuperado isotérmico de las 8 probetas irradiadas a $4.5 \times 10^{20} \text{ n m}^{-2}$ y a 77 K, junto a la Cu-4 y almacenadas a temperatura ambiente durante un periodo prolongado.

Otra forma de evaluar si en promedio la recuperación se puede pensar como un único proceso es mediante el siguiente análisis:

Si se acepta, como se hizo en el caso anterior, que a un nivel de recuperación dado corresponde la misma configuración de defectos y que la diferencia para llegar a ese nivel es simplemente el tiempo involucrado en una dada temperatura, se puede definir el tiempo equivalente como [6]:

$t' = t \exp(-E/kT)$, para el caso de los recuperados isotérmicos, y

$t'_n = t_c \sum \exp(-E/kT)$, para el recuperado isócrono, con $t_c = 10 \text{ min}$.

En este caso, y siempre que esté involucrada una misma energía de activación, se puede ajustar la recuperación en función de t' a una única curva que da cuenta del proceso. La Fig.

III. 10 se calculó a partir del recuperado isócrono de la probeta Cu 4 y de los recuperados isotérmicos a 295, 305, 315, 325, 335 y 345 °C, utilizando el valor obtenido de $E = 2.20$ eV.

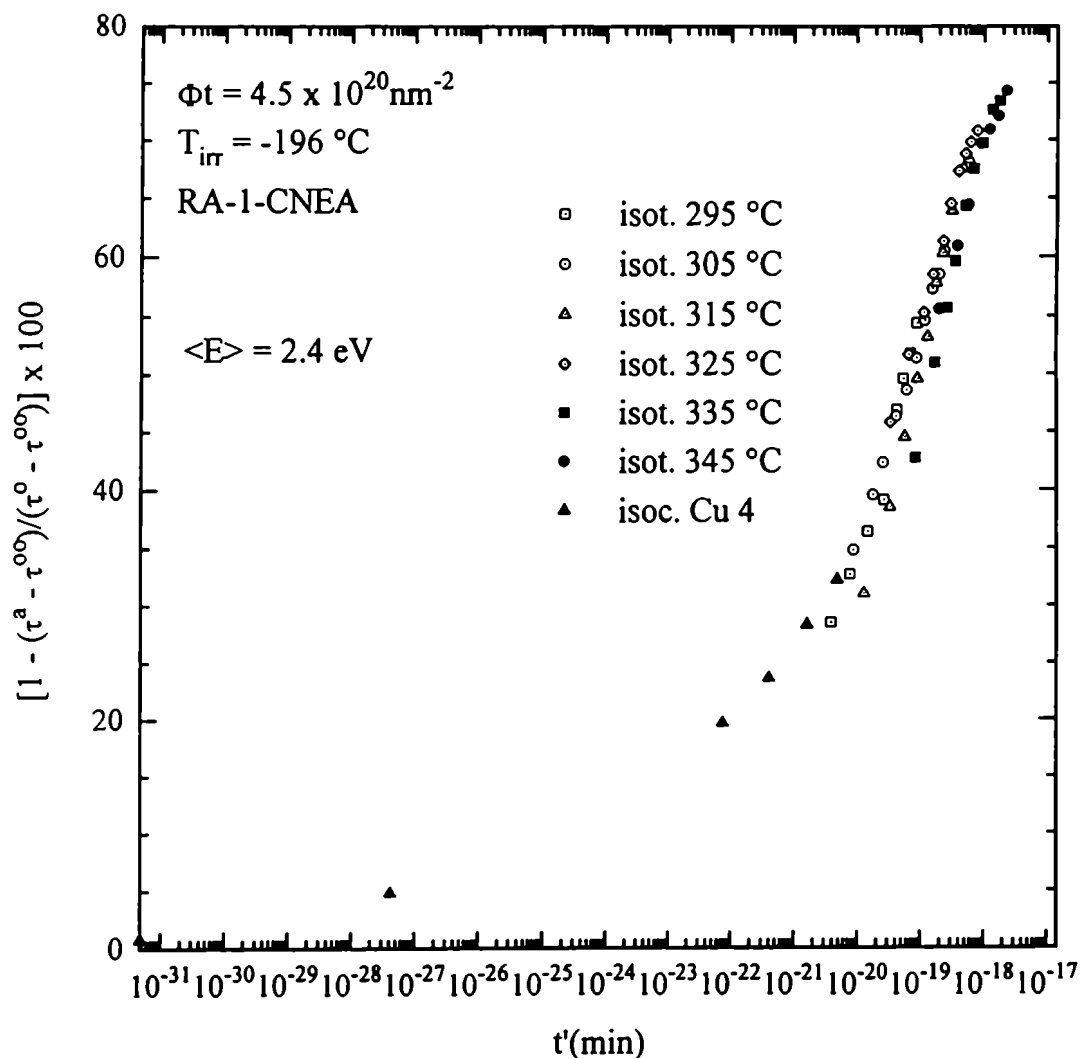


Fig. III. 10 Curva de recuperación de la TCRC_{77K} a lo largo de la Etapa Vc, obtenida a partir del recuperado isócrono de la probeta Cu-4 y de los recuperados isotérmicos de las 8 probetas irradiadas conjuntamente con la anterior, a 77K y a baja dosis, pero accidentalmente calentadas a 300 K.

Estas determinaciones de la energía de activación son sumamente fenomenológicas. Si se repite el cálculo de la energía de activación por el método de cruce separando a los recuperados isotérmicos en dos grupos alrededor de 325 °C se obtienen los siguientes resultados: La energía de activación a partir de los recuperados isotérmicos 335 y 345 °C con cortes entre 0.44 y 0.29 % (13 cortes) es igual a **1.83 eV**. Si se repite el cálculo para los isotérmicos 305 y 315 °C, con cortes entre 0.6 a 40 % (20 cortes) el valor obtenido es **2.4 eV**. Los resultados se muestran en la Fig. III. 11(a) y Fig. 11 III (b).

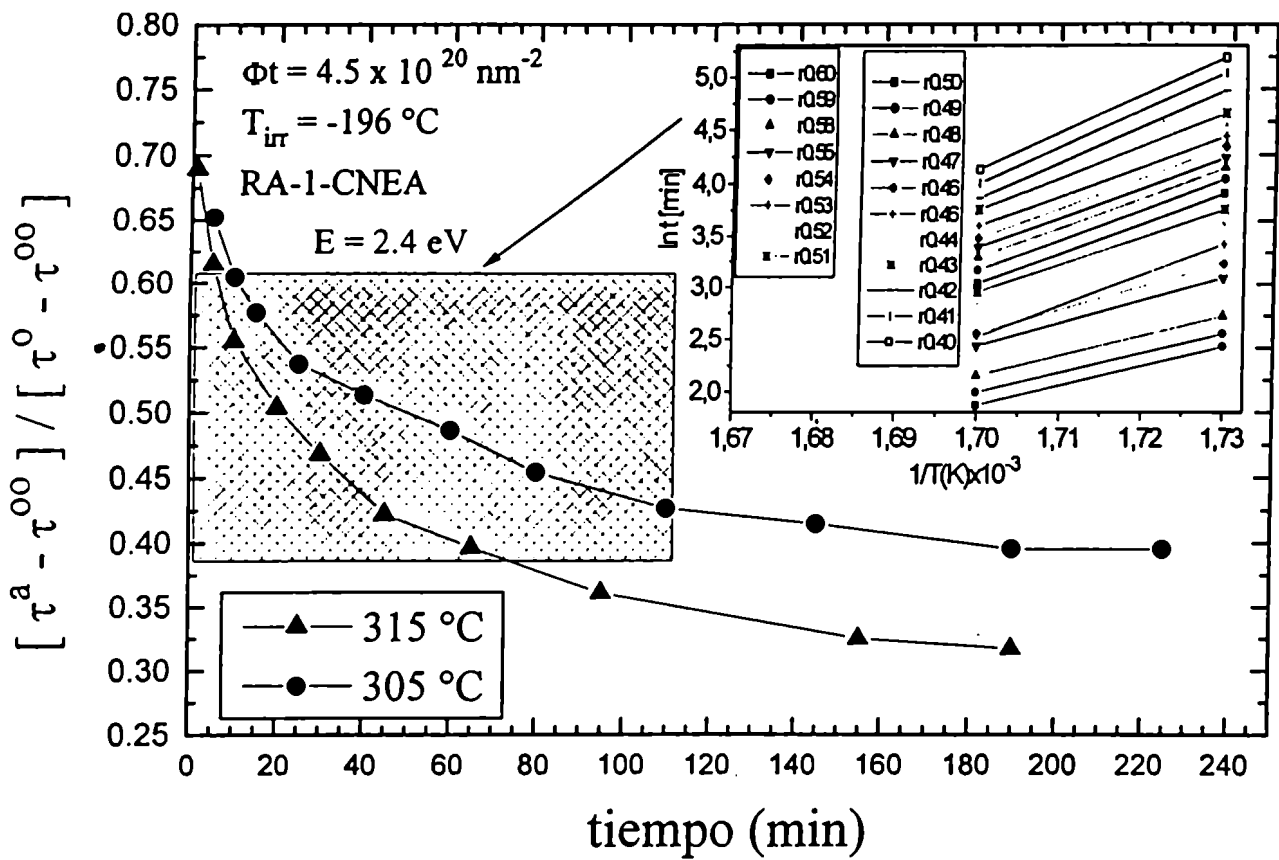


Fig. III. 11 (a) Cálculo de la energía de activación aparente de la Etapa Vc, por el método de cruce, a partir del recuperado isotérmico a 305 °C y a 315 °C de las 8 probetas irradiadas a 77 K y a $4.5 \times 10^{20} \text{ n m}^{-2}$, junto a la Cu-4 y almacenadas a temperatura ambiente durante un periodo prolongado.

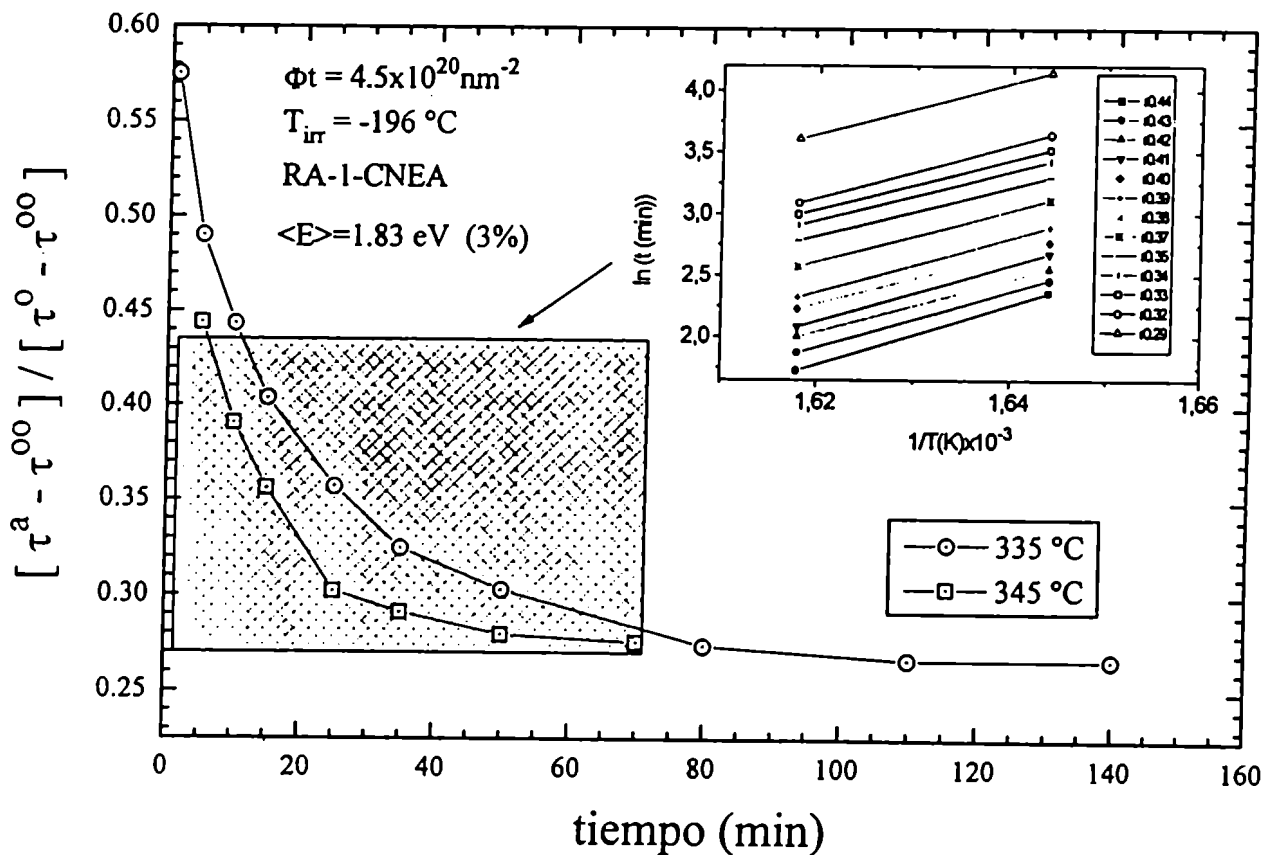


Fig. III. 11 (b) Cálculo de la energía de activación aparente de la Etapa Vc, por el método de cruce, a partir del recuperado isotérmico a 335 °C y a 345 °C de las 8 probetas irradiadas a 77 K y a $4.5 \times 10^{20} \text{ n m}^{-2}$, junto a la Cu 4 y almacenadas a temperatura ambiente durante un periodo prolongado.

Con el objetivo de lograr un mayor esclarecimiento acerca de esta posible subdivisión de la Etapa Vc, a partir de los isotérmicos, se realizó el siguiente análisis. El endurecimiento por irradiación es proporcional a la raíz cuadrada de la densidad planar de obstáculos, según se expresa en la Ec. I. 3. 18. De modo que, si se supone que los aglomerados son de un diámetro medio, d , luego, $[(\tau^a - \tau^{00}) / (\tau^0 - \tau^{00})]^2$ es proporcional a Nd . De este modo podemos obtener una representación gráfica, Fig. III. 12, del decaimiento de la densidad de obstáculos en función de la temperatura. El procedimiento es análogo al usado por los microscopistas cuando realizan el

recuperado térmico de los aglomerados de defectos en una misma hojuela. Aquí las probetas se consideran idénticas, y cada observación se realiza en una probeta distinta.

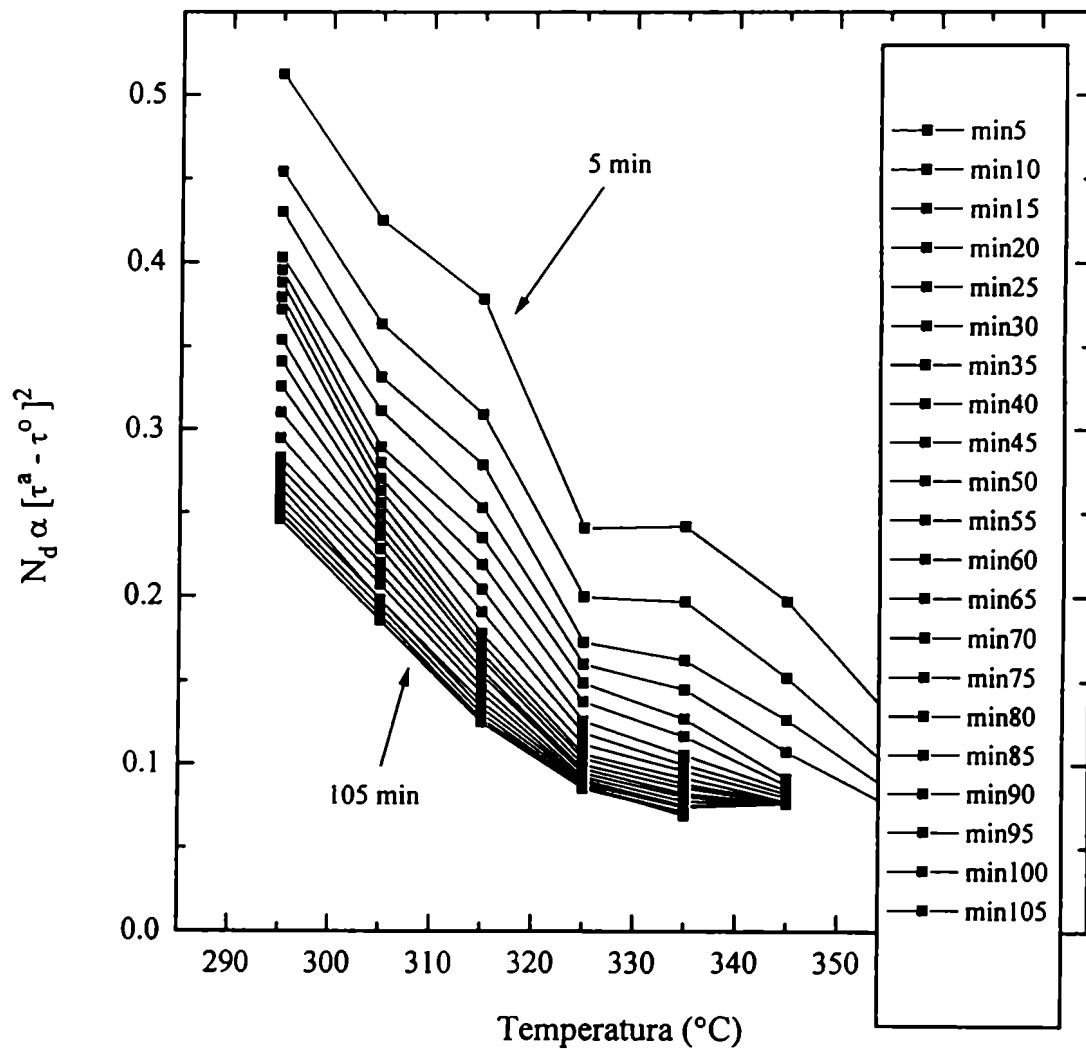


Fig. III. 12 Decaimiento de la densidad planar de obstáculos con la temperatura a lo largo de la Etapa Vc.

En la misma se puede ver la presencia de dos procesos separados por un plateau que comienza en 325 °C y se diluye a medida que aumenta el tiempo de exposición a cada temperatura .

§ III. 1 Quinta Serie

§ III. 5. Recuperado Isócrono correspondiente a la Etapa V de la TCRC_{77K} de la Probeta Zn 8-2, Irradiada con Neutrones a Baja Dosis y Temperatura

En forma análoga a lo realizado en las probetas de cobre y para establecer comparaciones con un metal hexagonal, se irradió a baja temperatura y dosis un monocristal de zinc.

El objetivo fue repetir las medidas previamente realizadas por el grupo D×R-CNEA [1] en torno a la Etapa V de recuperación de la TCRC_{77K} en este metal, pero con medidas menos espaciadas en temperatura. El Zn presenta similitudes con el Cu respecto al daño formado por irradiación neutrónica, de modo que era esperable la existencia de una subestructura dentro de la Etapa V, aún no observada.

La probeta utilizada fue el monocristal **Zn 8-2**, de alta pureza y baja tensión de fluencia inicial. Las características de la probeta Zn 8-2 se encuentran resumidas en la Tabla III. 9:

	Zn 8-2
Sección (A)	$7.21 \pm 0.176 \text{ mm}^2$ ($\delta = 2.4 \%$)
Longitud entre cabezas (l)	$30.64 \pm 0.1 \text{ mm}$
eje -plano (111) (χ°)	$67^\circ \pm 1^\circ$
eje-direcc. [101] (λ°)	$23^\circ \pm 1^\circ$
Factor de Schimdt	0.455
$\tau^{\circ\circ}$	23.322 g/mm^2
T_{irrad}	77 K
Dosis (Φt)	$9.3 \times 10^{19} \text{ n m}^{-2}$
τ°	492.2 g/mm^2
$\Delta\tau^{\text{irrad}} = (\tau^\circ - \tau^{\circ\circ})$	468.88 g/mm^2
% endur. x daño neutr. [($\Delta\tau^{\text{irrad}} / \tau^{\circ\circ}$) $\times$ 100]	2010.45 %
Interv. de recup. isocr. (ΔT)	160-230 K
τ^a fin de la recup.	108.49 g/mm^2
% recup del daño [($\tau^\circ - \tau^a$) / $\Delta\tau^{\text{irrad}}$] $\times$ 100	82 %

Tabla III. 9 Características de la probeta Zn 8-2.

El resultado del recuperado isócrono (10 min) desde 160 K se muestra en la Fig. III.

13.

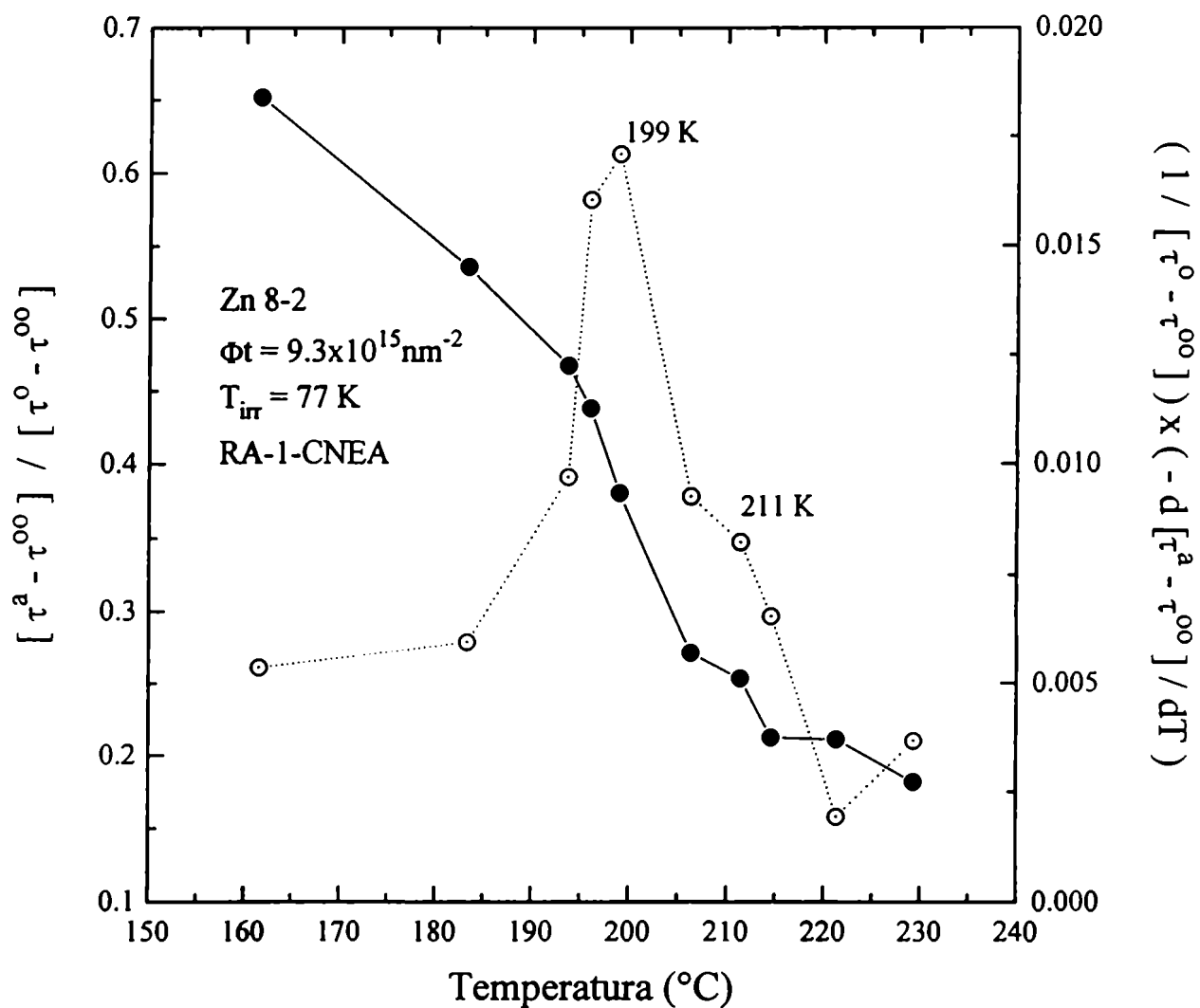


Fig. III. 13 Recuperado isócrono (10 min) del endurecimiento de la probeta Zn 8-2 irradiada a bajas dosis y temperatura (eje de coordenadas a la izquierda, círculos oscuros) y módulo de la función derivada (eje de coordenadas a la derecha, círculos claros).

Se puede observar:

- La presencia de un pico de temperatura alrededor de 190 K y un hombro en $\sim 205 \text{ K}$.
- El porcentaje de recuperación a lo largo de la Etapa V fue 82 %.
- El endurecimiento remanente es de 20 % respecto al valor sin irradiar.

REFERENCIAS

- [1] H. C. González, C. J. Iriart, "The recovery of zinc after fast-neutron irradiation at low doses in liquid nitrogen", *Phil. Mag. A* **54**, 441, 1986.
- [2] T. H. Blewitt, "Low-Temperature Irradiation Studies", *Proc. XXIIIth Summer School 'Enrico Fermi', Radiation Damage in Solids*, N. Y., Academic Press, 630, 1962.
- [3] H. C. González, E. A. Bisogni, "Radiation Hardening at 77 K in Zn and Cu Single Crystals at Low Doses", *phys. stat. sol. (a)* **62**, 351, 1980.
- [4] H. C. González, "Hardening of Single Crystals of Magnesium by Low Neutron Doses at 77 K", *phys. stat. sol. (a)* **86**, 169, 1984.
- [5] Landølt-Börnstein, "Zahlenwertw und Funktionen aus Naturwissenschaften und Technik", Band 25: Atomare Fehlstellen in Metallen; H. Ullmaier, Spring Verlag, Berlin, p. 233, 1994
- [6] J. W. Corbett, R. B. Smith, R. M. Walker, "Recovery of Electron-Irradiated Copper. II. Interstitial Migration", *Phys. Rev.* **114**, 1460, 1959.

Cuarta Parte

Discusión de los Resultados Experimentales

§ IV. DISCUSIÓN DE LOS RESULTADOS EXPERIMENTALES

La Etapa V de recuperación de la Tensión Crítica Resuelta de Corte, medida a 77 K, en monocristales de Cu, se ubica entre $\sim 220\text{-}380\text{ }^{\circ}\text{C}$ ($\sim 500\text{-}700\text{ K}$), para las irradiaciones con neutrones de fisión a dosis por encima de la saturación ($\phi t > 4.5 \times 10^{20}\text{ n m}^{-2}$) y temperatura de reactor ($\sim 80\text{ }^{\circ}\text{C} = 350\text{ K}$), (probetas Cu 29-2 y Cu 26-1).

Este intervalo de recuperación es coincidente con el determinado a partir del recuperado isócrono de los aglomerados de defectos observados por MET en especímenes pre-adelgazados irradiados con neutrones de fisión a 350 K y $2.7 \times 10^{21}\text{ n m}^{-2}$ [1] que se muestran en la Fig. IV.1:

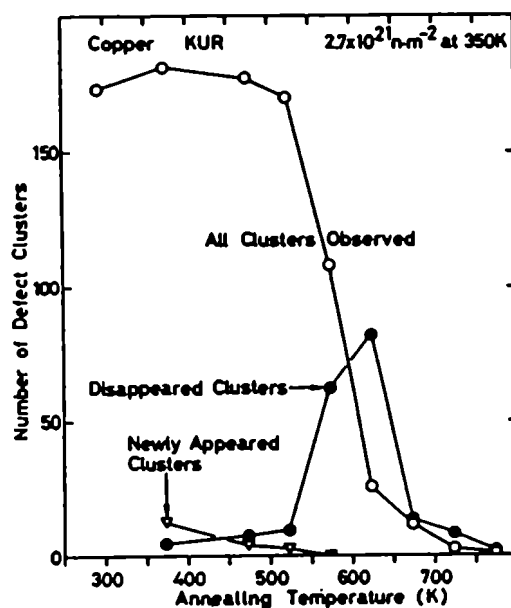


Fig. IV. 1 Recuperado isócrono por MET, en Cu irradiado con neutrones de fisión a $2.7 \times 10^{21}\text{ n m}^{-2}$ y a 350 K [1].

En este intervalo se observó la desaparición simultánea de los aglomerados de vacancias y de intersticiales causada por la liberación y la absorción de vacancias térmicas respectivamente.

El centro de la Etapa V en las probetas Cu 29-2 y Cu 26-1 se encuentra a $\sim 314\text{ }^{\circ}\text{C}$ ($\sim 587\text{ K}$). Este valor de temperatura tiene un corrimiento de catorce grados hacia el lado de las altas temperaturas, con respecto al centro del pico de recuperación de aglomerados, como se muestra en la Fig. IV.1 ($\sim 573\text{ K}$).

Este hecho ya es un nuevo ejemplo de la fuerte dependencia con la dosis de la Etapa V en Cu puesta en evidencia mediante la recuperación de la $TCRC_{77K}$ en las condiciones experimentales elegidas para el presente trabajo.

Las probetas de tracción mencionadas, al igual que las hojuelas analizadas en [1], fueron irradiadas a dosis superiores a la de saturación en Cu. En particular, las del presente trabajo fueron irradiadas a dosis un orden de magnitud mayor que aquellas. El corrimiento del centro de la Etapa es consecuencia de la mayor densidad de aglomerados de defectos, especialmente de tipo vacancia, introducida durante la irradiación neutrónica.

En las probeta Cu 29-2 se observó el primer indicio de la posible existencia de un proceso de recuperación alrededor de $230\text{ }^{\circ}\text{C}$ ($\sim 500\text{ K}$) que fue tomado con cautela debido a que sólo se contaba con tres puntos experimentales.

Un programa de recuperado isócrono cada 3 K y 10 min en Cu irradiado a baja dosis y a 77 K (§ III. 2), permitió poner en evidencia la existencia de al menos tres procesos de disolución de los aglomerados de defectos a lo largo de la Etapa V, que se denominaron Va, Vb y Vc (Cu 32-1) situados entre $\sim 200\text{-}250\text{ }^{\circ}\text{C}$, $\sim 250\text{-}290\text{ }^{\circ}\text{C}$ y $\sim 290\text{-}325\text{ }^{\circ}\text{C}$ respectivamente.

- *La subetapa Va*

En la Fig. IV.1 se observa que en el intervalo ubicado entre 373-523 K ($100\text{-}250\text{ }^{\circ}\text{C}$), es decir, en el que se encuentra *la subetapa Va*, se produce la aparición de aglomerados de vacancias de pequeño tamaño los cuales crecieron a partir de un tamaño submicroscópico a temperaturas por encima de la Etapa III y los que desaparecen completamente a temperaturas superiores a 573 K ($\sim 300\text{ }^{\circ}\text{C}$). Este intervalo de recuperación coincide con el mostrado en la Fig. I. 4. 13 (b) [2] correspondiente al recuperado isócrono de la resistividad eléctrica en *Cu irradiado con electrones* que se extiende hasta 600 K.

A partir de la comparación de ambos trabajos es evidente que los aglomerados de vacancias que se recuperan por encima de 600 K se originaron en las cascadas de desplazamientos atómicos, ausentes en el caso de la irradiación con electrones, y que en el intervalo ocupado por la subetapa Va tiene lugar un bajo porcentaje de recuperación (8 %) asociado a los aglomerados de vacancias nucleados a temperaturas por encima de la Etapa III y con una menor estabilidad térmica que los originados en las zonas diluidas.

El seguimiento de la correlación angular perturbada de fotones γ , PAC, durante el recuperado isócrono de monocritales (99.999 %), dopados con ^{111}In e irradiados con protones ($1 \times 10^{15}\text{ p/cm}^2$) a 8 K, permitió identificar dos tipos de defectos en el intervalo de temperatura de la Etapa V [3,4].

Esta técnica ha permitido observar la naturaleza y dinámica de los defectos puntuales que migran a la misma temperatura.

La Fig. IV. 2 muestra los seis diferentes complejos “defecto ^{111}In ” en Cu asociados a las Etapas I, III y V respectivamente [3,4]. Los complejos se distinguen por los parámetros v_0 (constante de acople cuadrupolar) y el parámetro de asimetría η .

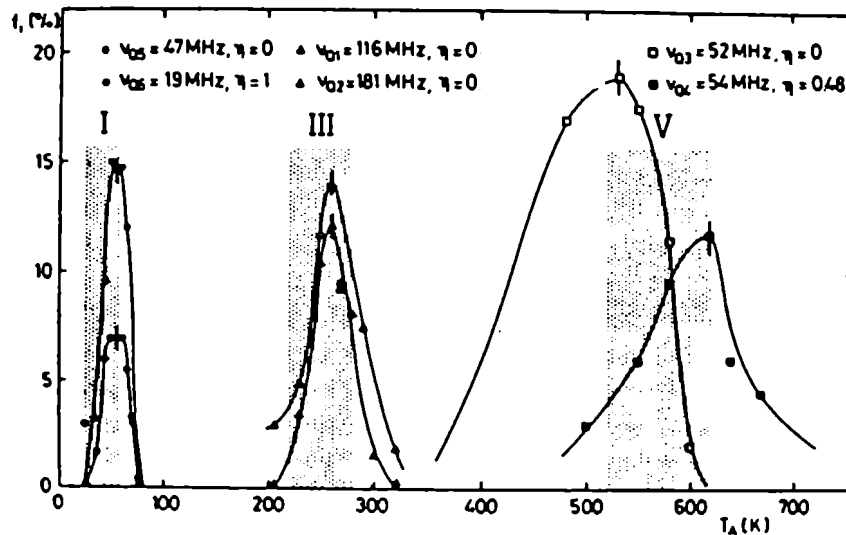


Fig. IV. 2 Complejos “defecto ^{111}In ” en Cu irradiado observados por PAC. Los complejos se distinguen por sus parámetros característicos ν_0 y η . Se grafica la población de los diferentes complejos f_i en función de la temperatura de recocido (T_A). Las áreas punteadas indican las posiciones de las etapas de recuperación de los defectos correspondientes [3].

La configuración de defectos $\nu_{03} = 52 \text{ MHz}$ y $\eta = 0$ se asocia con *anillos de defectos sobre los planos $\{111\}$, cuyo máximo se encuentra alrededor de 250°C (525 K)*. Estos defectos extendidos se forman por el reiterado atrape de vacancias en los sitios con ^{111}In . El proceso de aglomeración en Cu, según los resultados de esta técnica, sería el descrito en la Fig. IV. 3:

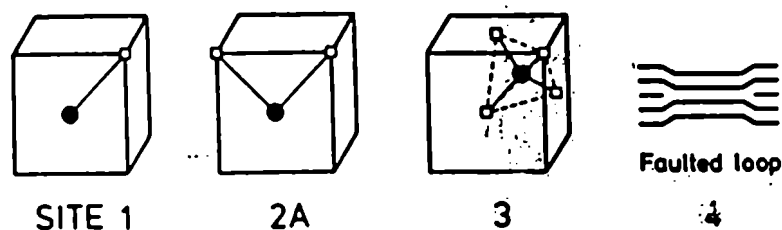


Fig. IV. 3 Crecimiento de complejos vacancia- ^{111}In en Cu modelado a partir de lo observado por PAC y por canalización de iones. Las vacancias y los átomos ^{111}In se representan con cuadrados y círculos respectivamente. Se desconoce el número de vacancias necesario para transformar la configuración 3 a la 4 [3].

El complejo caracterizado por $\nu_{03} = 54 \text{ MHz}$ y $\eta = 0.48$ *no ha sido identificado* el mismo aparece cuando se irradia a dosis altas con iones pesados.

El pico encontrado alrededor de 227°C (500 K) en el Cu V-2 y en el Cu 32-1 e insinuado en el Cu 29-1, coincide con el correspondiente al máximo de los aglomerados de defectos colapsados sobre planos $\{111\}$.

De este modo, a partir de los trabajos presentados, la recuperación de la subetapa Va puede ser el resultado de un cambio en la configuración espacial -de tridimensional a bidimensional- de los aglomerados de vacancias que han crecido a partir de aglomerados submicroscópicos durante el proceso de recuperación térmica a temperaturas por encima de la Etapa III. La densidad de estos aglomerados es muy pequeña comparada con la de los aglomerados de vacancias formados a partir de la recombinación de defectos en las zonas desnudas originadas en las cascadas de desplazamientos atómicos durante la irradiación neutrónica

- *Las subetapas Vb y Vc*

Dentro del intervalo 250-350 °C, se observaron *las subetapas Vb (~ 250 - 290 °C) y Vc (~ 290 - 350 °C)* (Cu Tercera Serie).

De los datos aportados por MET ya presentados [1] surge que durante la *Etapa Vb* se observa *la desaparición* simultánea de aglomerados de intersticiales y de vacancias mientras que, a partir de 350 °C, sólo se observa la disolución de los aglomerados de naturaleza vacancia más estables.

La temperatura a la que se encuentra el centro de cada una de estas subetapas en las probetas Cu V-8 y Cu V-2 se haya desplazada hacia el lado de las altas temperaturas respecto a la determinada en la probeta Cu 32-1.

Nuevamente este hecho pone en evidencia que el origen de los defectos que se recuperan térmicamente a lo largo de estas subetapas se puede asociar a los defectos producidos durante la irradiación ya que las tres probetas fueron irradiadas a dosis similares y a 77 K, pero la última presentaba sumideros debido a que no fue recocida a la temperatura requerida para eliminar todos los aglomerados presentes en la misma favoreciendo la recuperación de los defectos durante la irradiación. Este corrimiento del centro de la Etapa en el sentido de las bajas temperaturas es similar al ocurrido en la Etapa III, el cual al igual que el corrimiento en la Etapa V, es fuertemente dependiente de la dosis.

La temperatura que separa a las subetapas Vb y Vc, es ~ 290 °C en ambas probetas. A esta temperatura en Cu se produce *el mayor atrape de positrones* [2].

La Fig.IV. 4 muestra el recuperado térmico a las temperaturas de la Etapa V medido por aniquilación de positrones, PAC, y por dispersión difusa de rayos X en Cu irradiado con neutrones a 320 K.

El máximo de recuperación se encuentra alrededor de 287 °C (560 K) temperatura a la que se encontró el máximo de recuperación de la Etapa V en la probeta Cu 26-2. A esta temperatura se produce la máxima disociación de los aglomerados de vacancias en aglomerados de menor tamaño o en monovacancias.

Luego se puede asociar la subetapa Vb con la disolución simultánea de aglomerados de vacancias y de intersticiales. Estos últimos, y siempre a partir de estudios por MET, se presentan en menor densidad y son de mayor tamaño [6]. La subetapa Vc estaría asociada primariamente a la disolución de aglomerados de vacancias.

]

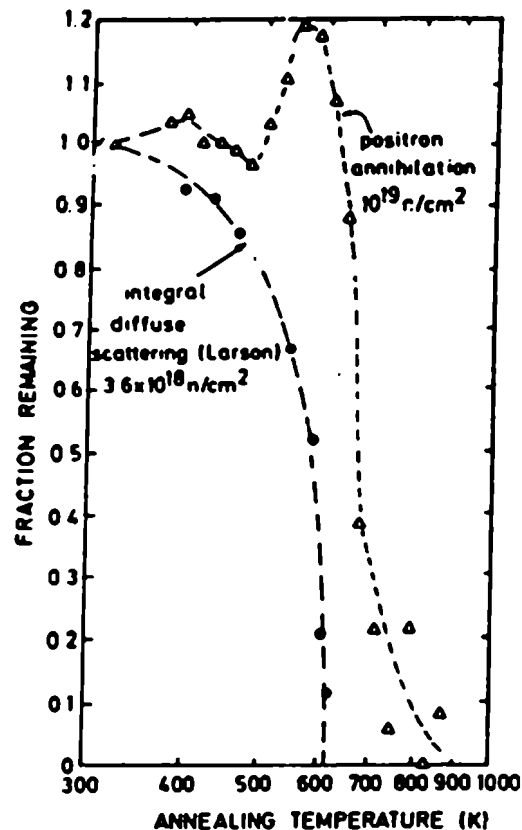


Fig. IV. 4 Recuperado térmico característico en monocritales de Cu irradiados con neutrones rápidos a 320 K, medido por aniquilación de positrones y por dispersión difusa de rayos X [5].

- **Evidencia de Subestructura de la Etapa Vc**

Todos estos estudios ponen de relieve la gran sensibilidad de la TCRC_{77K} a las reacciones entre los defectos ocurridas en el intervalo de temperatura de la Etapa V.

En particular, para las probetas que fueron irradiadas a bajas dosis y temperatura que involuntariamente se calentaron desde 77 K hasta la temperatura ambiente (Cuarta Serie), el resultado fue la aparición de un hombro en la Etapa Vc alrededor de ~ 313 °C.

Este tipo de comportamiento es similar al encontrado durante la recuperación térmica (300-600 °C) de aglomerados creados por neutrones de fisión (3.1×10^{20} n cm⁻², 60 °C) en Cu dopado con pocas ppm de Be (0.001 % en peso) [7], que se muestra en la Fig. IV. 5.

Si bien las condiciones de irradiación son diferentes, se observa un rápido decrecimiento entre 350-450 °C, en donde aumenta sensiblemente el radio medio de los aglomerados, para permanecer constante hasta ~ 500 °C y comenzar un nuevo proceso de recuperación, en el que se produce el decrecimiento de los aglomerados y de las fallas de apilamiento tetrahédricas que son más estables que los lazos de dislocaciones.

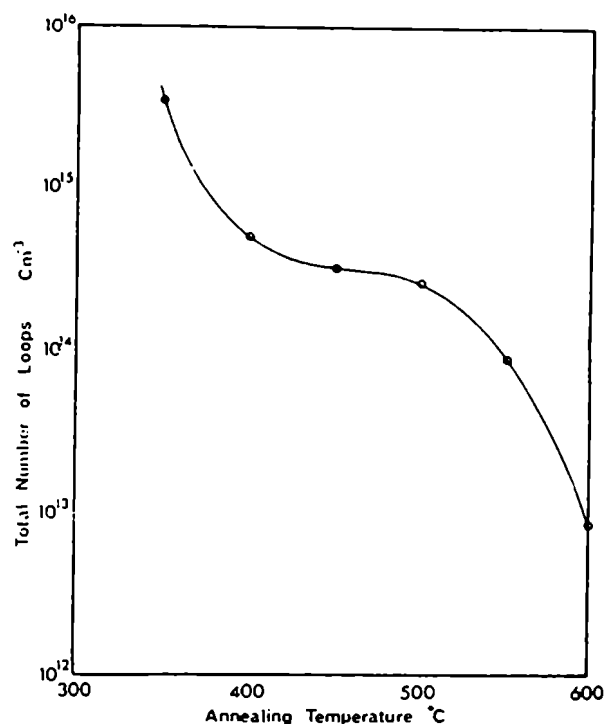


Fig. IV. 5 Representacion gráfica de la variación de la concentracion total de aglomerados con la temperatura de recocido, para una aleación diluida de Cu-Be [7].

La Fig. III. 12 muestra un comportamiento similar, se puede observar que el plateau comienza en 325 °C.

Los resultados experimentales de esta Serie sólo se han podido comparar con los obtenidos por MET en Au irradiado con neutrones de 14 MeV a $6.8 \times 10^{19} \text{ n m}^{-2}$ y a 20 K pero dejados a 300 K durante más de medio año [8]. Las similitudes encontradas en estudios comparativos entre Au irradiado a baja temperatura con neutrones de 14 MeV y Cu irradiado a baja temperatura con neutrones de fisión y de 14 MeV, legitima esta comparación [1,8,9].

En la Fig. IV. 6 se muestra el recuperado isócrono de la Etapa V por MET, en Au irradiado con neutrones de 14 MeV a $6.8 \times 10^{19} \text{ n m}^{-2}$ a 20 K [8].

El recuperado térmico de los aglomerados de vacancias presenta un pico de recuperación a 280 °C, el inicio de un hombro a partir de 327 °C y un segundo pico de recuperación centrado en 377 °C. Este comportamiento coincide con el observado en el espectro de recuperación de la probeta Cu 4 de la Cuarta Serie.

Con respecto a la disolución de aglomerados de intersticiales que también se muestra en la Fig. IV. 6 se puede notar que aparece un pico de recuperación alrededor de 227 °C, que se extiende en el intervalo de temperatura ocupado por las Etapas Va y Vb del presente trabajo, mientras que la Etapa Vc se puede asociar completamente a la disolución de aglomerados de vacancias. Cabe recordar que la energía de autodifusión del Au, 1.76 eV, es menor que la del Cu, 2.2 eV [10].

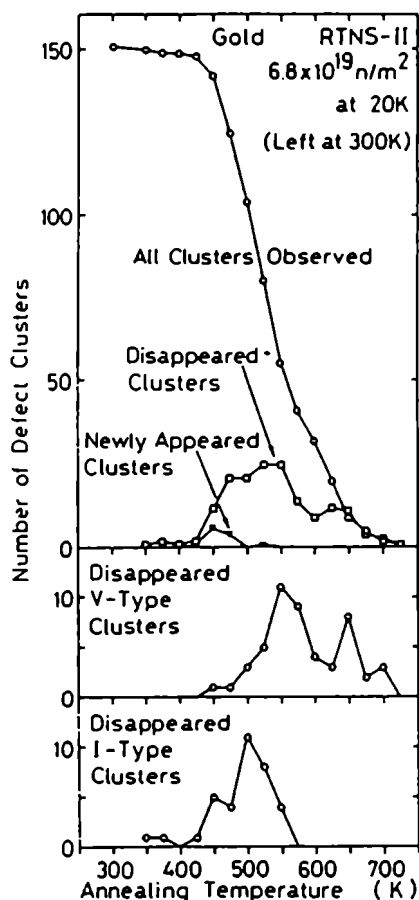


Fig. IV. 6 Resultados del recuperado isócrono en Au irradiado con neutrones de 14 MeV a $6.8 \times 10^{19} \text{ n m}^{-2}$ a 20 K. Este espécimen fue dejado a 300 K durante más de medio año [8].

En probetas de Cu irradiadas con neutrones de fisión a bajas dosis y temperatura que involuntariamente alcanzaron la temperatura ambiente, se observa la aparición -en el intervalo entre 325 °C y 360 ° C- de un nuevo proceso de recuperación que, a partir de lo discutido, se lo puede asociar a la disolución de aglomerados de vacancias.

- **Deteminación fenomenológica de la energía de activación**

La energía de activación calculada en forma fenomenológica a partir de recuperados isotérmicos desde 295 °C hasta 365 °C, en las probetas de la Cuarta Serie, arrojó el valor global de **2.20 eV** para la recuperación de la Etapa Vc. Este resultado coincide con las determinaciones previas presentadas en III. 4. 2. 1, es idéntico al valor de autodifusión utilizado en Ref. 1 y es mayor que 1.98 eV, valor de la energía de activación obtenido al promediar las diferentes medidas realizadas en Cu por distintas técnicas [10].

Utilizando los recuperados isotérmicos a 305 °C y a 315 °C se calculó fenomenológicamente el valor de 2.4 eV para la energía de activación asociada al intervalo 295-325 °C, Fig. III. 11. (a). Análogamente con los recuperados isotérmicos a 335 °C y a 345

°C. se obtuvo el valor de 1.83 eV para la correspondiente a procesos asociados a $T > 325$ °C, Fig. III. 11. (b).

El primer valor está incluido en el intervalo de energías de activación dado por Blewitt y col. [11]: 2 a 2.5 eV, utilizando la misma técnica y el mismo método de cálculo. Las determinaciones se realizaron en monocristales de Cu irradiados a temperatura ambiente y a dosis por encima de la de saturación, una de las cuales se muestra en la Fig. I. 4. 15.

Debido a la falta de paralelismo entre las rectas obtenidas, Blewitt y col. sugirieron que el proceso debía ser multiactivado con energías crecientes a medida que se avanza en la Etapa.

Makin y col. [12], repitieron el estudio eligiendo las mismas temperaturas de recuperación y condiciones de irradiación que Blewitt y col. Los resultados se muestran en la Fig. IV. 7:

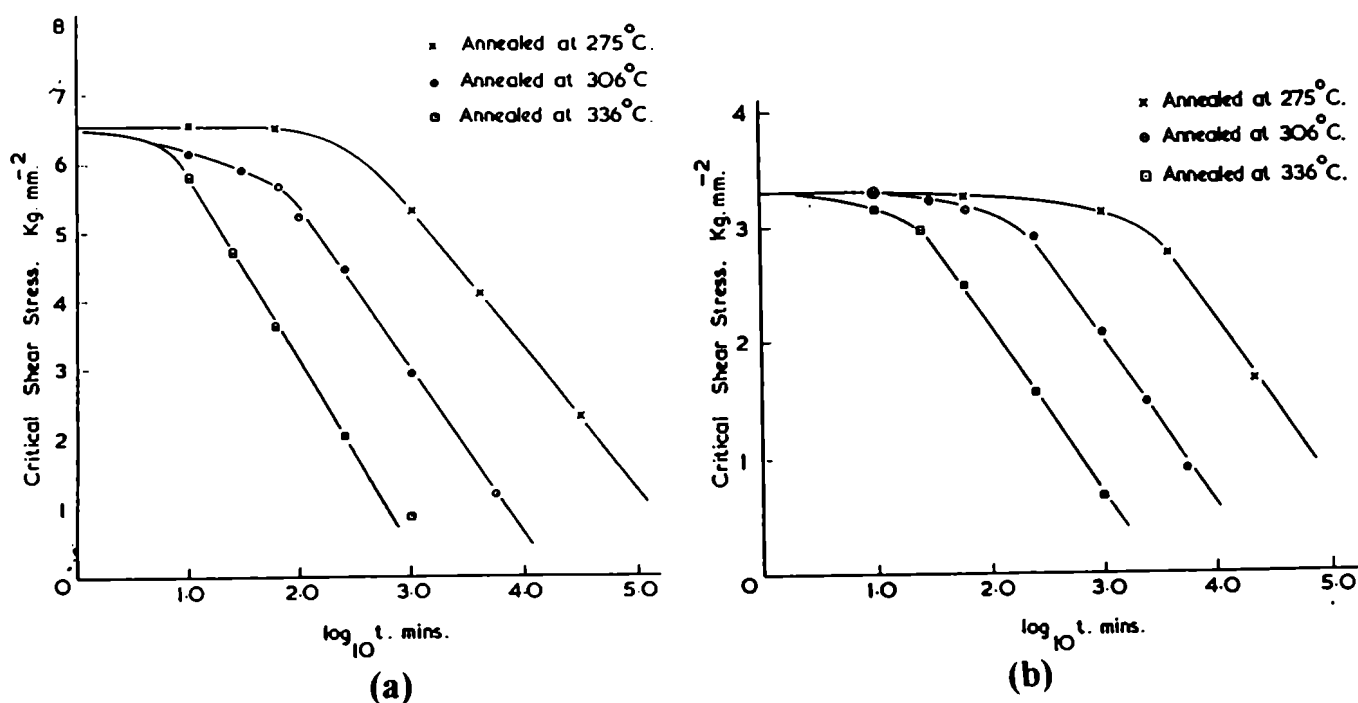


Fig. IV. 7 Recuperado Isotérmico de la TCRC a 275, 306 y 336 °C en Cu irradiado a 27 °C y $\phi t = 2.5 \times 10^{18}$ n cm⁻²: (a) para deformaciones a temperatura ambiente; (b) a 77 K [12].

Los valores de la energía de activación medidos se muestran en la Tabla IV.1

TCRC (Kg mm ⁻²)	E (eV) a 195°C	E (eV) a 20°C
6.0	1.8	-
5.0	1.9	-
4.0	2.0	-
3.0	2.2	2.2
2.0	2.3	2.2
1.0	2.5	2.2

Tabla IV. 1 Energías de activación a partir de la recuperación de la TCRC en Cu [12].

El resultado se opone al de Blewitt y col., es decir, al deformar a 20 °C Makin y col. obtuvieron un proceso uniactivado, con una energía de activación cuyo valor coincide con la

medida en el presente trabajo, pero al deformar a 77 K obtuvieron energías de activación crecientes.

A partir de los resultados obtenidos en este Trabajo de Tesis, es indudable que a lo largo de la Etapa V se suceden y se superponen diferentes procesos, discernibles en las condiciones experimentales elegidas utilizando la TCRC para el estudio de la disolución de los aglomerados de defecto creados por irradiación neutrónica. La aproximación de un proceso uniactivado sólo permite conocer el valor promedio de la energía de activación global de la etapa.

El valor de la energía de activación para los procesos a $T > 325$ °C -obtenida por el método de cruce- de 1.83 eV debe ser revisado, ya que se esperaría un valor mayor a 2.4 eV. Pero no deja de ser curioso que en cinc la determinación -por esta técnica y en las mismas condiciones experimentales que las del presente trabajo- de la energía de activación asociada a la Etapa V, también arrojó un valor algo menor que el esperado [13].

La reelaboración de los datos experimentales de los recuperados isotérmicos realizada en este trabajo a partir de postular un espectro de energías de activación [14-18], no incluida en esta discusión, reconfirma todo lo analizado.

• Recuperación de la Etapa V en Zn

El resultado obtenido a partir del recuperado isócrono de la probeta Zn 8-2 (Quinta Serie) presenta un espectro de recuperación con un máximo alrededor de 200 K, no visto anteriormente. El único trabajo previo existente en la bibliografía, realizado por el grupo D×R-CNEA [13], presenta único pico alrededor de ~ 210 K., Fig. IV. 8:

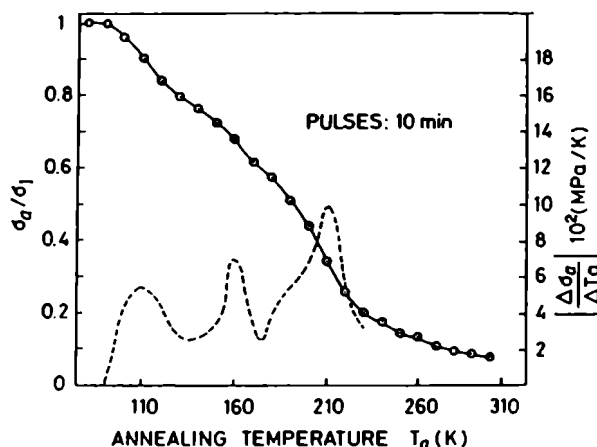


Fig. IV. 8 Recuperado isócrono de la $TCRC_{77K}$ de un monocristal de Zn irradiado a $3.4 \times 10^{20} \text{ n m}^{-2}$ y a 77 K [13].

A esta temperatura, la probeta Zn 8-2 presenta un hombro que indica una posible subestructura, no determinada, como consecuencia del tamaño del intervalo de temperatura elegido para realizar las medidas de recuperación.

En el trabajo de Ref. 13, las condiciones experimentales fueron similares a las presentes, es decir dosis a las cuales los defectos son estables a la deformación plástica y a 77 K, en monocristales de alta pureza y baja tensión de fluencia. La energía de activación, determinada en el trabajo mencionado, fue de 0.71 ± 0.03 eV, y se obtuvo a partir del

recuperado isotérmico de probetas “idénticas” entre 200 y 217 K, Fig. IV. 9, por el método de cruce, Fig. IV. 10, es decir, luego de completado el proceso responsable del pico a 200 K. Este valor es menor al de autodifusión en Zn como ya se mencionó.

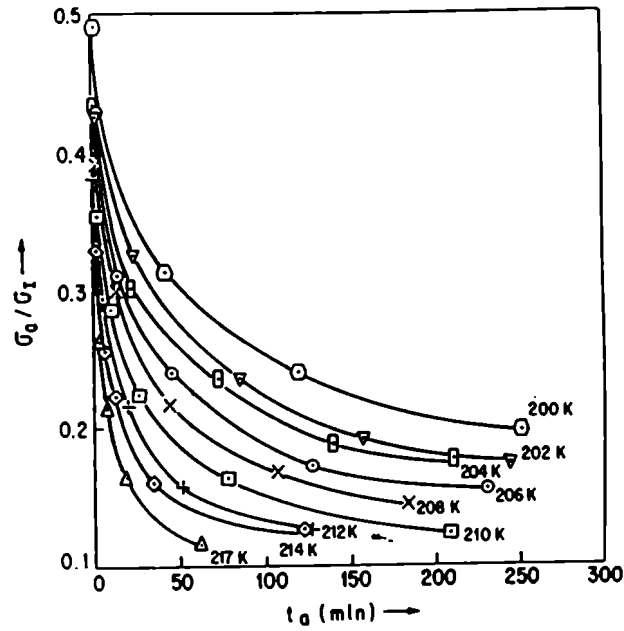


Fig. IV. 9 Recuperados isotérmicos de la TCRC_{77K} en monocitales de Zn irradiados con neutrones rápidos a $2.3 \times 10^{20} \text{ n m}^{-2}$ a 77 K. Un espécimen fue usado en cada caso. $\sigma_i = \tau_{\text{max}}$ [13].

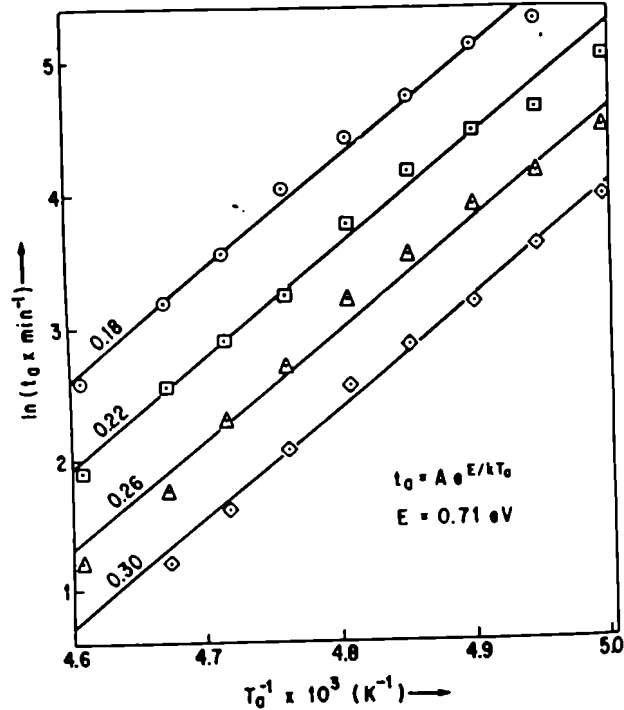


Fig. IV. 10 Determinación fenomenológica de la energía de activación mediante el recuperado de la TCRC_{77K} en monocitales de Zn irradiados a $2.3 \times 10^{20} \text{ n m}^{-2}$. t_a es el tiempo de recocido para los valores de la TCRC_{77K} seleccionados, T_a es la temperatura de recocido [13].

La energía de autodifusión para este metal es ~ 0.95 eV para la difusión paralela al eje c y 1 eV par la difusión en el plano basal [10]. El proceso de recuperación se atribuyó a la disolución de aglomerados submicroscópicos. Este resultado es análogo al observado en Cu y es consistente con el hecho que luego de la Etapa Vb se produce la mayor disociación de aglomerados de vacancias.

- *El recuperado térmico desde 200 K*

El recuperado isócrono de la probeta Cu 26-2 (Segunda Serie) permite observar el pico de recuperación asociado a la Etapa III. Si bien las medidas realizadas fueron insuficientes para determinar completamente dicho pico, el centro de la recuperación es cercano a los 200 K. Este resultado coincide con el obtenido a partir del recuperado isócrono del incremento de la resistividad eléctrica en cobre irradiado con neutrones de fisión [19] que se muestra en la Fig. IV. 11. El comportamiento observado entre 235 y 300 K muestra la influencia de los neutrones térmicos [20] ya que, en irradiaciones donde predomina este tipo de espectro la Etapa III presenta un pico importante de recuperación alrededor de 225 K, Fig. IV. 12.

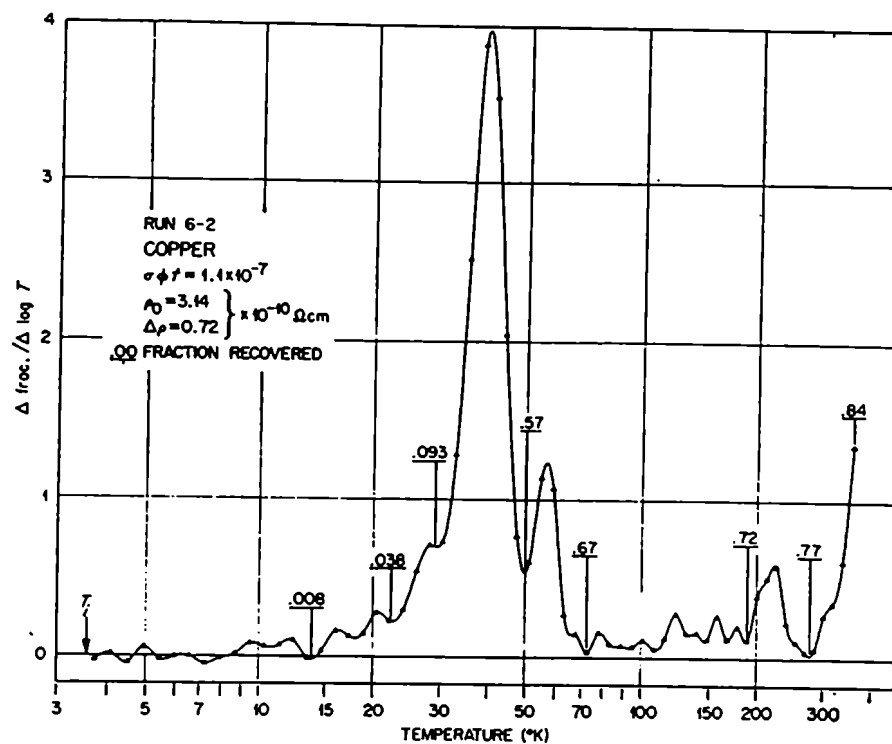


Fig. IV. 11 Recuperado isócrono y su correspondiente espectro de recuperación vs el logaritmo de la temperatura (K) en Cu irradiado a 4.5 K y 2×10^{18} n cm⁻² (E>0.1 MeV) [19].

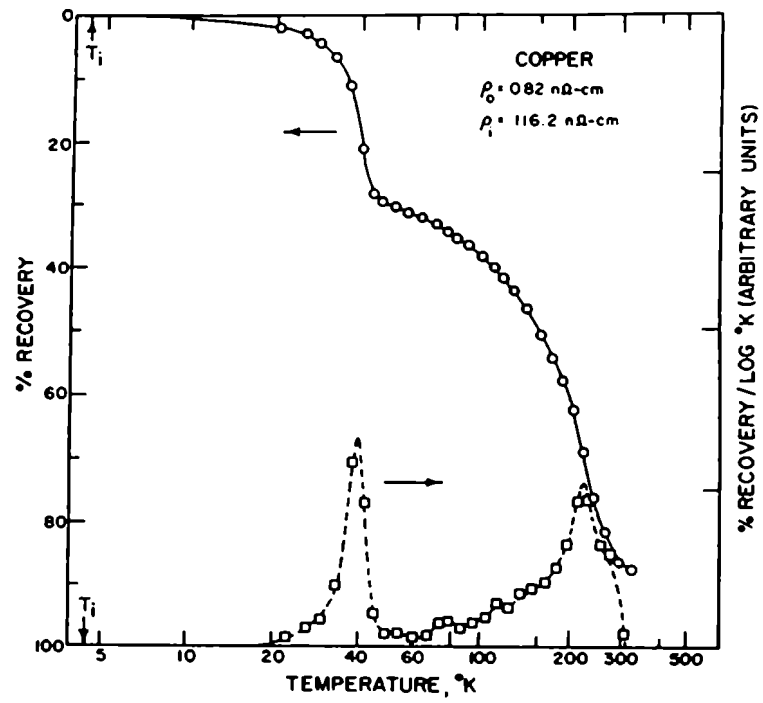


Fig. IV. 12 Recuperado isócrono de Cu irradiado con neutrones térmicos [20].

¹Estudios realizados por MET en Cu irradiado con neutrones de fisión y de fusión (14 MeV), hacen referencia a los llamados “defectos tipo cascada” (cascade defects) consistentes de grupos pequeños de defectos con tendencia a formar arreglos regulares. Cada grupo se asocia a una cascada, de modo que al incrementar la dosis, aumenta el número de grupos y también el tamaño de los aglomerados pequeños que se encuentran en su interior. A $4 \times 10^{20} \text{ n m}^{-2}$, el tamaño medio de los aglomerados pequeños es de 30 nm. La Fig. IV. 1 (a) muestra estos defectos en Cu luego de irradiar a temperatura de reactor y a $4 \times 10^{20} \text{ n m}^{-2}$ con neutrones de fisión [Y. Shimomura, H. Yoshida, M. Kiritani, K. Kitawa and K. Yamakawa, “Electron Microscopic Studies of Damage Evolution in Fission Neutron Irradiated Metals”, *J. Nucl. Mater.* 133&134, 385-389, 1985] y la Fig. IV. 1. (b) para neutrones de fusión, observados a 143 K, en Cu irradiado a 20 K ($4.23 \times 10^{16} \text{ n cm}^{-2}$) [Y. Shimomura, M.W. Guinan, and M. Kiritani, “Low Temperature D-T Neutron Irradiation and Cryotransfer Observation of Cascade Defects of Metals”, *J. Nucl. Mater.* 133&134, 415-419, 1985]:

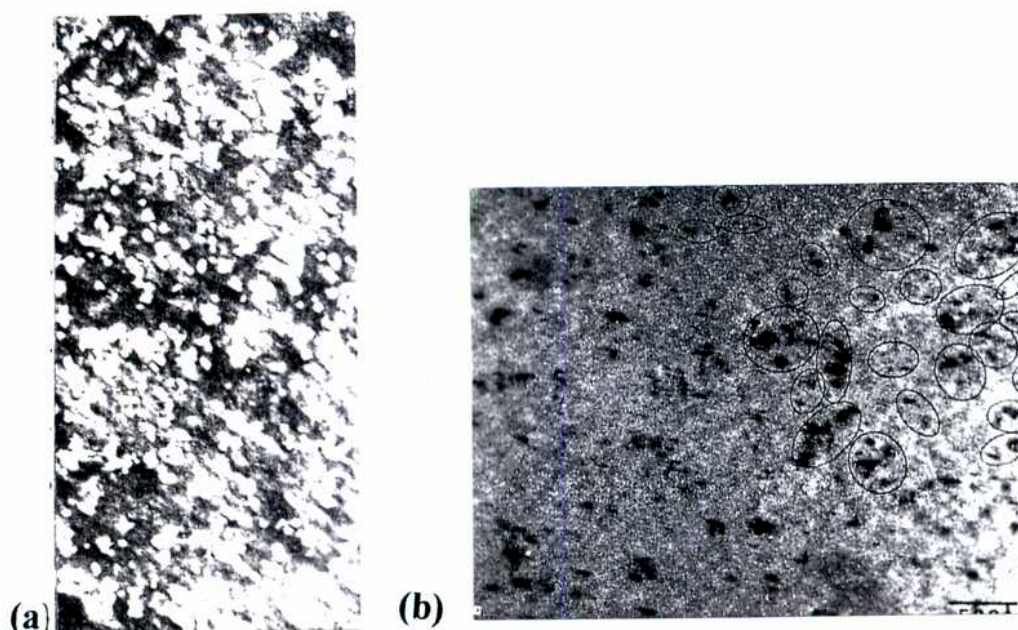


Fig. IV. 1 Defectos tipo cascada en Cu: (a) irradiado a 350 K y $4 \times 10^{20} \text{ n m}^{-2}$ (Y. Shimomura, H. Yoshida y col); (b) en especímenes irradiados con neutrones de fusión por debajo de 20 K y criotransferidos a un microscopio electrónico, sin calentamiento, observados a 138 K ($\phi t = 4.23 \times 10^{20} \text{ n m}^{-2}$) (Y. Shimomura, M. W. Guinan y col).

En ambos casos aparece la misma estructura de defectos. En general el daño con neutrones de fisión es más simple que el producido con neutrones de 14 MeV.

Si se supone que todos los PKAs de alta energía crean defectos tipo cascada, se puede calcular el rango de energía dentro del cual se producen *cascadas de defectos observables*. Para Cu el intervalo estimado es de $30 \text{ keV} < E_c < 130 \text{ keV}$.

Si se compara el intervalo de energías de los PKAs dado, con lo discutido en § I. 2. 4, inmediatamente se advierte que debe existir una enorme población de defectos submicroscópicos ya que, para energías menores a 4 keV se producen colisiones colectivas en Cu., que dan lugar a zonas diluidas. Si bien los aglomerados de defectos que en ellas se originan no son visibles por microscopía, pueden actuar como obstáculos al movimiento de las dislocaciones y reflejarse en el espectro de recuperación del metal cuando se realiza el recuperado térmico de la TCRC_{77K} desde las bajas temperaturas.

REFERENCIAS

- [1] Y. Shimomura, H. Fukushima, M. Kami, T. Yoshiie, H. Yoshida, M. Kiritani, *Thermal Stability of Cascade Defects in FCC Pure Metals*, J. Nucl. Mat., 141-143, 846, 1986.
- [2] W. Shilling, P. Ehrhart and K. Sonnenberg, *Interpretation of Defect Reactions in Irradiated Metals by The One Interstitial Model*, en "Fundamental Aspect of Radiation Damage in Metals", Ed. M.T. Robinson and F.W. Young, U. S. A, Conf 751006, 470, 1996.
- [3] Th. Wichert, *Comparative Study of Vacancy Clustering in Al and Cu, using PAC, Channeling and Positron Annihilation*, Materials Science Forum Vol 15-18, 829-848, 1987.
- [4] M. Deicher, G. Grübel, R. Minde, E. Recknagel and Th. Wichert, *Defects in Copper Studied by PAC between 10 K and 800 K*, Proc. 5th Yamada Conf. on "Point Defects and Defect Interactions in Metals", Univ. de Tokyo Press, Tokyo, 220, 1982.
- [5] W.B. Gauster, S. Mantl, T. Schober and W. Triftshauser, *Annealing of Dislocation Loops in Neutron-Irradiated Copper Investigated by Positron Annihilation*, en "Fundamentals Aspects of Radiation Damage in Metals", ERDA Conf 751006, 1143, Ed. M.T. Robinson, E. W. Young, U.S.A, 1976.
- [6] C.A. English, *Low Dose Neutron Irradiation Damage in FCC and BCC Metals*, J. Nucl. Mater. 108&109, 104-123, 1982.
- [7] D.E. Barry, B.L. Eyre, *A Study of Neutron Irradiation Damage in Copper and a Dilute Copper-Boro Alloy*, Phil. Mag. 22, 717, 1970.
- [8] H. Fukuyama Y. Shimomura and M.W. Guinan, *Nature and Stability of TEM Observed Defects in 14-MeV Neutron-Irradiated Au and Cu*, J. Nucl. Mater. 155-157, 1205, 1988.
- [9] Y. Shimomura, H. Yoshida, M. Kiritani, K. Kitagawa and K. Yamakawa, *Electron Microscopic Studies of Damage Evolution in Fission Neutron Irradiated Metals*, J. Nucl. Mater. 133&134, 385, 1985.
- [10] Landølt-Börnstein, "Zahlenwertw und Funktionen aus Naturwissenschaften und Technik" Band 25: Atomare Fehlstellen in Metallen; H. Ullmaier, Spring Verlag, Berlin, p. 233, 1994.
- [11] T.H. Belwitt, R.R. Coltman, R.E. Jamison and J. K Redman, *Radiation Hardening of Copper Single Crystals*, J. Nucl. Mater. 2, 277, 1960.
- [12] M.J. Makin and S.A. Manthorpe, *The Annealing of Irradiation Hardening in Copper Crystals*, Phil. Mag. 10, 580, 1964.
- [13] H.C. González and C.J. Iriart, *The Recovery of Zinc after Fast-Neutron Irradiation at Low Doses in Liquid Nitrogen*, Phil. Mag. A 54, 441, 1986.
- [14] W. Primak, *Kinetics of Processes Distributed in Activation Energy*, Phys. Rev. 100, 1677, 1955.

- [15] W. Primak, *Fast Neutron Damaging in Nuclear Reactors: Its Kinetics and the Carbon Atom Displacement Rate*, Phys. Rev. 103, 1956.
- [16] W. Primak, *Large Temperature Range Annealing*, J. Appl. Phys. 31, 1524, 1960.
- [17] B.T. Kelly, *The Annealing of Irradiation Effects in Solids* en “Irradiation Damage Solids”, Pergamon Press, p. 179, 1996.
- [18] M.T. Miralles, H.C. González, *Recuperación Térmica del Endurecimiento Inducido por Irradiación con Neutrones Rápidos en Monocristales de Cu Irradiados a 77 K: Determinación del Espectro de Energías de Activación Inicial*, Anales de la Sociedad Argentina de Metales, (SAM), p 169, 1996.
- [19] J.A. Horak and T.H. Blewitt, *Isochronal Recovery of Fast Neutron Irradiated Metals*, J. Nucl. Mater. 49, 161-180, 1973/74.
- [20] R.R. Coltman, C.E. Klabunde and J.K. Redman, *Survey of Thermal-Neutron Damage in Pure Metals*, Phys. Rev. 156, 715-734, 1967.

Conclusiones

CONCLUSIONES

- Para irradiaciones a dosis por encima de la de saturación ($> 4.5 \times 10^{20} \text{ n m}^{-2}$) y temperatura de reactor ($\sim 80^\circ\text{C} = 350 \text{ K}$), en Cu irradiado con neutrones de fisión, la Etapa V de recuperación de la Tensión Crítica Resuelta de Corte, medida a 77 K, en monocristales 99.999 %, se ubica entre 220-380 °C (500-700 K). Este intervalo de temperatura coincide con el de la recuperación de los aglomerados de vacancias e intersticiales observada por MET, tanto para irradiaciones con neutrones de fisión como de fusión (14 MeV).
- La irradiación neutrónica a bajas dosis y temperatura, produce el corrimiento de la Etapa V hacia al lado de las bajas temperaturas. La magnitud del corrimiento depende de las condiciones de irradiación. Para las probetas utilizadas en el presente trabajo, el mismo fue de 30 K. La recuperación de la Etapa se completó a alrededor de 325 °C.
- Un programa de recuperado isócrono cada 3 K y 10 min, permitió poner en evidencia la existencia de al menos tres procesos de disolución de los aglomerados de defectos a lo largo de la Etapa V. Los mismos se denominaron Va, Vb y Vc respectivamente y fueron reconfirmados, cada uno de ellos, en forma independiente en otras probetas. La ubicación del centro de estas subetapas es sensible a las condiciones de irradiación. Para probetas irradiadas a bajas dosis y temperatura, los intervalos de recuperación correspondientes se sitúan entre 200-250 °C, 250-290 °C y 290-325 °C. El proceso de recuperación Va sería consecuencia de un cambio de configuración espacial de tridimensional a bidimensional de los aglomerados de vacancias que crecieron a partir de aglomerados de defectos submicroscópicos a temperaturas superiores a las de la Etapa III. Los procesos correspondientes a las subetapas Vb y Vc estarían asociados primariamente a la disolución de aglomerados de naturaleza vacancia. La temperatura de separación de ambos procesos, $\sim 288^\circ\text{C}$, es aquella a la que se produce la mayor disolución de los aglomerados de mayor tamaño en monovacancias o en aglomerados más pequeños.
- Aparición, en todas las probetas irradiadas a baja dosis y temperatura que involuntariamente se calentaron a temperatura ambiente, de indicios de una subestructura en la Etapa Vc con energías de activación de 2.4 y 1.83 eV (3 %) respectivamente.
- En Zn se encontró evidencia experimental de la existencia de una subestructura en la Etapa V. Se observaron dos procesos de recuperación en esta Etapa situados alrededor de 200 K y 210 K respectivamente.

A partir de este trabajo queda demostrado en forma concluyente, que la Etapa V es, desde el punto de vista cinético, una etapa multiactivada, altamente sensible a las condiciones de irradiación y a la historia térmica postirradiación a temperaturas menores a 450 K, en la que, debido a la alta sensibilidad de la TCRC_{77K} a los aglomerados de defectos, se puede determinar el espectro de recuperación de al menos tres subetapas.

PERSPECTIVAS FUTURAS

Este Trabajo de Tesis ha servido para poner en evidencia la potencialidad de la TCRC_{77K} en el estudio de la disolución de los defectos aglomerados. Estos defectos se originaron en las cascadas de desplazamientos atómicos durante la irradiación con neutrones de fisión, a bajas dosis y temperatura.

En particular, el mostrar por primera vez la subestructura de recuperación de la Etapa V, en Cu, el metal más estudiado de la tabla periódica, abre toda una línea de investigación destinada al estudio de cada uno de estos subintervalos de recuperación.

La determinación fenomenológica de las energías de activación de las subetapas Va y Vb es el próximo paso en el estudio de la ***Etapas V***, a realizarse en probetas monocristalinas de Cu en las condiciones experimentales del presente trabajo.

El análisis de los resultados se realizará desde diferentes enfoques para poder determinar parámetros cinéticos tales como el orden de la reacción y las constantes características.

Las condiciones de irradiación (dosis, temperatura de irradiación y el estado inicial de la probeta) constituye otra línea de enorme interés para evaluar la sensibilidad de la Etapa V.

Una vez completados los estudios de la Etapa V en cobre, se pueden iniciar los correspondientes a las etapas previas III y IV.

El éxito obtenido en Cu, invita a repetir los estudios de las Etapas III, IV y V en metales hexagonales. En Zn la ubicación de estas etapas y su correspondiente energía de activación fueron determinadas por el grupo D×R-CNEA, pero nunca con la continuidad de medidas que permitieran discriminar subetapas. En Mg está todo por hacer.

PUBLICACIONES Y PRESENTACIONES A CONGRESOS

a) Publicaciones con

• Referato Internacional

* M.T. Miralles, A. M. Fortis y H. C. González; "Determinación de la Energía de Activación de la Etapa V en Cu irradiado con neutrones a 77°K.", Anales de la Asociación Química Argentina vol 84, 5, 429/432, 1996.

* H.C. González y M.T. Miralles; "Utilización de la Tensión de Fluencia en la Determinación de la Energía de Activación de Defectos producidos por Irradiación Neutrónica"; Proc. IV, Cso. Gral. Energ. Nuclear (IV-CGEN), Associação Brasileira de Energia Nuclear, (ABEN), Rio de Janeiro, 27 oct-11 nov, 1996.

• Referato Nacional

* M.T. Miralles; H.C. González; "Recuperación Térmica del Endurecimiento inducido por Radiación de Neutrones Rápidos en Monocristales de Cu Irradiados a 77 K: Determinación del Espectro de Energías de Activación Inicial". Anales de la Sociedad Argentina de Metales, (SAM), 169, 1996.

Presentaciones a Congresos

a) Internacionales

* M.T. Miralles, A.M. Fortis, H. C. González; "Determinación de la Energía de Activación de la Etapa V en Cu irradiado con Neutrones a 77 K" (Parte II), First Argentina-USA Bilateral Symposium on Materials Science and Engineering (FAUSASMAT), Bs As, Nov. 12-16, 1995.

* H.C. González y M.T. Miralles; "Utilización de la Tensión de Fluencia en la Determinación de la Energía de Activación de Defectos producidos por Irradiación Neutrónica"; Cso.Gral. Energ. Nuclear (IV-CGEN), Associação Brasileira de Energia Nuclear, (ABEN), Rio de Janeiro, 27 oct-11 nov, 1996.

* M.T. Miralles, H.C. González; "Existencia de Subetapas en la Etapa V de Recuperación Térmica del Endurecimiento por Irradiación", al Congreso Internacional IBEROMET-V, Rosario, Sept 1998. Los trabajos aceptados serán expuestos oralmente durante las sesiones del Congreso y publicados en el Journal de Pysique III.

* H.C. González, C.D. Anello, M.T. Miralles, "Dispositivo para Realizar Recuperados Térmicos Postirradiación de Probetas de Tracción entre 77 y 700 K", Enviado al Congreso Internacional IBEROMET-V, Rasario, Argentina, Sept 1998.

b) Nacionales

* M.T.Miralles y H.C. González: "Determinación de la Energía de Activación de la Etapa V en Cu irradiado con neutrones a 77 K" (Parte I). A. F. A., 1995.

* M.T.Miralles y H.C.González: "Recuperación Térmica del Endurecimiento Inducido por Radiación de Neutrones Rápidos en Monocristales de Cu Irradiados a 77 K: Determinación del Espectro de Energías de Activación Inicial", SAM, 1996.

Participación en Proyectos de Investigación

* "Termodinámica de Defectos Puntuales en Metales Hexagonales y Cúbicos a través de las Propiedades Mecánicas"; Proyecto OEA-CNEA, 1992 a 1996.

* "Medición de Energías de Migración de Defectos en Mg y Cu"; Proyecto BID-CONICET, 1992 a 1995.