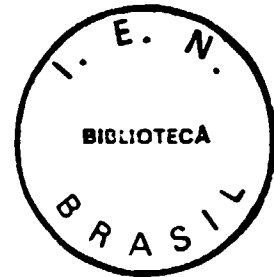


BR0432064
INIS - BR - - 3343

COMISSÃO NACIONAL
DE ENERGIA NUCLEAR



INSTITUTO DE
ENGENHARIA NUCLEAR



**Estudo de Danos por Irradiação em Aços
AISI 316 e 347**

TESE DE DOUTORADO

Gonçalo Rodrigues dos Santos

MARÇO DE 1993

RIO DE JANEIRO
BRASIL

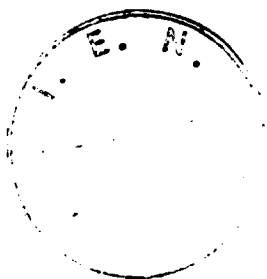
5392
SANT

ESTUDO DE DANOS POR IRRADIAÇÃO EM AÇOS AISI 316 E 347

Gonçalo Rodrigues dos Santos

**TESE SUBMETIDA AO CORPO DOCENTE DO INSTITUTO DE FÍSICA
DA UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO DE JANEIRO COMO PARTE DOS
REQUISITOS NECESSÁRIOS À OBTENÇÃO DO GRAU DE DOUTOR**

Aprovada por:



Zelinda Carneiro
.....
Dr. Zelinda Carneiro Goçaves
(Presidente da Banca)

Fernando de Souza Barros
.....
Dr. Fernando de Souza Barros

Daniilo de Paiva Almeida
.....
Dr. Daniilo de Paiva Almeida

Paulo Fernando Papaleo Fichtner
.....
Dr. Paulo Fernando Papaleo Fichtner

Valdir Sciani
.....
Dr. Valdir Sciani

5392
SANT

Rio de Janeiro, RJ - BRASIL

MARÇO DE 1993

SANTOS, Gonçalo Rodrigues dos

**Estudo de Danos por Irradiação em Aços AISI 316 e 347 . Rio de Janeiro,
IF-UFRJ, 1993**

X, 212 f.

Tese: Doutor em Ciências (Física Nuclear-Sólidos)

**1. Danos por Irradiação 2. Simulação com Íons 3. Aniquilação de Pósitrons
4. "Creep" 5. Microscopia Eletrônica**

I. Universidade Federal do Rio de Janeiro - IF.

II. Título

Prefácio

No âmbito do projeto brasileiro de reatores rápidos para geração de energia, está o estudo de materiais de aplicações nucleares. Para este fim, foi criado em 1981 no Instituto de Engenharia Nuclear (IEN) um grupo de pesquisa em "Danos por Irradiação", com objetivo de estudar os efeitos da radiação em materiais, utilizando o acelerador de partículas ciclotron CV-28/IEN. Inicialmente foram estabelecidos 3 *marcos* principais:

1. projeto e desenvolvimento de *Transporte de Feixe* e infra-estrutura especial para estudo de danos causados por nêutrons, através da técnica de simulação com partículas carregadas.
2. desenvolvimento e aplicação de técnicas experimentais para estudo de propriedades mecânicas dos materiais.
3. formação de pessoal especializado na área.

Esta tese apresenta uma parte do desenvolvimento deste grupo, descrevendo os dois primeiros *marcos*, e a aplicação das técnicas, inicialmente para os aços AISI 316 e 347^[1]. A ênfase é dada à montagem da infra-estrutura para estudo de danos com o ciclotron, e a aplicação da técnica não destrutiva de aniquilação de pósitron. São também descritas aplicações de técnicas destrutivas (tração, "creep", MET e MEV), que tiveram inicialmente caráter apenas de comparação de resultados. Contudo, estas técnicas estão incluídas em novos projetos de pesquisa com importância fundamental na obtenção de relações entre as diversas técnicas experimentais.

A tese está subdividida em 5 capítulos. Antes de cada capítulo é feita uma descrição sucinta de seu conteúdo e seu propósito. As figuras, tabelas e equações são

numeradas sequencialmente independente dos capítulos, mantendo uniformidade entre si, ao longo do trabalho.

No capítulo introdutório é feita uma discussão das vantagens e desvantagens da aplicação de aceleradores de partículas carregadas para estudo de danos causados por nêutrons, e uma breve revisão da situação recente deste tipo de pesquisa em diversos laboratórios. No capítulo 2 são apresentados os elementos básicos para o cálculo do número de deslocamentos, assim como para a comparação de danos produzidos por nêutrons e íons.

No capítulo 3 são apresentadas as técnicas experimentais utilizadas, a infraestrutura desenvolvida, a preparação, irradiação, controle de qualidade, e os ensaios e testes aos quais as amostras foram submetidas, com destaque para a técnica de aniquilação de pósitrons.

Nos capítulos 4 e 5 são apresentados os resultados e as conclusões, onde são aplicados os conceitos e cálculos de capítulos anteriores, ressaltando a influência do gás hélio nas propriedades dos materiais estudados.

O sentimento atual do grupo é que a contribuição desta tese intensifique o intercâmbio técnico científico entre o IEN e as instituições: PUC-RJ, COPPE, IF-UFRJ e IPEN com as quais foi mantido para realização deste trabalho, e dê início à colaboração com outras instituições, dando continuidade à esta pesquisa, o que certamente proporcionará grande avanço no estudo de materiais.

Agradecimentos

O autor gostaria de agradecer ao grupo do laboratório de hidrogênio da COPPE pela colaboração na obtenção das micrografias (M.E.T.), ao grupo do TE-IPEN pela colaboração nos testes de "creep", ao grupo do DCMM da PUC-RJ pela colaboração na microscopia de varredura, ao grupo do *cíclotron do IEN* pelas irradiações, aos colegas do IEN pelo incentivo e discussões, e a todos que direta e indiretamente colaboraram para a realização desta tese.

Resumo

O ciclotron CV-28/1EN foi utilizado para produzir concentrações uniformes de *He* simulando, em escala de tempo reduzida, irradiações neutrônicas de metais por reações (n, α). O hélio foi implantado em amostras de aços (AISI 316 e 347 de 100 μm de espessura) nas concentrações de 1 a 100 *ppma* degradando feixes de partículas alfa de 28 *MeV*, através de um sistema giratório de degradação de energia. Os efeitos do *He* nas propriedades mecânicas foram estudados por técnicas destrutivas (tração, “creep”, MET e MEV) e não destrutiva (aniquilação de pósitrons). Medidas de tempo de vida de pósitron em amostras irradiadas e tratadas termicamente foram usadas para discutir o mecanismo de difusão do *He*, onde as energias de ativação $0,34 \pm 0,03 \text{ eV}$ para o aço 316 e $0,57 \pm 0,05 \text{ eV}$ para o 347, caracterizaram o processo dissociativo acima de 650°C . As análises por MET apresentaram indícios do mecanismo de Ostwald ripening no processo de crescimento de bolhas de *He* nas concentrações estudadas. Do valor obtido para a razão *dpa/ppma* ($1,8 \times 10^{-3}$), e de acordo com cálculos teóricos concluiu-se que a produção de deslocamentos durante as implantações, por si só, não teve influência significativa na ductilidade. Entretanto, foi observada perda acentuada de ductilidade com a concentração de *He* para os dois tipos de aço, tanto em tração à temperatura ambiente como em “creep” a 750°C , em toda faixa de tensão aplicada (100 a 200 *MPa*). Finalmente, foi verificado que a simulação de danos com partículas carregadas associada à técnica de aniquilação de pósitron compõe um método rápido, de relativo baixo custo e útil no estudo de diferentes tipos de danos por irradiação neutrônica de materiais.

Abstract

The CV-28 cyclotron at IEN has been used to simulate, in a short time scale, uniform *He* concentrations produced during neutron irradiation of metals by (n, α) reactions. Helium was implanted at concentrations of 1 to 300 *appm* in 100 μm thick sheet samples of AISI 316 and 347 SS by degrading a 28 MeV alpha particle beam with a *rotating energy degrader*. The effects of *He* on the mechanical properties of the steels were studied by both non-destructive (positron annihilation) and destructive tests (tensile, creep, TEM and SEM). The positron lifetime measurements of irradiated and annealed samples were used as the base to discuss the *He* diffusion mechanism. Activation energies of 0.34 ± 0.04 eV for 316 SS and 0.57 ± 0.06 eV for 347 SS, characterized a dissociative process above 650°C . TEM analyses have suggested the Ostwald ripening process for bubble growth over the full range of *He* concentrations studied. It was shown, in agreement with theoretical calculations that, by themselves the displacements produced during the helium implantation, at rate of 1.8×10^{-3} dpa/*appm*, were not sufficient to cause significant changes in ductility. However, a strong ductility loss with increasing *He* concentration was observed for both types of steel for tensile tests at 25°C , as well as in creep at 750°C over the range of strain (100 to 200 MPa). Finally, it was shown that charged particle simulation associated with positron annihilation techniques provides a fast, relatively low cost, and useful method to study different kinds of neutron damage in materials.

Índice

Prefácio		iii
Agradecimentos		v
Resumo		vi
Abstract		vii
1 Introdução		1
2 Revisão da Teoria de Danos por Irradiação		6
2.1 Danos na Rede Cristalina		6
2.1.1 Colisões Elásticas		9
2.1.2 Seção de Choque de Transferência de Energia		11
2.1.3 Características de um Feixe de Íons		13
2.1.4 Relação entre $V(x)$ e $\sigma(E,T)$		15
2.1.5 Processo de Perda de Energia para Elétrons do Meio		18
2.1.6 Energia de Deslocamento		20
2.1.7 Cálculo de Número de Deslocamentos		21
2.2 Produção de Danos com Nêutrons e Íons		29
2.2.1 Seção de Choque de Deslocamento		29
2.2.2 Deslocamentos Produzidos por Nêutrons		31
2.2.3 Deslocamentos Produzidos por Íons		36
2.2.4 Comparação de Danos Produzidos por Nêutrons e Íons		38
2.3 Outros Efeitos da Irradiação		44
2.3.1 "Spike"		45
2.3.2 "Voids - Swelling"		47
2.3.3 O Hélio na Rede Cristalina		49





3	Materiais e Métodos	61
3.1	Simulação de Danos com o Ciclotron	61
3.1.1	A Escolha dos Íons	62
3.1.2	Sistema de Irradiação	66
3.1.3	Preparação e Irradiação de Amostras	70
3.1.4	Irradiações com Prótons	82
3.1.5	Irradiações com α (Implantação de He)	84
3.2	Técnica não Destrutiva (Aniquilação de Pósitron)	93
3.2.1	Correlação Angular	94
3.2.2	Alargamento "Doppler"	97
3.2.3	Tempo de Vida de Pósitron	102
3.2.4	O Espectrômetro de Tempo	103
3.3	Técnicas Destrutivas	111
3.3.1	Teste de Tração	111
3.3.2	Teste de "Creep"	114
3.3.3	Microscopia Eletrônica (MET e MEV)	120
4	Resultados e Discussão	121
4.1	Cálculo de dpa Durante a Implantação de He	121
4.2	Perfil de Implantação de He	128
4.3	Resultados de Teste não Destrutivo	131
4.3.1	Resultados Iniciais de Tempo de Vida de Pósitron	131
4.3.2	Medidas de τ_v em função de C_{He}	135
4.3.3	Medidas de τ_v para Determinação de E_a	141
4.3.4	Medidas de Alargamento "Doppler" em Função de C_{He}	149
4.4	Resultados de Testes Destrutivos	151
4.4.1	Resultados de Tração	151
4.4.2	Resultados de Testes de "CREEP"	155
4.4.3	Resultados de MEV e MET	170

5 Conclusões

182

Bibliografia

185

Apêndice

201



Capítulo 1

Introdução

Até o advento dos reatores nucleares em 1943, os estudos sobre os efeitos da irradiação em materiais concentravam-se em fenômenos como espalhamento, difração e alcance de partículas. Naquela época pouca importância era dada às mudanças permanentes produzidas pela irradiação, que não fossem efeitos químicos, o que satisfazia as necessidades da época.

Poucas áreas tiveram uma evidência tão grande da necessidade de desenvolvimento de materiais como a área nuclear, onde as exigências de combinações ótimas das propriedades físicas de estruturas metálicas são indispensáveis, como, por exemplo, baixa seção de choque para captura de nêutrons combinada a uma grande resistência à tração, considerando ainda que estes materiais devem suportar intensos fluxos de radiação a altas temperaturas por períodos prolongados.

A técnica de irradiação com partículas carregadas para estudo de danos produzidos por nêutrons em metais foi inicialmente usada por Marx et al^[2] em 1952. A partir de 1967, este tipo de estudo recebeu um grande impulso com resultados obtidos por Cawthorne e Fulton^[3], sobre a formação de “voids” e o “swelling” de amostras de aço inoxidável irradiadas no Reator Rápido de Dounreay.

As especulações a respeito da influência da irradiação no comportamento destes materiais, com relação à sua vida útil e à segurança de reatores, proporcionaram o rápido desenvolvimento da técnica de simulação com íons^[4,5]. A motivação inicial era prever os

efeitos da irradiação neutrônica em componentes metálicos do núcleo de reatores.

A base teórica que viabiliza este tipo de estudo está no fato de que, em uma irradiação neutrônica, menos de 1% dos átomos deslocados no material são produzidos diretamente por nêutrons. Assim, mais de 99% são produzidos por átomos primários, (aqueles inicialmente deslocados pelos nêutrons). Portanto, os tipos de defeitos formados por irradiação neutrônica ou por partículas carregadas são praticamente os mesmos.

O sucesso das primeiras experiências na comparação de efeitos microestruturais produzidos por nêutrons e íons em metais deu origem a diversos projetos e estudos nesta área. Experiências posteriores também tiveram sucesso. Irradiações com prótons^[6] e elétrons^[7], mostraram que o "swelling" em aço inoxidável tem uma dependência aproximadamente linear com a dose. Esta técnica apresentou ainda vantagens de baixo custo, rapidez, eficiência e grande potencialidade no estudo de materiais. Desde 1971, diversos laboratórios de todo o mundo têm desenvolvido programas envolvendo aceleradores em estudos de danos por irradiação em metais e ligas. A tabela (1), lista alguns destes laboratórios, o tipo de acelerador, íon e material estudado.

Neste trabalho os materiais estudados são os aços AISI 316 e 347. Esta escolha baseou-se no fato de que são comumente usados como materiais estruturais e revestimento de reatores.

O efeito da irradiação neutrônica nas propriedades mecânicas destes aços já foi estudado anteriormente^[8]. Entretanto, faz-se necessário um estudo de danos através da simulação com partículas carregadas e aplicação de técnicas destrutivas e não destrutivas, com objetivo mais específico de estudar a influência da formação de gases (hélio e hidrogênio) nestes materiais.

Estes gases são introduzidos nos materiais como consequência de reações nucleares do tipo (n, p) e (n, α) . Sua presença na rede cristalina pode ter consequências catastróficas, por exemplo: o hélio, por ser insolúvel em metais, sob certas condições aglomera-se formando *bolhas*^[9], que provocam a fragilização, determinando o fim da vida útil destes materiais.

Atualmente existe um grande interesse no estudo de danos neutrônicos através da

laboratório	acelerador	íon	material	início
ANL-USA	cíclotron	d, 22MeV 10 μ A/cm ²	aço AISI 304	1971
MIT-USA	Van de Graaff	p, 3MeV 5 μ A/cm ²	Ni alta pureza	1973
NRL-USA	cíclotron	d, 22 – 70MeV 2 μ A/cm ²	Ni alta pureza	1973
AERE-GB	Van de Graaff	p, 4MeV 10 μ A/cm ²	aço AISI 321	1975
CEN-F	cíclotron	α , 30MeV 20 μ A/cm ²	aço AISI 316	1977
HELD-USA	cíclotron	p, 14 – 8MeV 10 μ A/cm ²	aço AISI 316	1977
CISE-I	tandem Van de Graaff	p, 7MeV 20 μ A/cm ²	aço AISI 316, 304	1977
PNW-USA	tandem Van de Graaff	d, 17MeV 15 μ A/cm ²	Ni	1978
KFA-D	cíclotron	α , 28MeV 10 μ A/cm ²	DIN 1.4970 SS	1980
ORNL-USA	cíclotron	α , 60MeV 10 μ A/cm ²	aço AISI 316	1981
KFK-D	cíclotron	p, d, 50MeV 100 μ A/cm ²	liga a base de V	1981
IPEN-BR	cíclotron	p, α , 3 – 28MeV 50 μ A/cm ²	aço AISI 321	1981
JRL-EU	cíclotron	p, d, α , 5 – 38MeV 50 μ A/cm ²	Mn – Cr AISI 316	1982
IEN-BR	cíclotron	p, α , 6 – 28MeV 50 μ A/cm ²	aço AISI 316, 347	1982

Tabela 1: Laboratórios e programas em danos por irradiação em metais e ligas utilizando aceleradores de partículas de *alta energia*

simulação com partículas carregadas, especialmente em projetos de reatores de potência (*rápido e a fusão*). As fontes de partículas carregadas mais apropriadas a este tipo de estudo são os *aceleradores*, em particular os *ciclotrons*. Entre as vantagens da aplicação de aceleradores de partículas para estudos de simulação de danos em metais e ligas destacam-se:

- redução drástica na escala de tempo para produção de defeitos e na implantação de hélio, o que representa economia,
- meia vida curta dos produtos de reações nucleares, o que facilita a manipulação de amostras irradiadas,
- produção de deslocamentos atômicos e implantação de hélio de modo independente, proporcionando um estudo separado destes fenômenos.

Uma desvantagem seria, por exemplo, o *pequeno* alcance das partículas carregadas em materiais, o que implica em desenvolvimento de técnicas especiais na preparação de amostras, na dissipação de calor durante a irradiação, e nas adaptações para alguns testes^[10]. Entretanto, como estas dificuldades podem ser contornadas com relativa facilidade, as vantagens citadas justificam a aplicação de aceleradores no estudo de danos por irradiação.

A combinação de resultados obtidos pela técnica de simulação de danos com aceleradores, seguida da aplicação de técnicas não destrutivas e destrutivas proporciona um melhor entendimento do mecanismo de formação dos defeitos e suas consequências, contribuindo para o desenvolvimento de ligas metálicas e novos materiais que possam atender melhor às aplicações nucleares.

Além dos aços, o aparecimento de novos materiais com possibilidade de aplicação na área nuclear reforçam a importância do estudo dos efeitos da radiação nas propriedades mecânicas destes materiais, como aconteceu com a descoberta^[11], em 1987, de cerâmicas supercondutoras de alta temperatura crítica (T_c) do tipo $YBaCuO$.

A partir desta descoberta foi desencadeada uma intensa atividade de pesquisa em

busca de novos compostos com T_c ainda mais alto. Estas pesquisas por sua vez despertaram interesse em diversas áreas como a nuclear^[12], eletrônica^[13] e espacial^[14]. Na área nuclear, em especial na tecnologia de reatores a fusão, a descoberta e o desenvolvimento de novos supercondutores é de extrema importância. Neste sentido é evidente a necessidade de se conhecer suas propriedades e explicar suas alterações influenciadas por agentes presentes em condições de uso.

Um destes agentes é o efeito da radiação que, dentre outros, pode mudar de modo drástico algumas propriedades como a T_c , e de modo diferente outras propriedades como a capacidade de transportar altas densidades de corrente e a estabilidade em campos magnéticos. Assim, para aplicação destes materiais na tecnologia de reatores, fica claro a necessidade do estudo do comportamento destes materiais quando submetidos a altas doses de radiação.

A técnica de simulação de danos neutrônicos com partículas carregadas seguida da técnica de aniquilação de pósitrons, aplicadas para os aços AISI 316 e 347, foram também aplicadas com sucesso nas cerâmicas supercondutoras de $YBaCuO$ (ver Apêndice), demonstrando mais uma vez suas vantagens e potencialidades no estudo das propriedades dos materiais.

em defeitos bidimensionais (plano de interstícios), ou mesmo tridimensionais (“voids”^[17]). Existe ainda outro tipo de defeito comum a todos os cristais reais, que é a discordância (uma linha de defeitos^[18]).

Os efeitos causados pela irradiação podem ser classificados em uma escala de tempo. Os danos produzidos diretamente por uma irradiação acontecem $\approx 10^{-11}$ s após a interação da partícula incidente com o material exposto, e seus efeitos acontecem muito mais tarde; a *difusão* demora $\approx 10^{-3}$ s, enquanto a *nucleação* e o crescimento de defeitos tridimensionais, por aglomeração de vacâncias, pode demorar até 10^6 s.

Na interação da radiação com a rede cristalina de um material, se a energia transferida para um átomo estacionário for maior que a energia de ligação dos átomos da rede, ele é deslocado. O primeiro átomo deslocado é chamado **átomo primário (AP)**. Se a energia do AP for maior que a energia de ligação, ele é capaz de produzir outros deslocamentos.

O que caracteriza um deslocamento é o fato de um átomo sair de seu *sítio original* sem condições de retornar espontaneamente, ficando em uma posição *intersticial*.

O conjunto de defeitos pontuais produzidos por um AP é chamado *cascata de deslocamento*^[19]. Algumas teorias mais recentes tratam estas cascatas não só como um conjunto de vacâncias isoladas, mas consideram também uma distribuição espacial dos defeitos, seções de choque de transferência de energia baseadas em potenciais interatômicos^[20] (em vez do modelo de *esfera dura*), perda de energia para elétrons do meio, e colisões elásticas entre átomos. Os procedimentos de cálculos atuais incluem ainda a perda de energia associada à periodicidade da rede (focalização e canalização^[21,22]).

Os danos por irradiação não estão restritos a defeitos pontuais isolados. Na verdade, as vacâncias e os interstícios podem ser produzidos tão próximos uns dos outros, que surgem os chamados “clusters”^[23]. Quando a distância entre as sucessivas colisões de um átomo de recuo com um átomo estacionário da rede aproxima-se da distância interatômica, formam-se os defeitos chamados “spike”^[24] (ver também seção (2.3)).

Algumas das partículas que podem causar danos são: fragmentos de fissão, alfas,

nêutrons, prótons, e elétrons. Para o propósito específico deste trabalho serão considerados, além de nêutrons, apenas prótons e alfas.

Se em uma irradiação com partículas carregadas são conhecidos a energia das partículas, o fluxo, e a seção de choque de transferência de energia^[25] entre as partículas e os átomos da rede, é possível calcular o número de AP, em uma determinada faixa de energia, e conseqüentemente o número total de átomos deslocados, usando por exemplo a *teoria de cascata*^[19].

Para uma descrição detalhada do número de defeitos e sua configuração é necessário o conhecimento do potencial de interação entre os átomos do material irradiado. Este potencial só é disponível para distâncias da ordem da separação dos átomos na rede. Entretanto, quando se trata de simulação de nêutrons rápidos as energias envolvidas são mais altas (ordem de *MeV*), e as distâncias envolvidas são muito menores, onde é razoável supor que as colisões entre átomos da rede sejam uma sucessão de colisões elásticas entre dois corpos, porque a distância em que se dá a transferência de energia é muito menor que o parâmetro de rede. Em outras palavras, as interações são tratadas como colisões elásticas entre pares isolados de átomos.

As colisões inelásticas também devem ser consideradas, como é o caso de interações que envolvem ionização ou excitação de elétrons orbitais. Este é o principal processo de perda de energia quando a partícula incidente é muito energética, e neste caso não há produção de deslocamentos, apenas aquecimento da rede.

A transferência de energia de uma partícula incidente, ou átomo, para elétrons acontece a distâncias tão pequenas que este processo pode ser considerado como contínuo, ou seja, o átomo perde energia em sua trajetória como se estivesse atravessando um meio viscoso, sem produzir deslocamentos.

A seguir serão vistos alguns detalhes sobre a interação de partículas que fornecem a base para o cálculo do número de deslocamentos.

2.1.1 Colisões Elásticas

As informações sobre este tipo de colisão são obtidas a partir do potencial de interação, e pela aplicação da conservação do momento e energia. Seja uma partícula incidente de massa M_1 com velocidade V_{1i} , e uma partícula de massa M_2 em repouso. Após o choque, a energia final E_{2f} da partícula que estava em repouso é dada por

$$E_{2f} = \frac{1}{2} \Lambda E_{1i} (1 - \cos \theta), \quad (1)$$

onde

- os índices i, f , significam inicial e final respectivamente.
- θ é o ângulo de espalhamento no referencial do centro de massa.
- foi feita a suposição de que as velocidades envolvidas não são altas o bastante para introduzir correções relativísticas.

No caso de uma colisão frontal ($\theta = \pi$), a energia máxima transferida, T_{max} , é

$$T_{max} = \Lambda E_{1i} \quad (2)$$

com

$$\Lambda = \frac{4M_1M_2}{(M_1 + M_2)^2}. \quad (3)$$

É fácil ver que a energia máxima transferida varia de 0 a E_{1i} , pois o maior valor de Λ é 1, no caso em que $M_1 = M_2$.

A relação entre os ângulos de espalhamento no referencial do laboratório, α e β , e o ângulo θ no referencial do centro de massa (figura (1)), é dada por^[26]

$$tg \alpha = \frac{(M_1/M_2) \text{sen} \theta}{(1 + (M_1/M_2)) \cos \theta}, \quad (4)$$

$$tg \beta = \frac{\text{sen} \theta}{(1 - \cos \theta)}. \quad (5)$$

No caso particular de um choque frontal, a energia cinética do centro de massa torna-se nula no ponto onde as partículas mudam suas trajetórias. Durante o choque a conservação do momento é expressa por

$$V_{C.M.} = \frac{M_1}{M_1 + M_2} v_1 + \frac{M_2}{M_1 + M_2} v_2$$

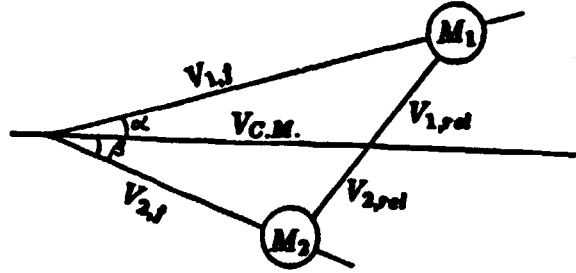


Figura 1: Diagrama vetorial da colisão elástica de duas partículas relacionando as velocidades nos referenciais do laboratório e centro de massa.

com v_1 e v_2 as velocidades no referencial do laboratório.

A energia cinética total K_{tot} em termos de $V_{C.M.}$ é dada por

$$K_{tot} = \frac{(M_1 + M_2)}{2} V_{C.M.}^2 + K_{rel}, \quad (6)$$

onde

$$K_{rel} = \frac{\mu u^2}{2} \quad (7)$$

é a energia cinética relativa das duas partículas,

$$\mu = \frac{M_1 M_2}{(M_1 + M_2)} \quad (8)$$

é a massa reduzida, e

$$u = V_1 - V_2 \quad (9)$$

é a velocidade de uma partícula em relação a outra.

Durante a interação das partículas a energia cinética do centro de massa é conservada, porém a energia cinética relativa (K_{rel}) diminui quando a distância entre as partículas diminui, tornando a energia potencial significativa.

Como a energia total é conservada durante todo o tempo, pode-se escrever

$$K_{rel,i} = K_{rel}(x) + V(x), \quad (10)$$

onde $V(x)$ é a energia potencial de interação e $K_{rel,i}$ é a energia cinética relativa inicial, quando as duas partículas estão separadas por uma distância infinitamente grande, com $V(\infty) \rightarrow 0$.

Como ilustração, vamos calcular $V(x)$ para o caso particular em que a separação x' entre os átomos é tal que a energia cinética é zero, $M_1 = M_2 = M$, e o átomo alvo está em repouso

$$K_{rel}(x') + V(x') = K_{rel,i}. \quad (11)$$

Como

$$K_{rel,i} = \frac{\mu u^2}{2} = \left(\frac{M}{4}\right)V_1^2, \quad (12)$$

$$V(x') = \frac{MV_1^2}{4} = \frac{K_i}{2} \quad (13)$$

onde $K_i = \frac{MV_1^2}{2}$ é a energia cinética inicial. Logo, a energia potencial a esta distância é a metade da energia cinética inicial.

A seção seguinte faz uma rápida revisão de alguns conceitos indispensáveis ao cálculo do número de deslocamentos.

2.1.2 Seção de Choque de Transferência de Energia

A probabilidade (P) de haver colisão entre uma partícula incidente, com energia E , e um átomo em um elemento de volume (dV) de um sólido, é função da densidade volumétrica (N) de átomos e da área projetada (σ) pelo átomo alvo (figura (2))

$$P(E) = N\sigma(E)dx. \quad (14)$$

Esta equação define a seção de choque total de colisão $\sigma(E)$.

Para o caso especial em que a partícula incidente com energia E , transfere para partícula alvo, uma energia entre T e $T + dT$, a probabilidade^[27] $P(E,T)$ de haver este tipo de colisão é

$$P(E,T)dT = N\sigma(E,T)dTdx. \quad (15)$$

Analogamente, esta equação define a seção de choque diferencial de transferência de energia^[28] $\sigma(E,T)dT$.

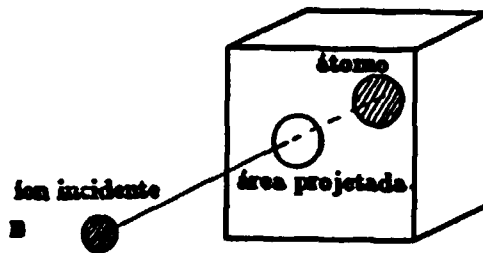


Figura 2: Representação da interação partícula-sólido.

A relação entre a seção de choque total e a diferencial é

$$\sigma(E) = \int_0^{T_{max}} \sigma(E, T) dT; \quad (16)$$

o limite superior da integral em (16) é o maior valor possível da energia transferida.

A probabilidade de colisão com desvio angular entre θ e $\theta + d\theta$ da trajetória da partícula incidente, no referencial do centro de massa, é dada por

$$P(E, \theta) d\theta = N \sigma(E, \theta) d\Omega dx, \quad (17)$$

onde $d\Omega$ é um elemento de ângulo sólido (figura (3))

$$d\Omega = 2\pi d(\cos \theta),$$

e $\sigma(E, \theta) d\Omega$ é a seção de choque diferencial angular^[29]

Para colisões elásticas, a equação (1) fornece uma relação entre T e θ , assim a seção de choque diferencial angular $\sigma(E, \theta)$ esta relacionada com a seção de choque diferencial de transferência de energia $\sigma(E, T)$ por

$$2\pi\sigma(E, \theta) d(\cos \theta) = \sigma(E, T) dT \quad (18)$$

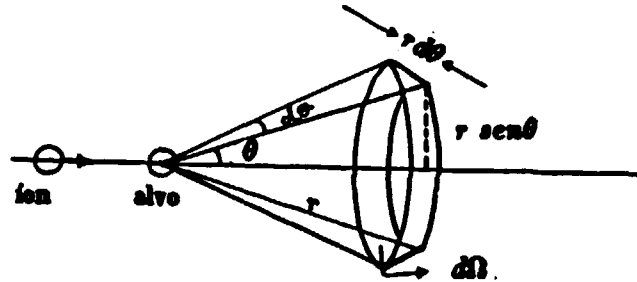


Figura 3: Ângulo sólido.

ou

$$\sigma(E, T) = 2\pi\sigma(E, \theta(T)) \left| \frac{d(\cos \theta)}{dT} \right|, \quad (19)$$

ou ainda

$$\sigma(E, T) = \frac{4\pi}{\Lambda E} \sigma(E, \theta(T)). \quad (20)$$

A equação (20) permite o cálculo de $\sigma(E, T)$ quando se conhece $\sigma(E, \theta)$

2.1.3 Características de um Feixe de Íons

Corrente e Fluxo

Para a produção de danos utilizando aceleradores tem-se como parâmetros conhecidos em um feixe de partículas, o fluxo e a energia das partículas.

Por definição, a corrente total (I) de um feixe é o número de partículas por unidade de tempo que cruzam um plano de área unitária perpendicular à direção do feixe.

O fluxo total (Φ) é definido como o número de partículas que cruzam uma esfera de área projetada unitária, por unidade de tempo. O fluxo diferencial ($\Phi(E)dE$), definido para partículas com energia entre E e $E + dE$, está relacionado com o fluxo total por

$$\Phi = \int_0^{\infty} \Phi(E)dE. \quad (21)$$

Poder de Freamento e Alcance

O poder de freamento é dado pela quantidade de energia perdida por unidade de comprimento percorrido em um meio. A equação (15) descreve a probabilidade de acontecer uma colisão em um determinado intervalo dx com transferência de energia entre T e $T + dT$

$$P(E, T)dT = N\sigma(E, T)dTdx.$$

Multiplicando-se esta probabilidade pela energia transferida T e integrando para todos os valores possíveis de T , tem-se a energia média perdida em dx , ou seja,

$$\langle dE \rangle = \int_{T_0}^{T_{max}} TP(E, T)dT = N \int_{T_0}^{T_{max}} T\sigma(E, T)dTdx, \quad (22)$$

onde T_{max} é a energia máxima transferida e T_0 a energia mínima transferida em uma colisão, (numa colisão elástica $T_{max} = \Lambda E$).

Dividindo por dx tem-se o poder de freamento

$$\frac{dE}{dx} = N \int_{T_0}^{T_{max}} T\sigma dT. \quad (23)$$

O alcance total R é definido^[30] como o comprimento percorrido pela partícula, dentro de um sólido, desde a entrada até o ponto em que não tenha mais energia cinética (figura (4)).

Até a parada total da partícula incidente acontecem colisões com átomos do material. A distância entre duas colisão sucessivas é aproximadamente igual ao caminho livre médio l_d :

$$l_d = \frac{1}{N\sigma(E)}. \quad (24)$$

Assim, o alcance total pode ser definido como a soma das distâncias entre as colisões

$$R = \langle \sum_i l_d^i \rangle. \quad (25)$$

A relação entre o alcance e o poder de freamento é dada por

$$R(E) = \int_0^R dx = \int_0^R \frac{dE'}{(dE'/dx)}. \quad (26)$$

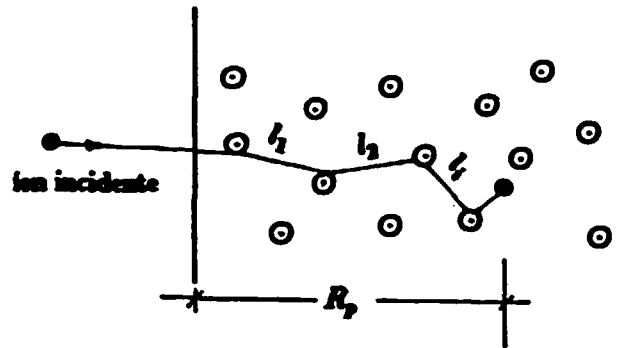


Figura 4: Esquema da trajetória de um íon incidente em um sólido mostrando o alcance projetado.

Pode ser definido ainda o alcance projetado R_p ^[31], como a componente do alcance total ao longo da direção inicial da partícula incidente

$$R_p = \sum_i l_d^i \cos(\theta_i), \quad (27)$$

onde θ_i é o ângulo entre l_d^i e a direção inicial da partícula.

2.1.4 Relação entre $V(x)$ e $\sigma(E, T)$

Na teoria de danos por irradiação a seção de choque diferencial de transferência de energia $\sigma(E, T)$, para a interação de partículas separadas por uma distância r , é determinada por meio da função potencial $V(r)$, ou seja, a energia potencial está implícita na seção de choque que determina as condições do processo de perda de energia.

Apenas algumas funções $V(r)$ podem ser convertidas em expressões analíticas para a seção de choque diferencial. Como não existe uma função potencial simples que se aplique para todos os valores de r vamos considerar, para os fins deste trabalho, apenas casos limites em que a energia ou é muito alta, ou é próxima da energia térmica. Nestes casos limites, as principais contribuições a serem consideradas são a repulsão eletrostática e o aumento da energia necessária para manter a sobreposição das nuvens eletrônicas. Esta

energia aumenta quando a separação diminui, pois envolve a superposição de um número maior de orbitais.

Para separações da ordem do parâmetro de rede a repulsão nuclear é pequena porque as cargas nucleares estão praticamente blindadas pelos elétrons. Esta interação pode ser descrita pelo potencial de Born-Mayer^[32]

$$V(r) = Ae^{-r/\rho} , \quad (28)$$

onde A e ρ são obtidos das propriedades de equilíbrio do sólido.

Quando a separação entre os núcleos é menor que o raio da camada mais interna, a repulsão eletrostática é a principal contribuição para a energia potencial, e neste caso o potencial coulombiano torna-se adequado

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2}{r} . \quad (29)$$

Em estudos de danos por irradiação, a situação mais comum é aquela intermediária onde $\text{camada } k < r < \text{parâmetro de rede}$, ou seja a região onde a blindagem eletrônica e a repulsão coulombiana são comparáveis. Neste caso o potencial é o chamado potencial *coulombiano-blindado* que atenua a repulsão coulombiana pura

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2}{r} \Phi(r/a) , \quad (30)$$

onde Z_1 e Z_2 são os números atômicos dos átomos envolvidos, a é o raio de blindagem e Φ a função que descreve a blindagem.

Vários são os tipos de potenciais propostos^[20], e em princípio estes potenciais podem ser *transformados* em uma seção de choque diferencial angular $\sigma(E, \theta)$, usando a primeira regra de ouro^[33]. A partir desta seção de choque, pode-se obter a seção de choque de transferência de energia $\sigma(E, T)$ (ver equação (20)).

Em estudos de danos por irradiação, um outro potencial de grande interesse é o de esferas duras,

$$V(r) = \begin{cases} \infty & \text{para } r < 2r_0 \\ 0 & \text{para } r > 2r_0 \end{cases} \quad (31)$$

onde r_0 é o raio de colisão das esferas.

A seção de choque angular para espalhamento de esferas duras é isotrópica no referencial do centro de massa, ou seja

$$\sigma(E, \theta) = \pi(2r_0)^2 / (4\pi) . \quad (32)$$

Da equação (20),

$$\sigma(E, T) = 4\pi\sigma(E, \theta) / \Lambda E ,$$

então

$$\sigma(E, T) = \pi(2r_0)^2 / \Lambda E = 4\pi r_0^2 / \Lambda E , \quad (33)$$

ou

$$\sigma(E, T) = \sigma(E) / \Lambda E . \quad (34)$$

Com este modelo simples, fica fácil o cálculo do poder de freamento

$$\frac{1}{N} \frac{dE}{dx} = \int_{T_0}^{T_{max}} T \sigma(E, T) dT = \frac{4\pi r_0^2}{2\Lambda E} (T_{max}^2 - T_0^2) , \quad (35)$$

usando a equação (2), $T_{max} = \Lambda E$, e supondo $T_0 = 0$

$$\frac{1}{N} \frac{dE}{dx} = 2\pi r_0^2 \Lambda E . \quad (36)$$

Pode-se ainda introduzir modificações para que este potencial descreva, por exemplo, uma variação de r_0 com a energia da partícula incidente. É o chamado modelo de esfera-dura dependente da energia. Para isto, basta impor que a distância mínima de aproximação seja $2r_0$. Para o caso em que as massas são iguais já foi visto que, a uma separação x_m tal que a energia cinética seja nula, $V(x_m) = E/2$ (ver a eq. (13)). Assim, fazendo $x_m = 2r_0$ tem-se

$$V(2r_0) = E/2 . \quad (37)$$

Para o potencial coulombiano blindado, este procedimento resulta em

$$V(2r_0) = e^{-2r_0/a} \frac{Z_1 Z_2 e^2}{2r_0} = E/2 . \quad (38)$$

E, no caso de átomos iguais,

$$\frac{Z^2 e^2}{E} = r_0 e^{2r_0/a} . \quad (39)$$

Um fato relevante que distingue as seções de choque de transferência de energia, obtidas a partir de diferentes potenciais, é a dependência com a energia transferida.

Tomando como exemplo as seções de choque para os modelos de esfera dura e coulombiano e usando a relação (20):

- para esfera dura, a seção de choque

$$\sigma(E, T) = \frac{4\pi r_0^2}{\Lambda E}$$

não depende de T , ou seja, a probabilidade de transferir uma energia T entre 0 e T_{max} , é constante.

- para o potencial do tipo coulombiano, $V(r) = V_0/r$, a seção de choque é dada por^[34]

$$\sigma(E, T) \propto \frac{1}{ET^2}, \quad (40)$$

ou seja, a seção de choque de transferência de energia para este potencial mostra um *favorecimento* para menores transferências de energia e conseqüentemente, para valores baixos de θ .

2.1.5 Processo de Perda de Energia para Elétrons do Meio

Em experiências de simulação de danos a energia máxima da partícula incidente é da ordem de dezenas de MeV . Esta partícula pode arrancar elétrons orbitais produzindo íons, que por sua vez podem transferir energia para outros elétrons, através de interações coulombianas.

Partindo da equação (40), onde a constante de proporcionalidade^[34] é $\pi Z_1^2 e^4 \frac{M_1}{m_e}$, fazendo Z_1 e M_1 a carga e a massa do íon que está se movendo na rede cristalina, e m_e a massa do elétron, a seção de choque íon-elétron fica

$$\sigma(E, T)_e = \frac{\pi Z_1^2 e^4 M_1}{m_e ET_e^2}, \quad (41)$$

onde T_e é a energia transferida do íon para o elétron.

A partir desta seção de choque e da eq. (23), pode-se obter o poder de freamento eletrônico, que é dado por

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_e = \frac{N\pi Z_1^2 e^4 M_1}{m_e E} \int_{T_0}^{T_{max}} \frac{1}{T_e} dT_e, \quad (42)$$

onde N é a densidade atômica do sólido.

Fazendo $T_0 = \bar{I}$, energia média de ionização dos átomos do alvo, e $T_{max} = \frac{4m_e E}{M_1}$, a energia máxima transferida para o elétron,

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_e = \frac{\pi N Z_1^2 e^4 M_1}{m_e E} \ln \frac{4E m_e}{M_1 \bar{I}}. \quad (43)$$

Esta fórmula é válida apenas onde o poder de freamento é decrescente com a energia, e para situações de interesse deste trabalho, ela não se aplica, pois os átomos primários criados por nêutrons rápidos e outros tipos de irradiação que simulam esta condição não são suficientemente energéticos.

Entretanto, para cálculo do número de deslocamentos, é necessário considerar a fração de energia perdida por ionização, isto porque esta energia perdida não colabora para produção de deslocamentos. Para considerar esta perda não conservativa de energia, o que se faz é introduzir um artifício matemático, estipulando-se uma energia limiar de ionização E_i , acima da qual o processo de perda de energia acontece apenas por excitação eletrônica ou ionização.

Com este artifício tem-se duas situações:

- se $T > E_i$ acontece a perda de energia apenas por eventos eletrônicos, e não há produção de deslocamentos.
- se $T < E_i$ acontece a perda de toda a energia por colisões elásticas que produzem deslocamentos ou vibrações da rede.

Na realidade, não existe um *corte* deste tipo no mecanismo de perda de energia, porém, como já foi dito, é um artifício matemático conveniente. O valor de E_i depende da estrutura eletrônica do sólido. Para metais, Dienes e Vineyard^[35], calcularam que E_i pode ser dado aproximadamente por

$$E_i \simeq A \text{ keV}, \quad (44)$$

onde A é o peso atômico do átomo que compõe o sólido.

Maiores detalhes sobre a perda de energia para elétrons serão vistos na seção (2.1.7), onde são apresentados procedimentos para o cálculo do número de deslocamentos.

2.1.6 Energia de Deslocamento

A energia de ligação de um átomo na superfície de um sólido, é de aproximadamente 5 eV . Este valor é obtido a partir do calor de sublimação e de dados termodinâmicos. Assim, a energia necessária para deslocar um átomo no interior do sólido é, naturalmente, maior que 5 eV , pois envolve a quebra de um número maior de ligações. A quantidade mínima necessária para que um átomo seja deslocado de seu sítio, é chamada energia de deslocamento, E_d .

Os primeiros resultados^[36] mostraram valores entre 18 e 43 eV , (para o cobre). Esta variação é atribuída à estrutura cristalográfica do sólido, pois a barreira potencial que envolve um átomo da rede em sua posição de equilíbrio não é uniforme em todas as direções.

Se em uma colisão, a energia transferida T for menor que E_d , o átomo colidido sofrerá variações na amplitude de vibração, sem deixar o poço de potencial que forma sua posição estável na rede. A energia transferida é então transformada em calor, por meio de vibrações comunicada aos átomos mais próximos. Se a energia transferida T for maior que E_d , o átomo colidido é capaz de ultrapassar a barreira de potencial, e ocupar um outro sítio da rede (ex. uma região intersticial).

A direção dentro do sólido, adquirida por um átomo colidido, é determinada pelas condições em que acontece a colisão, ou seja depende da dinâmica da colisão, e portanto, a direção é aleatória em uma esfera centrada na posição de equilíbrio^[34].

Se a direção é tal que a disposição dos átomos vizinhos, é favorável a absorção de energia do átomo colidido, diz-se então que a barreira potencial é alta. Porém, se a barreira potencial em uma posição de simetria assemelha-se a um vale, diz-se que a barreira é baixa. Um exemplo de barreira baixa é a direção $[111]$ na rede *cfc* (cúbica de face centrada).

O valor de E_d pode ser calculado se o potencial entre os átomos da rede for conhecido. Para isto basta somar as energias de interação entre o átomo colidido, e todos os seus vizinhos mais próximos, em cada posição ao longo da trajetória percorrida por este átomo. Quando a energia potencial atinge um máximo em uma determinada direção, a diferença entre a energia neste ponto e a energia na posição de equilíbrio é E_d . Portanto, a energia de deslocamento depende da direção na rede.

Na verdade, existe uma variação ΔE_d , em torno de E_d em que o deslocamento acontece. Um modo de incorporar esta variação no cálculo do número de deslocamentos, é através do conceito de probabilidade de deslocamento em função da energia transferida $P_d(T)$. Esta função descreve a probabilidade com que um átomo colidido seja deslocado, após ter recebido energia T .

Assim tem-se

$$P_d(T) = \begin{cases} 0 & \text{para } T < E_d - \Delta E_d \\ f(T) & \text{para } E_d - \Delta E_d < T < E_d + \Delta E_d \\ 1 & \text{para } T > E_d + \Delta E_d \end{cases} \quad (45)$$

Existem várias formulações^[37] para função $f(T)$, a mais usada é a função *degrau* para a probabilidade, onde $\Delta E_d = 0$. Assim a equação (45) reduz-se a

$$P_d(T) = 0 \quad \text{para } T < E_d$$

$$P_d(T) = 1 \quad \text{para } T > E_d. \quad (46)$$

Este será o modelo usado neste trabalho, onde E_d é fixado em torno de 25 eV.

2.1.7 Cálculo de Número de Deslocamentos

Será feito nesta seção uma revisão dos procedimentos para o cálculo do número de deslocamentos. Para este cálculo, o fato mais importante a ser considerado é sem dúvida, a produção de deslocamentos por AP. Será usada a notação $n(E)$, para descrever o número de deslocamentos produzidos por um AP de energia E .

Será apresentado o modelo devido a Kinchin-Pease^[38], no qual são impostas algumas aproximações que serão discutidas ao longo da apresentação. Vale lembrar, que os

cálculos apresentados serão sempre dirigidos para a simulação de danos neutrônicos com partículas carregadas.

O nome comumente usado para o modelo teórico de Kinchin-Pease é, *Teoria de cascata de deslocamentos*, e está baseado nas seguintes suposições:

- considera-se que esta *cascata de deslocamentos* seja criada por uma sequência de colisões elásticas entre dois corpos,
- a probabilidade de deslocamento é dada pela equação (46), estipulando-se uma energia limiar de deslocamento,
- a energia de deslocamento é desprezada no balanço de energia de colisões binárias,
- a perda de energia para elétrons de meio, tem um valor limite dado pela eq. (44), ou seja para energias menores que E_i , a perda só se dá por colisões entre átomos e não mais para elétrons do meio,
- é assumido o modelo de esfera dura para as colisões atômicas, assim a seção de choque de transferência de energia é dada pela eq. (34).

Para o cálculo do número de deslocamentos produzidos por um átomo primário de energia E , considere as três situações da figura (5).

- (a) um instante antes da colisão, o átomo primário possui energia E e o átomo da rede é suposto estar em repouso.
- (b) um instante após o choque, o átomo primário transfere energia T para o átomo da rede e continua movendo-se com energia $E - T$,
- (c) o átomo primário, agora com energia $E - T$, desloca outro átomo da rede transmitindo energia T' , restando-lhe energia $E - T - T'$, enquanto o átomo secundário de energia T , transmite energia T'' para um átomo terciário restando-lhe energia $T - T''$.

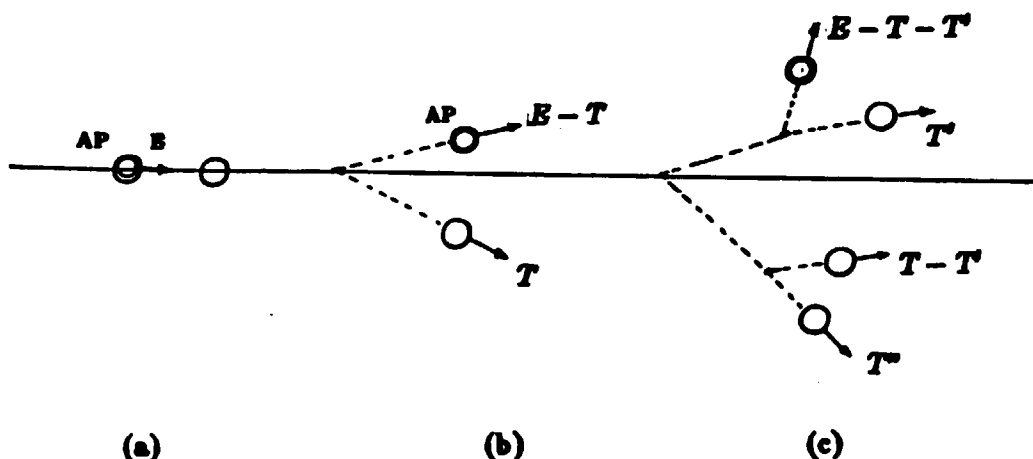


Figura 5: Cascata de deslocamento produzida pela colisão de um AP de energia E com transferência de energia T .

Supondo que a energia de cada um dos quatro átomos, figura (5c), não seja suficiente para produzir mais deslocamentos, como resultado final da colisão tem-se 4 átomos deslocados.

Observe que em um instante intermediário, figura (5b), o número de átomos que está se movendo, produzirá o mesmo número de deslocamentos que o átomo primário de energia E , ou seja

$$n(E) = n(E - T) + n(T) . \quad (47)$$

Esta é uma situação particular, mas que pode ser generalizada afirmando-se que a quantidade de átomos que está se movendo, em um estágio intermediário, produzirá o mesmo número de deslocamentos que o átomo primário de energia E . Assim, pode-se dizer que a quantidade $n(E)$ é *conservada*, isto é, ela pode ser determinada conhecendo-se a distribuição de energia dos átomos que estão se movendo em um instante intermediário, ou seja, depois da produção do AP, mas antes da configuração final.

Para o cálculo de $n(E)$, é necessário também o valor da energia transferida T . Em uma colisão, se a probabilidade de transferir energia entre T e $T + dT$ é conhecida, o cálculo do número de deslocamentos pode ser obtido multiplicando esta probabilidade

pela equação (47), e integrando para todos os valores possíveis de T .

Para um sólido monoatômico, os átomos da rede são idênticos ao átomo primário, assim a energia transferida pode assumir qualquer valor entre 0 e E , e a probabilidade de transferência de energia (ver eq. (34)), é escrita como

$$\frac{\sigma(E, T)}{\sigma(E)} dT = \frac{dT}{E}, \quad (48)$$

multiplicando por (47)

$$n(E) \frac{\sigma(E, T)}{\sigma(E)} dT = n(E - T) \frac{\sigma(E, T)}{\sigma(E)} dT + n(T) \frac{\sigma(E, T)}{\sigma(E)} dT \quad (49)$$

integrando

$$\frac{n(E)}{\sigma(E)} \int_0^E \sigma(E, T) dT = \frac{1}{\sigma(E)} \int_0^E n(E - T) \sigma(E, T) dT + \frac{1}{\sigma(E)} \int_0^E n(T) \sigma(E, T) dT \quad (50)$$

como

$$\int_0^E \sigma(E, T) dT = \sigma(E)$$

logo,

$$n(E) = \frac{1}{\sigma(E)} \left\{ \int_0^E n(E - T) \sigma(E, T) dT + \int_0^E n(T) \sigma(E, T) dT \right\}, \quad (51)$$

fazendo uma mudança de variável

$$T \rightarrow T' \text{ com } T' = E - T \text{ e } dT = -dT'.$$

Assim,

$$n(E) = \frac{1}{\sigma(E)} \left\{ \int_0^E n(T') \sigma(E, T') dT' + \int_0^E n(T) \sigma(E, T) dT \right\} \quad (52)$$

as duas integrais são iguais, portanto

$$n(E) = \frac{2}{\sigma(E)} \int_0^E n(T) \sigma(E, T) dT. \quad (53)$$

Antes de resolver esta integral, deve-se considerar que, se a energia E do átomo primário for menor que E_d não acontece deslocamento, ou seja

$$E < E_d \Rightarrow n(E) = 0.$$

Além disso, se a energia do átomo primário antes de uma colisão está entre E_d e $2E_d$, tem-se apenas um átomo deslocado, porque a quantidade mínima E_d é usada para deslocar o átomo colidido, restando ao primário energia menor que E_d , que é insuficiente para produzir outros deslocamentos, sendo dissipada em forma de calor (vibração da rede), ou seja

$$E_d < E < 2E_d \Rightarrow n(E) = 1.$$

Assim, pode-se dividir a integral em regiões de energia

$$n(E) = \frac{2}{\sigma(E)} \left\{ \int_{E_d}^{2E_d} \sigma(E, T) dT + \int_{2E_d}^E n(T) \sigma(E, T) dT \right\}. \quad (54)$$

Como o potencial suposto para colisão é o de esfera dura,

$$\frac{\sigma(E, T)}{\sigma(E)} dT = \frac{1}{\Lambda E} dT$$

Voltando em (54)

$$n(E) = 2 \left\{ \int_{E_d}^{2E_d} \frac{dT}{\Lambda E} + \int_{2E_d}^E \frac{n(T)}{\Lambda E} dT \right\} \quad (55)$$

ou ainda,

$$n(E) \Lambda E = 2E_d + 2 \int_{2E_d}^E n(T) dT, \quad (56)$$

derivando com relação a E

$$\frac{dn \Lambda E}{dE} + \Lambda n = \frac{d(2E_d)}{dE} + 2n$$

ou

$$\Lambda E \frac{dn}{dE} = (2 - \Lambda)n. \quad (57)$$

Para um sólido monoatômico, $\Lambda = 1$

$$E \frac{dn}{dE} = n, \quad (58)$$

esta é uma equação diferencial com solução do tipo

$$n = C E, \quad (59)$$

onde C é obtido substituindo (59) em (56)

$$C = \frac{1}{2E_d}.$$

voltando em (59)

$$n(E) = \frac{E}{2E_d}, \quad (60)$$

para $2E_d < E < E_i$, onde E_i é a energia linear de ionização, definida na seção (2.1.5), acima da qual não há produção de deslocamento, apenas ionização ou excitação eletrônica. Deste modo, quando o átomo primário tem energia maior que E_i , o número de deslocamentos por AP é dado por

$$n(E) = \frac{E_i}{2E_d}. \quad (61)$$

Resumindo os resultados tem-se

$$n(E) = \begin{cases} 0 & \text{para } E \leq E_d \\ 1 & \text{para } E_d \leq E \leq 2E_d \\ \frac{E}{2E_d} & \text{para } 2E_d < E < E_i \\ \frac{E_i}{2E_d} & \text{para } E \geq E_i \end{cases} \quad (62)$$

Representando graficamente estes resultados, figura (6).

Esta hipótese do *cut-off* no valor da energia transferida E_i , onde o processo de perda de energia se dá apenas por eventos eletrônicos, foi apenas um artifício. Um tratamento mais próximo da realidade é considerar a independência dos processos de perda de energia, o que equivale a dizer que a perda de energia por colisões de *primários* com elétrons, compete com a perda por colisões com átomos da rede. Assim, as seções de choque de transferência de energia são consideradas separadamente e independentes uma da outra.

Quando um átomo primário de energia E , penetra uma profundidade dx em um sólido existem três casos possíveis:

- pode haver uma colisão do primário com um elétron
- pode haver uma colisão do primário com um átomo da rede
- pode não ocorrer colisão alguma

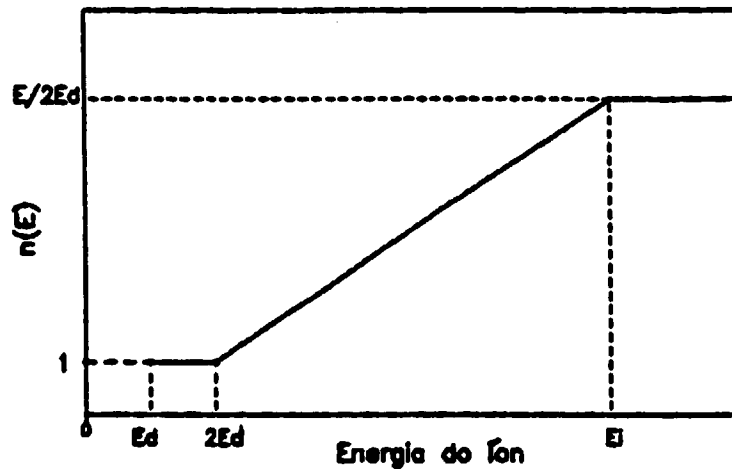


Figura 6: Modelo de Kinchin-Pease para o número de deslocamento n em função da energia E , do átomo primário.

No primeiro caso a probabilidade de ocorrer uma colisão com transferência de energia entre T_e e $T_e + dT_e$ é dada por

$$P_e dT_e = N \sigma_e(E, T_e) dT_e dx, \quad (63)$$

onde $\sigma_e(E, T_e)$ é a seção de choque de transferência de energia T_e de um átomo primário de energia E , para um elétron.

No segundo caso, a probabilidade de ocorrer uma colisão atômica com transferência de energia entre T_a e $T_a + dT_a$ é dada por

$$P_a dT_a = N \sigma_a(E, T_a) dT_a dx \quad (64)$$

aqui, $\sigma_a(E, T_a)$ é a seção de choque de transferência de energia T_a de um átomo primário de energia E , para um átomo da rede, e N é a densidade de átomos do sólido.

No terceiro caso, a probabilidade de não ocorrer colisão, é obviamente

$$P_0 = 1 - (\text{probabilidade de haver colisão})$$

Assim de (63) e (64)

$$P_0 = 1 - N dx \{ \sigma_e(E) + \sigma_a(E) \}, \quad (65)$$

onde $\sigma_e(E)$ é a seção de choque para colisões com elétrons e $\sigma_a(E)$, a seção de choque para colisões com átomos.

Considerando o princípio da interdependência dos processos de perda de energia, pode-se escrever

$$n(E) = \int_0^E n(E, T_a) P_a dT_a + \int_0^{T_e^{max}} n(E, T_e) P_e dT_e + P_0 n(E), \quad (66)$$

onde $n(E, T_a)$ é o número de deslocamentos produzidos por um primário de energia E , com transferência de energia T_a para um átomo da rede.

$n(E, T_e)$ é o número de colisões de um primário de energia E , com transferência de energia T_e para um elétron.

Usando agora, o princípio da conservação de $n(E)$, (ver eq. (47))

$$n(E) = \int_0^E [n(E - T_a) + n(T_a)] P_a dT_a + \int_0^{T_e^{max}} n(E - T_e) P_e dT_e + P_0 n(E). \quad (67)$$

Na segunda integral do segundo termo não estão sendo considerados os deslocamentos produzidos por elétrons, ou seja $T_e \ll E$.

Substituindo os valores de P_a , P_e e P_0 , nas equações (63), (64) e (65), e após uma simplificação

$$n(E) = \frac{1}{[\sigma_e(E) + \sigma_a(E)]} \int_0^E [n(E - T_a) + n(T_a)] \sigma_a(E, T_a) dT_a + \int_0^{T_e^{max}} n(E - T_e) \sigma_e(E, T_e) dT_e. \quad (68)$$

Como a energia transferida para o elétron é muito menor que a energia do átomo primário, pode-se expandir $n(E - T_e)$, em série de Taylor.

$$n(E - T_e) = n(E) - \frac{dn}{dE} T_e \quad (69)$$

substituindo em (68) e simplificando,

$$n(E) \sigma_a(E) = \int_0^E [n(E - T_a) + n(T_a)] \sigma_a(E, T_a) dT_a - \frac{dn}{dE} \int_0^{T_e^{max}} T_e \sigma_e(E, T_e) dT_e, \quad (70)$$

este último termo, por definição, é o poder de freamento do meio dividido pela densidade N de átomos, e multiplicado por $\frac{dn}{dE}$

$$n(E)\sigma_a(E) = \int_0^E [n(E - T_a) + n(T_a)]\sigma_a(E, T_a)dT_a - \frac{1}{N} \left(\frac{dE}{dx} \right)_e \frac{dn}{dE}, \quad (71)$$

dividindo por $\sigma_a(E)$ e tirando o subíndice a , tem-se

$$n(E) + \frac{1}{N\sigma(E)} \frac{dn}{dE} \left(\frac{dE}{dx} \right)_e = \int_0^E [n(E - T) + n(T)] \frac{\sigma(E, T)}{\sigma(E)} dT \quad (72)$$

observe que, quando o freamento eletrônico é desprezado,

$$\left(\frac{dE}{dx} \right)_e \rightarrow 0,$$

e quando se adota o modelo de esfera dura,

$$\frac{\sigma(E, T)}{\sigma(E)} dT = \frac{dT}{E}$$

a equação (71) fica

$$n(E) = \int_0^E [n(E - T) + n(T)] \frac{dT}{E}, \quad (73)$$

que é a forma original do modelo de Kinchin-Pease.

2.2 Produção de Danos com Nêutrons e Íons

A partir do cálculo do número de deslocamentos $n(E)$, produzidos por um átomo primário, e utilizando o conceito de seção de choque de deslocamento na *teoria de cascata*, será feito o cálculo da taxa de produção de deslocamentos por nêutrons e íons. Em seguida será feita uma comparação entre danos produzidos por diferentes espectros de nêutrons e íons.

2.2.1 Seção de Choque de Deslocamento

Como visto na sec. (2.1.1), a energia máxima transferida para um átomo primário T_{max} , por uma partícula incidente de energia E , é dada por

$$T_{max} = \frac{4EMm}{(M + m)^2},$$

quando a partícula incidente é um nêutron de energia E_n , esta equação reduz-se a

$$T_{max} = \frac{4E_n}{A}, \quad (74)$$

onde A é o peso atômico do átomo primário, e se supõe que seja muito maior que o peso do nêutron

$$\frac{A}{(1+A)^2} \rightarrow \frac{1}{A} \text{ para } A \gg 1.$$

De (74), pode-se observar que T_{max} não depende da interação, contudo, a distribuição de energia dos átomos *primários* depende do tipo de interação, e por este motivo é útil escrever esta distribuição de energia dos *primários*, em função da probabilidade com que cada interação acontece ou seja, a seção de choque.

Para se obter esta função, define-se a seção de choque por unidade de energia $S(E, T)$, como sendo a probabilidade por unidade de energia com que uma partícula incidente de energia E , interage com um átomo (primário) da rede. Pode-se definir também, a seção de choque diferencial, onde a energia transferida esteja no intervalo $T + dT$ como

$$d\sigma(E, T) = S(E, T)dT. \quad (75)$$

A seção de choque total é obviamente

$$\sigma = \int_0^{T_{max}} S(E, T)dT. \quad (76)$$

Entretanto, nesta seção de choque estão incluídas todas as interações, mesmo aquelas em que a energia transferida T , não é suficiente para provocar um deslocamento. Se for imposto, como limite inferior de integração o valor E_d , serão consideradas apenas as interações que provocam deslocamentos, com isto tem-se a *seção de choque de deslocamento* σ_d

$$\sigma_d = \int_{E_d}^{T_{max}} S(E, T)dT. \quad (77)$$

Assim, pode-se escrever a *seção de choque diferencial de deslocamento* S_d , como

$$d\sigma_d = S_d(E, T)dT. \quad (78)$$

Observe agora que $S_d(E, T)$ é a probabilidade de interação com a produção de deslocamento.

A seção de choque diferencial de deslocamento $d\sigma_d$, pode também ser escrita de outra forma, em função da distribuição de energia T , transferida aos átomos *primários*. Para descrever esta distribuição, seja a função $D(E, T)$ definida como a probabilidade por unidade de energia, que em uma dada colisão, a energia transferida seja um certo valor T .

Impondo a condição que haja deslocamento, ou seja, que $T > E_d$, a função D modifica-se para $D_d(E, T)$, e analogamente a S_d , passa a ser a distribuição de energia transferida T , com $T > E_d$.

Assim, a seção de choque diferencial de deslocamento $d\sigma_d$, em termos de D_d , é reescrita como

$$d\sigma_d = \sigma_d D_d(E, T) dT, \quad (79)$$

usando a equação (78)

$$D_d(E, T) = \frac{S_d(E, T)}{\sigma_d}. \quad (80)$$

Esta equação relaciona a distribuição D , de energia dos *primários* com a seção de choque de deslocamento, que será útil na comparação de deslocamentos produzidos por diferentes tipos de radiação, (ver seção (2.2.4)).

2.2.2 Deslocamentos Produzidos por Nêutrons

No caso mais simples, nêutrons monoenergéticos, a taxa de interação R , é dada por

$$R = N \times (\xi \times v) \times \sigma. \quad (81)$$

O produto $(\xi \times v)$, número de nêutrons \times velocidade, é o fluxo ϕ de nêutrons e N é a densidade de partículas do alvo. Se o número de átomos deslocado por cada interação é n , então o número de deslocamentos por unidade de tempo é $(R \times n)$.

No caso de um espectro de nêutrons tem-se um fluxo $\phi(E_n)$, onde E_n é a energia do nêutron. Com isto, a taxa com que os átomos são deslocados por este fluxo é

$$R_d = N \int_{E_d/\Lambda}^{\infty} \phi(E_n) dE_n \int_{E_d}^{T_{max}} S_d(E_n, T) dT, \quad (82)$$

onde E_d/Λ é a energia mínima do nêutron para produzir um deslocamento.

A segunda integral é a seção de choque de deslocamento σ_d , dada pela equação (77).

De (80) tem-se

$$R_d = N \int_{E_d/\Lambda}^{\infty} \phi(E_n) dE_n \int_{E_d}^{T_{max}} \sigma_d D_d(E_n, T) dT . \quad (83)$$

No caso de nêutrons monoenergéticos $\phi(E_n) \rightarrow \phi$, e

$$R_d = N \sigma_d D_d(E_n, T) \phi \quad (84)$$

As equações (83) e (84) representam a taxa de produção de deslocamento apenas de *primários*. Para calcular a taxa de deslocamento total R_d^{tot} , deve-se considerar o número de deslocamentos produzidos pelos *primários*. Para isso, introduz-se $n(T)$ nas equações acima

$$R_d^{tot} = N \int_{E_d/\Lambda}^{\infty} \phi(E_n) dE_n \sigma_d \int_{E_d}^{T_{max}} n(T) D_d(E_n, T) dT . \quad (85)$$

No caso de um feixe monoenergético de nêutrons

$$R_d^{tot} = N \phi \sigma_d n(T) \quad (86)$$

Como um nêutron de energia E_n , produz em média um átomo primário de energia $T_{max}/2$ ou $\Lambda E_n/2$ em cada colisão, o número médio de deslocamentos $\langle n(T) \rangle$, produzido por um nêutron de energia E_n , pode ser escrito como

$$\langle n(T) \rangle = n(\langle T \rangle) = n(\Lambda E_n/2) . \quad (87)$$

Assim, a taxa R_d^{tot} em (86) pode ser reescrita como

$$R_d^{tot} = N \phi \sigma_d \langle n(T) \rangle = N \phi \sigma_d n(\langle T \rangle) .$$

Analogamente, quando se tem um fluxo ϕ de nêutrons

$$R_d^{tot} = N \int_{E_d/\Lambda}^{\infty} \phi(E_n) dE_n \sigma_d \langle n(T) \rangle . \quad (88)$$

Comparando esta equação com (85), ve-se que o valor médio de $n(T)$ é

$$\langle n(T) \rangle = \int_{E_d}^{T_{max}} n(T) D_d(E_n, T) dT . \quad (89)$$

Deslocamentos Produzidos por Nêutrons de Fissão

Como o objetivo principal deste trabalho não inclui o estudo de danos provocados por nêutrons de fissão, será visto aqui apenas alguns detalhes, com intenção de ilustrar o procedimento para o cálculo da taxa de produção de deslocamento.

A faixa de energia de nêutrons de fissão está entre $\approx 0,5 \text{ MeV}$ e $\approx 14 \text{ MeV}$ com valor médio em torno de $1,5 \text{ MeV}$, que será considerado como energia característica de um nêutron de fissão. Será considerado também que a interação destes nêutrons com as partículas do alvo, seja do tipo esfera dura.

Nestas condições a distribuição de energia dos *primários* é uniforme. Isto significa que para um nêutron incidente com energia E_n , a seção de choque $S_d(E, T)$ é constante para qualquer valor de T .

Assim, de (77)

$$\sigma_d = \int_{E_d}^{T_{max}} S_d(E_n, T) dT = S_d(E_n) \int_{E_d}^{T_{max}} dT,$$

e de (80)

$$D_d(E_n, T) = \frac{S_d}{\sigma_d} = \frac{S_d(E_n)}{S_d(E_n)[T_{max} - E_d]}$$

ou

$$D_d(E_n, T) = \frac{1}{[T_{max} - E_d]}. \quad (90)$$

Considerando que $T_{max} \gg E_d$, tem-se

$$D_d(E_n, T) \approx \frac{1}{T_{max}}. \quad (91)$$

Usando a equação (89), o valor médio de T é dado por

$$\langle T \rangle = \int_{E_d}^{T_{max}} T D_d(E_n, T) dT, \quad (92)$$

usando D_d em (91) tem-se

$$\langle T \rangle = \int_{E_d}^{T_{max}} T \frac{1}{T_{max}} dT = \frac{T_{max}}{2} - \frac{E_d^2}{2T_{max}}.$$

Supondo, novamente que $T_{max} \gg E_d$

$$\langle T \rangle \approx \frac{T_{max}}{2}. \quad (93)$$

Deslocamentos Produzidos por Nêutrons de Reator

Em reatores rápidos, a faixa de energia de nêutrons é maior devido ao uso de moderadores, assim a energia dos nêutrons pode variar da energia térmica até a energia máxima encontrada na fissão.

Para efeito de ilustração, seja um determinado espectro de energia de nêutron de reator térmico, em uma determinada posição, da forma $1/E_n$. Seguindo o mesmo procedimento da seção anterior, obtem-se a seguinte expressão para a distribuição de energia dos *primários*

$$D_d(E_n, T) \simeq \left\{ \frac{1}{E_d} - \frac{1}{T_{max}} \right\} / \ln \frac{T_{max}}{E_d} . \quad (94)$$

Para o cálculo do valor de energia média dos *primários*, submetidos a um espectro de nêutrons da forma $1/E_n$, usa-se novamente a eq.(92)

$$\langle T \rangle = \int_{E_d}^{T_{max}} T D_d(E_n, T) dT,$$

de (94), e resolvendo a integral chega-se a

$$\langle T \rangle \simeq \frac{T_{max}}{2 \ln (T_{max}/E_d)} . \quad (95)$$

Uma discussão com mais detalhes sobre espalhamento de nêutrons pode ser vista nas referências[39,40].

Para outro tipo de espectro de nêutrons, e quando se conhece a seção de choque de deslocamento para o material a ser estudado, o procedimento para o cálculo de R_d^{tot} é o seguinte:

seja um espectro de nêutrons da forma da figura (7), e que a seção de choque de deslocamento σ_d , da forma figura (8), para o cálculo de R_d^{tot} , multiplica-se os espectros destas figuras, um pelo outro, e integra-se o produto de acordo com a equação (88)

$$R_d^{tot} = N \int_{E_d/\Lambda}^{\infty} \phi(E_n) \sigma_d dE_n \langle n(T) \rangle$$

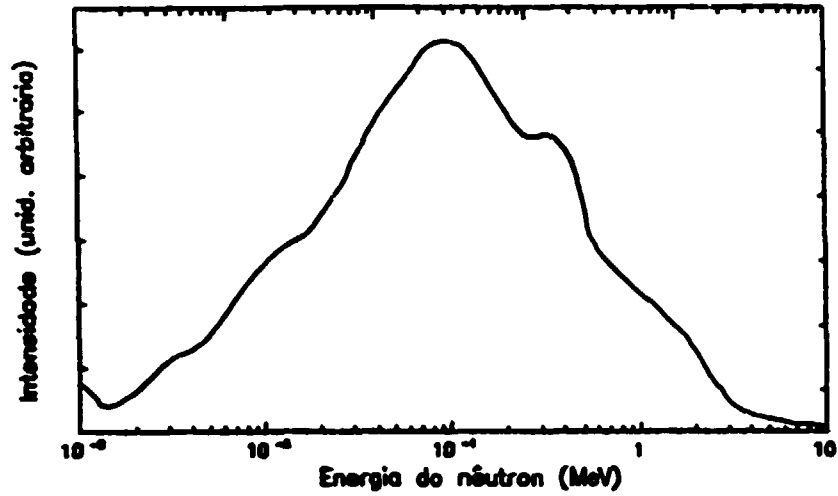


Figura 7: Espectro típico de nêutrons em reator rápido (ver referência[41]).

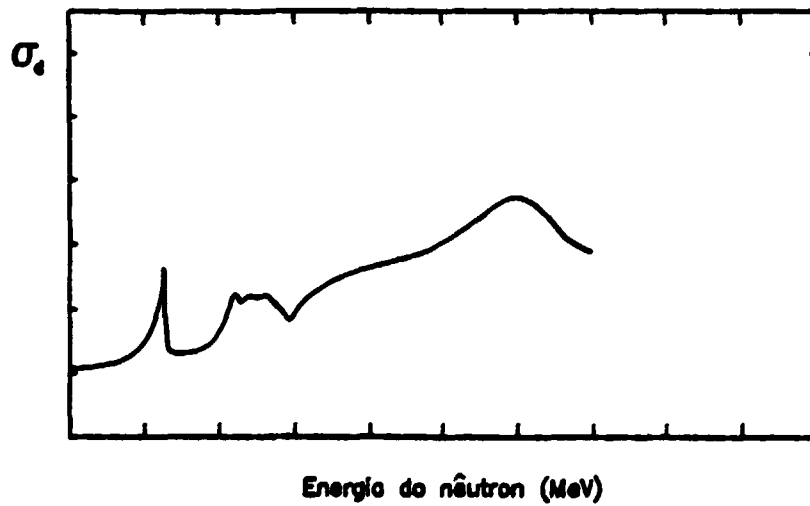


Figura 8: Seção de choque de deslocamento para nêutrons em aço (ver referência[42]).

2.2.3 Deslocamentos Produzidos por Íons

Na simulação de danos com acelerador de partículas (cíclotron), as energias dos íons estão na faixa de dezenas de MeV , deste modo as interações podem ser tratadas como coulombianas. Assim, o potencial de interação entre o íon incidente, de número atômico Z_1 , e o átomo alvo de número atômico Z_2 é dado por

$$V = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r}, \quad (96)$$

onde r é a separação entre o íon incidente e o átomo alvo.

Aqui está sendo considerado que, para a faixa de energia acima, as velocidades dos íons não são altas o suficiente para que sejam introduzidas correções relativísticas, porém suficiente para desprezar a blindagem eletrônica.

Nestas condições, a aproximação máxima b é dada por

$$b = \frac{2Z_1 Z_2 e^2}{\mu v^2},$$

e a seção de choque diferencial (Rutherford^[43]) por

$$d\sigma(E, T) = \frac{\pi b^2}{4} T_{max} \frac{dT}{T^2}. \quad (97)$$

Das equações (34), (75) e (77)

$$d\sigma_d = S(E, T)dT = T_{max} \frac{\pi b^2}{4} \frac{dT}{T^2}, \quad (98)$$

e a seção de choque total de deslocamento é

$$\sigma_d = \int_{E_d}^{T_{max}} S(E, T)dT = \int_{E_d}^{T_{max}} T_{max} \frac{\pi b^2}{4} \frac{dT}{T^2}. \quad (99)$$

Resolvendo esta integral para $T_{max} \gg E_d$

$$\sigma_d = \frac{\pi b^2}{4} \frac{T_{max}}{E_d}, \quad (100)$$

de (90) e (92) pode-se calcular $\langle T \rangle$

$$\langle T \rangle = \int_{E_d}^{T_{max}} T \frac{S(E, T)}{\sigma_d} dT. \quad (101)$$

Resolvendo também para $T_{max} \gg E_d$

$$\langle T \rangle = E_d \ln \frac{T_{max}}{E_d}. \quad (102)$$

Comparando-se os valores médios para o número de deslocamentos provocados por nêutrons e partículas carregadas com $\langle T \rangle \gg E_d$, e do modelo de K.P., pode-se escrever

$$\langle n \rangle \simeq \frac{\langle T \rangle}{2E_d}.$$

Assim, para nêutrons de fissão:

$$\langle n(T) \rangle \simeq \frac{T_{max}}{4E_d}. \quad (103)$$

Para espectro de reator da forma $\frac{1}{E^n}$:

$$\langle n(T) \rangle \simeq \frac{T_{max}}{4E_d} \left(\ln \frac{T_{max}}{E_d} \right)^{-1}. \quad (104)$$

Para partículas carregadas:

$$\langle n(T) \rangle \simeq \frac{1}{2} \ln \frac{T_{max}}{E_d}, \quad (105)$$

onde a energia média transferida é

$$\langle T \rangle = E_d \ln \frac{T_{max}}{E_d}.$$

Como mencionado anteriormente, no modelo de K.P. deve-se ter um cuidado no cálculo de $\langle n(T) \rangle$, separando a integral em duas partes: uma parte com limites de integração entre E_d e $2E_d$, e outra com limites entre $2E_d$ e T_{max} (ver eq. (54)).

Usando a eq. (89) para o cálculo de $\langle n(T) \rangle$ tem-se

$$\langle n(T) \rangle = \int_{E_d}^{2E_d} n(T) D_d dT + \int_{2E_d}^{T_{max}} n(T) D_d dT, \quad (106)$$

como $D_d = E_d/T^2$ e

$$n(T) = 1 \quad \text{para } E_d < T < 2E_d$$

$$n(T) = \frac{T}{2E_d} \quad \text{para } 2E_d < T < T_{max},$$

voltando em (106) e resolvendo a integral

$$\langle n(T) \rangle = \frac{1}{2} \left\{ 1 + \ln \frac{T_{max}}{2E_d} \right\}. \quad (107)$$

No caso do uso de aceleradores de partículas para simulação de danos, esta equação pode ser usada diretamente.

2.2.4 Comparação de Danos Produzidos por Nêutrons e Íons

Na seção anterior, foi visto que a seção de choque diferencial está relacionada com a distribuição D de energia dos primários, e como $d\sigma$ é diferente para cada tipo de radiação, isto significa que $D(E, T)$ também é diferente para cada tipo de radiação.

Como resultado desta diferença de distribuição de energia dos primários, a taxa de produção de deslocamentos também é diferente. A figura (9) mostra uma comparação das seções de choque por unidade de energia para nêutrons (a), e partículas carregadas (b).

Com a distribuição de energia dos átomos primários, é possível comparar os dois tipos de radiação. Definindo-se uma função $f(T)$, como sendo a fração dos primários com energia menor que T , na faixa entre E_d até T_{max} , e que é escrita como

$$f(T) = \int_{E_d}^{T_{max}} D_d(E, T') dT'.$$

A comparação pode ser feita, dispondo esta função em escala logarítmica, para nêutrons e partículas carregadas (figura (10)).

Com esta definição

$$f(T) = \begin{cases} \text{nêutron} \rightarrow \begin{cases} \text{fissão} \rightarrow D_d = 1/[T_{max} - E_d] \\ \text{reator} \rightarrow D_d = [1/E_d - 1/T_{max}]/\ln(T_{max}/E_d) \end{cases} \\ \text{íons} \rightarrow D_d = E_d/T_{max}^2 \end{cases} \quad (108)$$

Uma das vantagens do uso de aceleradores de partículas carregadas na simulação de danos, é a produção de deslocamentos a uma taxa maior que os nêutrons, por isso é importante comparar e compreender como são produzidos os danos no caso de íons.

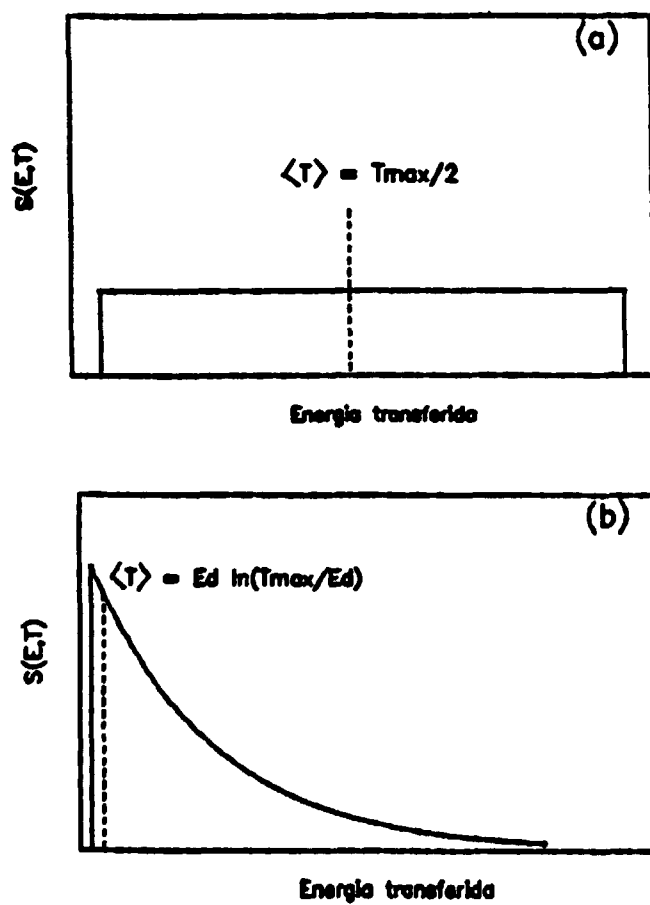


Figura 9: Comparação de seções de choque (a) nêutrons de fissão e (b) íons.

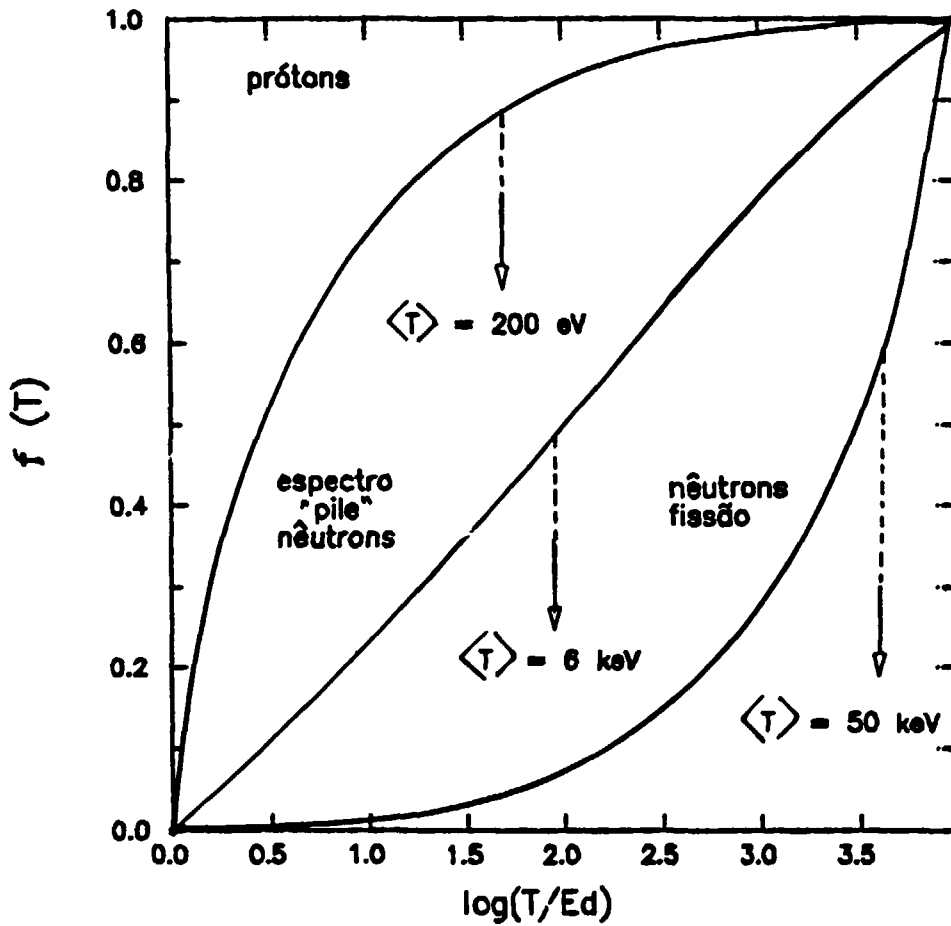


Figura 10: Comparação da fração de primários com energia menor que T
 (a) nêutrons de fissão (1,5 MeV),
 (b) espectro de nêutrons do tipo $1/E_n$ com corte em 1,5 MeV
 (c) prótons de 1,5 MeV.

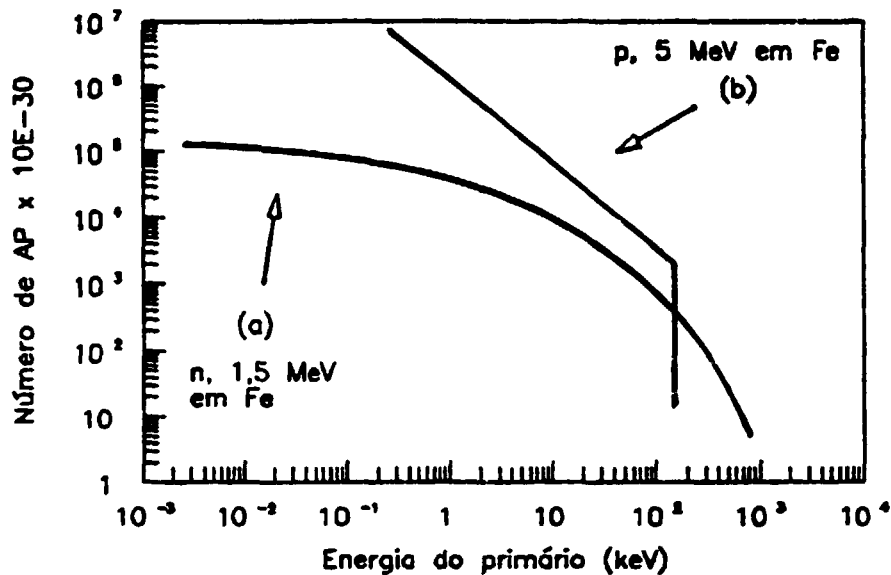


Figura 11: Espectro de primários
(a) nêutrons e (b) íons penetrando em ferro.

Se a interação entre o íon incidente e o átomo primário, além da interação entre os átomos da rede são conhecidos, pode-se obter todas as informações sobre os danos produzidos por este íon.

Como pode ser visto na figura (11), para cada tipo de radiação existe um espectro de energia dos átomos primários, de onde se pode obter informações sobre a quantidade e tipo de dano produzido na rede cristalina de um material.

A seguir, será mostrado o procedimento para o cálculo do espectro de energia de primários para diferentes radiações.

Espectro de Primários Produzidos por Nêutrons

Para um fluxo de nêutrons $\phi(E_n)$, a seção de choque diferencial de transferência de energia $d\sigma_d(E_n, T)$, na faixa entre T e $T + dT$, é dada pela equação (79)

$$d\sigma_d(E_n, T) = \sigma_d D_d(E_n, T) dT.$$

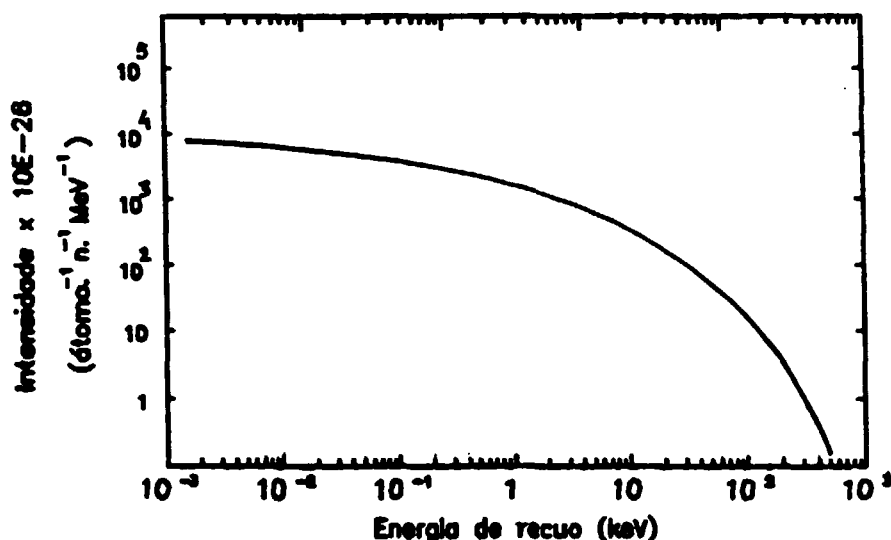


Figura 12: Espectro de energia de recuo primários produzidos em Fe por um espectro de nêutrons do tipo da fig. (7).

Assim o espectro de energia dos primários é dado por $P(T)dT$, onde $P(T)$ é

$$P(T) = \int_{E_d}^{E_n^{\max}} \frac{d\sigma_d(E_n, T)}{dT} \phi(E_n) dE_n \quad (109)$$

Uma aproximação comum para $\frac{d\sigma_d(E_n, T)}{dT}$ é dada por (ver a eq. (34))

$$\frac{d\sigma_d(E_n, T)}{dT} = \begin{cases} \frac{\sigma_{el}(E_n, T)}{\Lambda E} & \text{para } T \leq \Lambda E_n \\ 0 & \text{para } T > \Lambda E_n \end{cases} \quad (110)$$

onde σ_{el} é a seção de choque de espalhamento *elástico*.

Usando a equação (110) e um espectro de nêutrons típico de reator rápido, como o da figura (7) (a) pode-se calcular o espectro de energia dos primários, através da equação (109). A figura (12) mostra o resultado deste cálculo, feito por Marwick^[41], para o caso do Fe submetido a um fluxo de nêutrons como mencionado acima.

Espectro de Primários Produzidos por Íons

O espectro de energia dos *primários* pode ser calculado em uma certa profundidade penetrada pelos íons, se o espectro de energia dos íons, a esta profundidade, é conhecido.

Uma outra maneira de se obter o espectro de primários, inicialmente deduzida por Johnston^[44], é resumidamente descrita a seguir.

Seja $E(x)$ a energia média dos íons na posição x . A distribuição de energia destes íons em torno de x dá origem a uma distribuição de alcances projetado R_p (sec. (2.1.3)), descrita por $F(R_p)dR_p$ com $F(R_p)$ dado por

$$F(R_p) = \frac{1}{\sigma_R \sqrt{2\pi}} \exp \left\{ \frac{-(R_p - \langle R_p \rangle)^2}{2\sigma_R^2} \right\} \quad (111)$$

onde σ_R é o desvio padrão da distribuição de alcances. Esta distribuição é do tipo gaussiana, indicando que a distribuição de energia dos íons na profundidade x também é do tipo gaussiana.

O argumento usado por Johnston é que, se um íon tem um alcance entre R_p e $R_p + dR_p$ (existindo $F(R_p)dR_p$ destes íons), então a sua energia na profundidade x do alvo será

$$E \left(\frac{x \langle R_p \rangle}{R_p} \right)$$

ou seja, se um íon tem $R_p > \langle R_p \rangle$, sua energia é, de modo correspondente, maior que a energia média dos íons na posição x e vice versa.

Este argumento significa que para um espectro de energia dos íons na posição x (figura (13)), corresponderá um espectro de alcances dado por $R(T, x)dT$ onde

$$R(T, x) = \int_{R'_p}^{\infty} F(R_p) \left[\frac{d\sigma_{el}}{dT} \frac{dR}{dR_p} \right] dR_p \quad (112)$$

O termo em colchetes é calculado em $E \left(\frac{x \langle R_p \rangle}{R_p} \right)$, o fator $\frac{dR}{dR_p}$ é incluído para considerar que a trajetória do íon pode não ser uma linha reta. O termo $\frac{d\sigma_{el}}{dT}$ é a seção de choque diferencial de espalhamento elástico. O limite inferior da integral R'_p , é escolhido de tal forma que sejam excluídos os íons cuja energia na posição x não seja suficiente para produzir deslocamentos.

Os valores de $\frac{dR}{dR_p}$ podem ser obtidos por interpolação de tabelas calculadas por Johnson e Gibbons^[45]

A partir da equação (112) pode-se obter o espectro de energia dos primários, o que foi feito por Marwick^[41] para alguns íons e nêutrons rápidos em ferro (figura (13)),

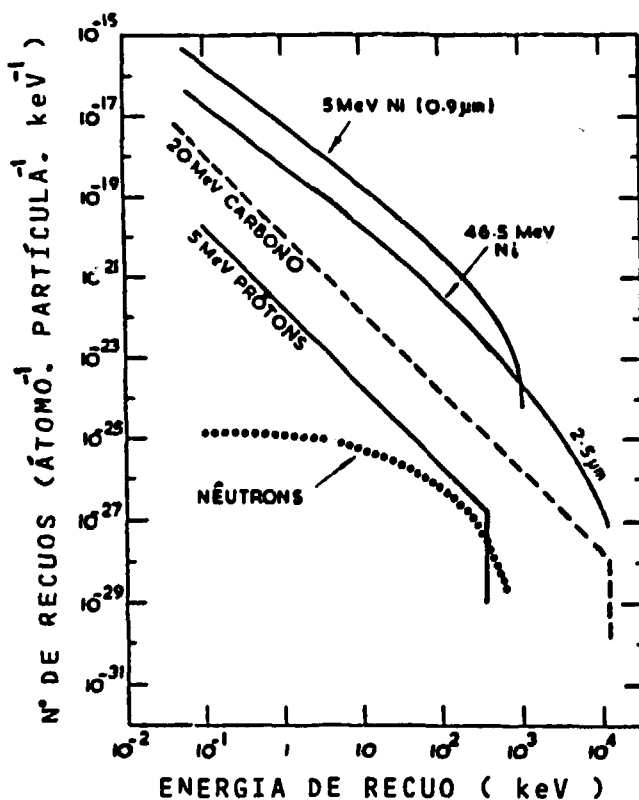


Figura 13: Espectro de primários produzidos por íons e nêutrons rápidos em *Fe*. Para os feixes de *Ni* são mostradas 2 profundidades relativas as energias de 5 e 46,5 *MeV*.

mostrando que uma irradiação com nêutrons produz muito menos recuos de baixa energia do que os prótons. Este fato pode levar a uma confusão, porque nem toda energia dos primários mais energéticos é transformada em deslocamentos. Porém, os recuos de alta energia são importantes porque produzem as cascatas de deslocamentos^[46] que determinam a configuração final dos danos, como por exemplo a formação e crescimento de “voids”, que será visto mais adiante.

2.3 Outros Efeitos da Irradiação

Nas seções anteriores foi dedicada atenção ao cálculo do número de defeitos produzidos por uma irradiação, e ao cálculo da taxa de produção de danos, relacionados apenas a um tipo de dano (deslocamento de átomos da rede cristalina).

Um outro tipo de dano por irradiação que será estudado, é a transmutação nuclear. Este tipo de dano altera a composição de uma liga, produzindo elementos estranhos à rede e por conseguinte alterando suas propriedades. Um exemplo típico é a produção de átomos de hélio e hidrogênio, através de reações nucleares (n, α) e (n, p) . Nestas reações, o núcleo de um átomo da rede *absorve* um nêutron e emite uma partícula α (núcleo do He), ou um próton (núcleo do H)^[47,48].

Em seções posteriores serão estudados os efeitos da presença de vacâncias e interstícios, associados à presença do hélio na rede cristalina.

Outros efeitos causados pela radiação também são possíveis, porém, como não são de interesse principal deste trabalho, serão vistos aqui brevemente.

2.3.1 “Spike”

Seitz^[49] mostrou que um efeito térmico associado às excitações e vibrações de átomos da rede, também pode ter consequências, especialmente quando ocorre ativação térmica de processos como: mudança de fase, e geração térmica de defeitos. O nome “spike” térmico é usado para este tipo de efeito, e seu conceito está relacionado com a deposição repentina de energia em um volume da rede muito restrito.

Posteriormente, Brinkman^[46] propôs a existência de outro efeito mais drástico, também relacionado ao termo “spike”, principalmente quando a rede da liga é composta por átomos pesados, e que ele chamou de “spike” de deslocamento.

Estes efeitos, e o conceito de colisão de troca^[50], foram usados para explicar desordens na rede de algumas ligas, que se mostraram grandes demais para serem tratadas apenas em termos de deslocamentos.

Outros tipos de “spike”, já foram mencionados como possíveis^[34]: “spike” de fissão devido a fragmentos de fissão, “spike” eletrônico associado às excitações e ionização, e “spike” de plasticidade devido a expansão repentina^[51].

Será revisto aqui brevemente, conceitos para alguns destes efeitos, apenas os de maior interesse.

“Spike” Térmico

Quando um átomo primário perde sua energia inicial T dentro de um volume que o contém, a energia E_{rede} armazenada na rede como resultado da produção de defeitos, é dada por $E_{rede} \simeq \langle n(T) \rangle E_d$, com $E_{rede} \approx 0,1 E_d$, ou seja uma quantidade em torno de 10 % de T é transformada em calor dentro de um volume restrito.

Aplicando-se as equações usuais de troca de calor e considerando uma difusividade térmica de $\approx 10^{-3} \text{cm}^2 \cdot \text{l}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$, há indicações que em um “spike” típico uma quantidade de $\approx 10^4$ átomos são aquecidos a uma temperatura maior que 1000 K por um período de $\approx 10^{-11}$ s.

Existe ainda hoje algumas contradições a respeito do fenômeno de “spike”, alguns autores, aplicando a teoria de troca de calor, afirmam que se for considerado apenas a difusão de calor, a dissipação térmica é mais rápida, o que implica em uma super estimativa tanto na duração do “spike”, quanto na temperatura.

“Spike” de Deslocamentos

No cálculo, feito por Brinkman^[46], do caminho livre médio de um primário entre colisões de esfera dura, foi introduzido o conceito de “spike” de deslocamento. Seu tratamento sobre o potencial interatômico levou a um valor para o caminho livre médio l_d , comparável à separação interatômica quando a energia do primário é menor que 500 eV.

Neste modelo os deslocamentos individuais tem pouco significado, e perto do fim de sua trajetória, o primário produz um volume vazio relativamente grande, no qual os átomos da vizinhança são fortemente perturbados. Brinkman previu que este volume contivesse um grande número de pares de Frenkel, regiões de desordem, ou “loops” de discordância.

O fenômeno “spike” de deslocamento (figura (14)), como proposto por Brinkman, é diferente do “spike” térmico, tanto no mecanismo quanto no efeito. O “spike” de deslocamento é concebido como sendo uma espécie de *sulco* produzido por um projétil através da rede, perturbando, ou mesmo deslocando os átomos em torno de sua trajetória, enquanto que o “spike” térmico é o resultado de processos termicamente ativados, induzindo

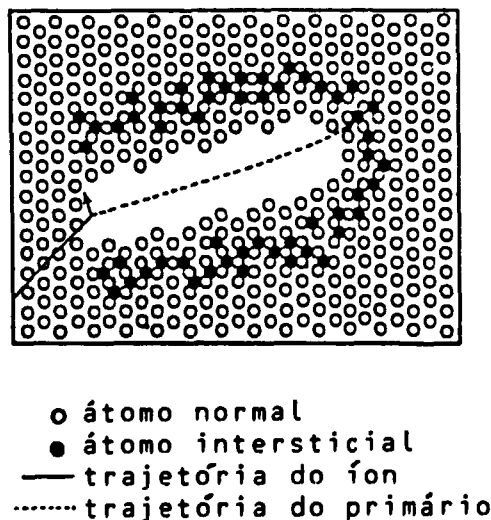


Figura 14: "Spike" de deslocamento proposto por Brinkman.

desordem na forma de defeitos pontuais.

Não existe evidência experimental que comprove a existência do "spike" de deslocamento. Resultados teóricos e experimentais, indicam que o caminho livre médio entre colisões do tipo esfera dura pode ser bem maior que o suposto por Brinkman, portanto este tipo de "spike" pode não ser tão extensivo quanto se supõe.

Existem trabalhos dedicados a estudos destes fenômenos, aqui entretanto, o interesse maior é o estudo dos efeitos do hélio associado à presença de vacâncias, interstícios e suas combinações em materiais e ligas de interesse nuclear, por isso, daqui para frente as atenções serão concentradas na descrição de alguns destes efeitos. Maiores detalhes sobre "spike", podem ser encontrados na literatura^[24].

2.3.2 "Voids - Swelling"

Uma das características apresentada por ligas metálicas usadas como revestimento e estrutura de reatores, quando submetidas a altas fluências de nêutrons, é a diminuição da densidade através de um aumento de volume. A este tipo de dano está associado o

termo “swelling”, (*inchamento*).

Cawthorne e Fulton^[3], usando microscopia eletrônica de transmissão (M.E.T.), mostraram que este inchamento era devido a formação de defeitos tridimensionais com a aparência de pequenas cavidades chamadas “voids” (*vazios*).

Outras pesquisas mostraram também, que a formação de vazios acontece quando o material irradiado é submetido a temperatura entre 350 e 600°C (ou $\approx \frac{1}{3}$ e $\frac{1}{2}T_m$, onde T_m é a temperatura de fusão do material), e que a quantidade de vazios formados e o seu consequente *inchamento*, dependem da dose a que foi submetido este material.

Nos últimos anos foram publicados inúmeros trabalhos^[52,53] no sentido de se estabelecer um modelo teórico, que possa descrever e prever com precisão o *inchamento* devido a grandes fluências. Nestes trabalhos são descritas técnicas experimentais para produção de “voids” em tempos reduzidos, o que evidencia a importância da simulação de danos com íons.

A formação dos “voids”, segundo os modelos atuais, acontece quando se produz um grande número de pares vacância-interstício. Uma parte destes pares eventualmente anula-se por recombinação, outra parte pode migrar para regiões da rede chamadas *escoadouros*^[54]. Alguns destes escoadouros são dicordâncias, precipitados e contornos de grão.

Inicialmente os defeitos pontuais aglomeram-se formando os chamados “clusters” de defeitos^[23]. A formação de “clusters” e uma posterior nucleação, só acontece se a temperatura for alta o suficiente para que os interstícios e vacâncias sejam móveis no sólido. O “cluster” formado por interstícios, da origem a dicordâncias, enquanto que o “cluster” de vacância da origem aos “voids”.

A presença de gases *nobres*, exemplo *He*, na rede de metais e ligas age como um *estabilizador* para formação destes “voids”, evitando, por exemplo, a formação de “loops” (*linha fechada* de vacâncias).

O “swelling” devido a presença de *He* e vacâncias é definido como o aumento percentual no volume de um metal,

$$\frac{\Delta V}{V} \%.$$

Para a maioria dos metais, foi verificado que o “swelling” é diretamente proporcional a concentração de hélio (C_{He}) implantada ou seja,

$$\frac{\Delta V}{V} \propto C_{He}.$$

Além da função estabilizadora, a presença do He em metais e ligas pode mudar as propriedades físicas de tal modo que seus efeitos podem ser observados microscopicamente e macroscopicamente^[55]. Entretanto, o nível da degradação produzida, depende do comportamento do hélio nestes metais, como a difusividade, solubilidade, concentração, energia de ligação com outros defeitos^[48], assim como a temperatura e composição do metal ou liga.

2.3.3 O Hélio na Rede Cristalina

Para compreensão dos efeitos do He , é preciso conhecer os mecanismos de evolução deste gás dentro da rede cristalina (ex: difusão, nucleação e crescimento de bolhas).

Difusão do Hélio em Metais e Ligas

Devido a solubilidade extremamente baixa do hélio em metais e ligas, sua difusão nestes materiais torna-se um fenômeno complexo^[56], e será discutido aqui apenas os detalhes de interesse direto para o caso da simulação de danos neutrônicos nos materiais estudados neste trabalho.

Quando um átomo de hélio encontra-se em uma posição intersticial da rede, sua energia de migração intersticial $E_{He,i}^m$, tem um valor relativamente baixo e por conseguinte um alto valor para o coeficiente de difusão. Cálculos realizados por Wilson^[57], Gaber^[58] e Jung^[59] mostram que o hélio liga-se preferencialmente às vacâncias, com energia de ligação da ordem de 2 eV, atingindo seu estado mais baixo de energia formando aglomerados de hélio e vacâncias. Assim a mobilidade do hélio é limitada pela quantidade adicional de vacâncias produzidas por uma irradiação.

Um átomo de hélio ligado (*preso*) a uma vacância só pode continuar seu processo de migração, se ele tiver energia suficiente para ultrapassar a *barreira de dissociação* $E_{He,v}^{dis}$, ou seja, é necessário que ele se dissocie da vacância e migre como um interstício.

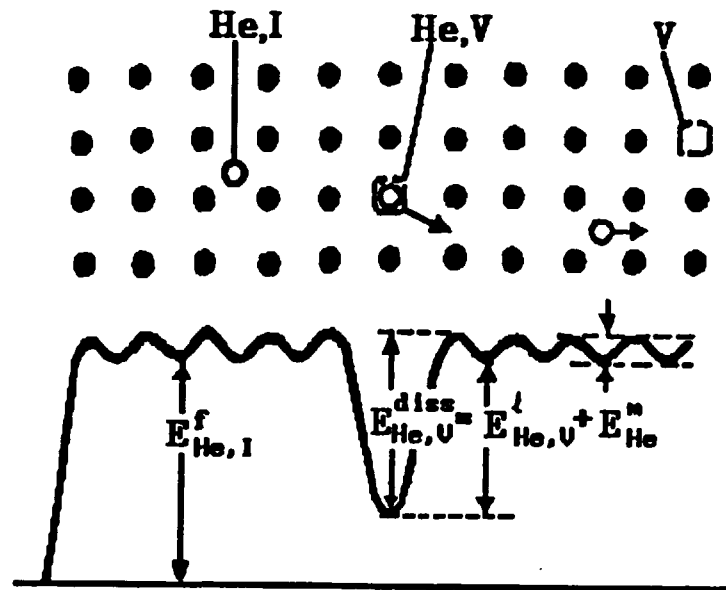


Figura 15: Esquema de posições e energia de um átomo de *He* na rede cristalina, referência[58].

O esquema da figura (15), mostra um átomo de hélio em posição intersticial, e outro em uma vacância com os respectivos valores para:

- $E_{He,v}^l$, energia de ligação hélio-vacância
- $E_{He,i}^m$, energia de migração intersticial
- $E_{He,v}^f$, energia de formação do hélio ligado a uma vacância
- $E_{He,i}^f$, energia de formação do hélio intersticial
- E_V^f , energia de formação de uma vacância
- $E_{He,v}^{diss}$, energia de dissociação do hélio ligado a uma vacância

com

$$E_{He,v}^{diss} = E_{He,v}^l + E_{He,i}^m \quad (113)$$

No caso de maior interesse deste trabalho, quando a rede cristalina implantada com *He* está sujeita a elevadas temperaturas ($> (1/2)T_m$), a maioria do hélio encontra-se ligado a vacâncias, ou seja em posições substitucionais^[60].

Nestas condições são possíveis dois tipos de mecanismo de difusão; o primeiro é o mecanismo *via vacâncias*^[61] onde, a energia de ativação para difusão é da ordem da energia de auto difusão (E^{ad})^[62], o segundo, e mais importante para as redes *cfc*, é o mecanismo *dissociativo*^[63], onde o átomo de hélio se dissocia de uma vacância, migra como se fosse um interstício até que seja preso por outra vacância.

No mecanismo dissociativo a difusão do hélio na rede é dada pela constante de difusão intersticial, multiplicada pela razão das concentrações de átomos de *He* em posições intersticiais $C_{He,i}$, e ligados à vacâncias $C_{He,v}$ ^[58,64], ou seja

$$D_{He} = D_0 \exp(-E_{He}^m/KT) \times \frac{C_{He,i}}{C_{He,v}}, \quad (114)$$

onde T é a temperatura*

Usando

$$E_{He,v}^{diss} = E_{He,v}^l + E_{He,i}^m$$

e

$$\frac{C_{He,i}}{C_{He,v}} = \exp\left[-\frac{(E_{He,v}^l - E_v^f)}{KT}\right]$$

o coeficiente de difusão fica

$$D_{He} = D_0 \exp\left[-\frac{(E_{He,v}^{diss} - E_v^f)}{KT}\right]. \quad (115)$$

Logo a energia de difusão do hélio é

$$E_{He}^{dif} = E_{He,v}^{diss} - E_v^f \quad (116)$$

onde

$C_{He,i}$ é a concentração de hélio em posições intersticiais,

$C_{He,v}$ é a concentração de hélio em vacâncias, e

D_0 é a constante de difusão^[65].

* não confundir com a energia transferida

Nucleação e Crescimento de Bolhas

Quando as temperaturas envolvidas estão acima de $\frac{1}{2}T_m$, as vacâncias têm mobilidade e podem combinar-se com pequenos aglomerados de átomos de hélio para formar uma *bolha*. A medida que o número de vacâncias aumenta nesta combinação, a pressão P da bolha começa a diminuir enquanto seu raio r aumenta, até que seja atingida uma condição de equilíbrio. Nesta condição a pressão de equilíbrio P_{eq} , é igualada (*balanceada*) pela tensão superficial da bolha ($2\gamma/r$).

Assim a pressão dentro da bolha em equilíbrio é dada por

$$P_{eq} = \frac{2\gamma}{r} \quad (117)$$

onde γ é a energia superficial da bolha, por unidade de área.

Existem regiões da rede cristalina favoráveis à nucleação e crescimento de bolhas. Exemplos destas regiões são contornos de grãos e discordâncias, onde a energia para nucleação é reduzida^[66] pela energia do contorno de grão ou da discordância, facilitando o crescimento de bolhas, que pode ocorrer por dois principais mecanismos:

Crescimento por Migração e Coalescência

Neste mecanismo figura (16), a migração de bolhas pode ser controlada por três tipos de mecanismo de difusão: (a) difusão de átomos da matriz pela superfície da bolha, (b) difusão volumétrica de átomos da matriz, e (c) transporte de átomos por vaporização através do gás^[67,68].

Através dos coeficientes de difusão, para cada um dos três tipos mencionados, é possível avaliar o movimento da bolha, o tempo de coalescência e o conseqüente crescimento. Recentes trabalhos de Schroeder, Fichtner e Trinkaus^[69,70] mostram que este mecanismo é dominante para altas concentrações de hélio e/ou tempos curtos de recozimento. Outros detalhes poderão ser vistos em trabalhos realizados por Goodhew^[68], Nichols^[71] e Olander^[72].

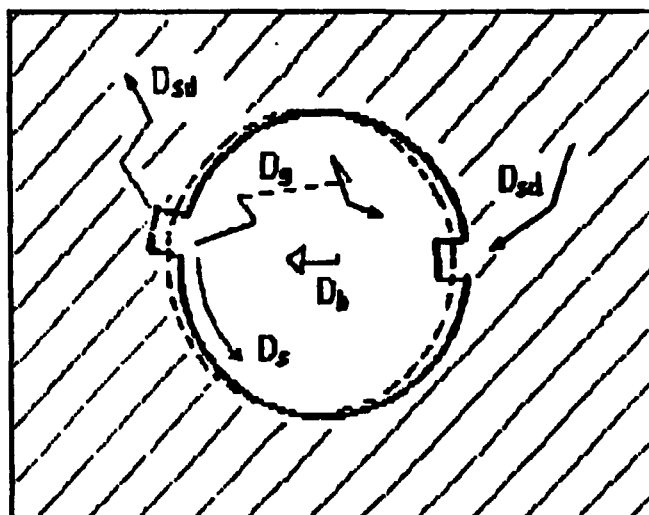


Figura 16: Mecanismos de difusão de $H e$
onde D_g , D_s , D_b e D_{sd} são os coeficientes de difusão gasosa,
superficial, da bolha e auto-difusão.

“Ostwald Ripening”

Neste mecanismo as bolhas podem crescer por: incorporação de átomos de hélio redissolvidos, de vacâncias ou mesmo de pequenas bolhas^[73,74]. A presença de bolhas de diferentes tamanhos e pressões, dá origem a um gradiente de concentração, que induz a permeação de átomos de hélio de pequenas bolhas, na direção das bolhas maiores^[69].

No equilíbrio térmico, a pressão P de uma bolha em função da temperatura T e da concentração de hélio C_{He} na matriz e nas vizinhanças de uma bolha, pode ser escrita como

$$P \propto C_{He} \exp \{G_{He}^{\ddagger}/kT\}$$

ou inversamente

$$C_{He} \propto P \exp \{-G_{He}^{\ddagger}/kT\}$$

onde G_{He}^{\ddagger} , é a energia livre da bolha por átomo de hélio.

Como a pressão P depende do raio r (ou tamanho) da bolha ($P = 2\gamma/r$), existirá um gradiente de concentração de gás entre bolhas de diferentes tamanhos (figura (17)).

$$C_{He} \propto \frac{2\gamma}{r} \exp \{-G_{He}^{\ddagger}/kT\}$$

Este gradiente é que induz o processo de permeação de átomos hélio de pequenas bolhas em direção às maiores (*relaxação*), onde a força responsável por este processo é a energia livre do gás hélio, que é reduzida quando a pressão interna de gás diminui o que equivale, em condições de equilíbrio, ao aumento do tamanho da bolha.

Greenwood e Boltax^[75] calcularam a taxa $r(t)$ de crescimento com o tempo t , e densidade $\rho_b(t)$, supondo o comportamento do hélio como gás ideal, e supondo uma geometria esférica para as bolhas,

$$r(t) \rightarrow (D_{He}C_{He}t)^{1/2}$$

e

$$\rho_b(t) \rightarrow M_{He}(D_{He}C_{He}t)^{-1}$$

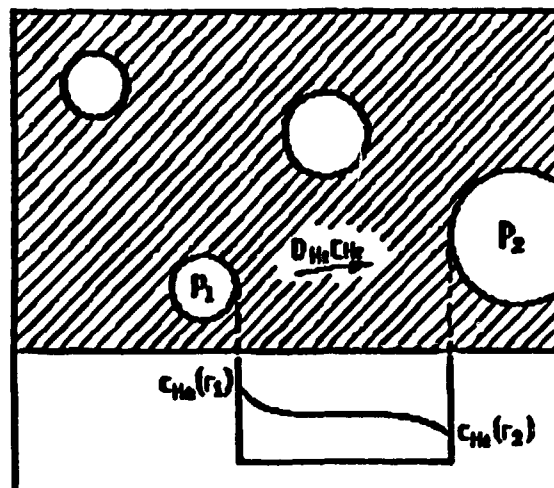


Figura 17: Crescimento de bolhas por “Ostwald ripening”, onde C_{He} é a concentração de He , P_i são as pressões das bolhas de raios r_i com $P_1 > P_2$.

onde M_{He} é a quantidade de hélio implantado, e D_{He} é o coeficiente de difusão através da rede. Foram também realizados estudos deste mecanismo, com considerações mais realistas, supondo um comportamento do hélio como gás real^[69].

Em resumo, o processo de formação de bolhas de *He* pode ser dividido em dois estágios: primeiro, a maioria do hélio implantado precipita-se em pequenos aglomerados, que posteriormente atuam como embriões para formação de bolhas maiores por meio de absorção adicional de átomos de hélio e vacâncias, ou ainda por migração e coalescência.

Fragilização

Uma das propriedades mecânicas mais importantes para materiais estruturais utilizados em reatores é a ductilidade, ou seja a capacidade de absorver grandes tensões deformando-se sem romper. A fragilização, está diretamente relacionada com a perda da ductilidade^[76].

Como visto anteriormente, os átomos de hélio presentes em metais tendem a formar bolhas que migram para escoadouros, alterando seriamente as propriedades mecânicas. A presença de bolhas em regiões como contorno de grão atuam como concentradores de tensão, resultando na perda de ductilidade, ou seja na fragilização^[77]. Este fenômeno associado à temperatura a que se submete os materiais é de tal importância que pode determinar o fim da vida útil deste material^[78].

Contudo, em determinados níveis de degradação da rede cristalina, a temperatura pode restaurar algumas propriedades, por este motivo, é importante compreender o processo de recuperação de propriedades, assim como a aplicação e o desenvolvimento de técnicas não destrutivas para o acompanhamento e monitoração^[79,80] dos diversos níveis de degradação produzidos pela radiação.

Recuperação de Propriedades Físicas

Certas propriedades dos sólidos cristalinos alteradas pela irradiação podem ser recuperadas através de tratamentos térmicos adequados. A recuperação de uma propriedade p em função da temperatura T e do tempo t aos quais o sólido é submetido, é dada

por:

$$\frac{dp}{dt} = R(p, q_i) e^{-E_a/KT} \quad (118)$$

onde E_a é a energia de ativação, K é a constante de Boltzman, e R é uma função de q_i e p . Os q_i são variáveis que não dependem de t nem T , dependem apenas do estado inicial, e podem ser relacionados, por exemplo, com a configuração inicial de vacâncias.

Como as amostras a serem estudadas passam por um processo de padronização, ou seja, são submetidas ao mesmo tratamento inicial, não é necessário considerar os q_i 's.

Assim, da equação (118)

$$\frac{dp}{dt} = R_1(p) e^{-E_a/KT} \quad (119)$$

integrando

$$\int_{p_0}^p \frac{dp}{R_1(p)} = \int_{t_0}^t e^{-E_a/KT} dt . \quad (120)$$

O segundo termo desta equação é chamado tempo de temperatura compensada (Θ). Assim a equação (120) pode ser escrita como

$$f(p) = \Theta , \quad (121)$$

com

$$\Theta = \int_{t_0}^t e^{-E_a/KT} dt \quad (122)$$

ou, na forma inversa

$$p = f^{-1}(\Theta) \quad (123)$$

ou seja, a propriedade p varia com o tratamento térmico segundo f^{-1} .

O termo $e^{-E_a/KT}$ é chamado fator de Boltzman e representa a dependência na temperatura, da probabilidade com que uma *barreira* de energia E_a pode ser superada.

Um dos métodos para obtenção de E_a , consiste na preparação de duas amostras com *histórias* idênticas, submetendo uma delas a tratamentos térmicos com diferentes temperaturas T_i , em intervalos de tempos iguais, enquanto a outra é submetida à temperatura constante T_a , em intervalos de tempo crescente Δt_i . As medidas da propriedade p são realizadas ao final de cada tratamento térmico.

Para a primeira amostra a cada temperatura T_i , corresponderá um valor $\Delta\Theta_i$ obtido da equação (122)

$$\Delta\Theta_i = \Delta t e^{-E_a/KT_i} \quad (124)$$

ou

$$\ln \Delta\Theta_i = C_1 - E_a/KT_i \quad (125)$$

onde a constante $C_1 = \ln \Delta t$

Para a segunda amostra, a cada intervalo de tempo Δt_i , a temperatura constante T_a , corresponderá uma variação $\Delta\Theta_i$, também obtida da equação (122)

$$\Delta\Theta_i = \Delta t_i e^{-E_a/KT_a} \quad (126)$$

ou

$$\ln \Delta t_i = \ln \Delta\Theta_i + C_2 \quad (127)$$

onde a constante $C_2 = E_a/KT_a$.

Substituindo (125) em (127)

$$\ln \Delta t_i = C_3 - E_a/KT_i \quad (128)$$

onde $C_3 = C_1 + C_2$ também é constante.

Da curva $p \times t$ obtida para segunda amostra, toma-se Δt_i correspondente a cada p_i medido na primeira amostra. Deste modo, determina-se valores de Δt_i para cada tratamento com temperatura T_i .

Em outros termos, a propriedade p_i está relacionada com Δt_i e com T_i

$$p_i = f(\Delta t_i) \quad (129)$$

$$p_i = f'(T_i) \quad (130)$$

logo, pode-se relacionar Δt_i com T_i por uma terceira função f''

$$\Delta t_i = f''(T_i) \quad (131)$$

Dispondo em um gráfico os valores de $\ln \Delta t_i$ versus $\frac{1}{T_i}$, tem-se uma reta para processos com um único valor para energia de ativação E_a , que é dado pela inclinação da reta, conforme a equação (128).

Este método será utilizado na seção (4.3.3), envolvendo a migração de defeitos na rede cristalina dos aços estudados, onde a propriedade a ser medida será o tempo de vida de pósitron em amostras implantadas com *He* e submetidas a diferentes tratamentos térmicos.

Visando o estudo de fenômenos como este, e a determinação de parâmetros relativos a mudanças de propriedades dos aços AISI 316 E 347 quando submetidos à radiação, foi utilizada a técnica de simulação de danos com íons, seguida de medidas experimentais por técnicas destrutivas e não destrutivas, descritas a seguir.

Parte Experimental

Capítulo 3

Materiais e Métodos

Este capítulo está subdividido em três seções; a primeira contém informações referentes à técnica de simulação de danos com o ciclotron CV-28/IEN, à escolha dos íons, ao sistema de irradiação, à limitações impostas pelas condições experimentais, à preparação e irradiação das amostras, ao controle de qualidade das irradiações, além de uma discussão das vantagens e desvantagens da simulação de danos com íons.

A segunda seção descreve o teste (não destrutivo), de aniquilação de pósitrons onde são apresentados os três métodos envolvendo pósitrons: *correlação angular*, *alargamento Doppler* e *tempo de vida de pósitron*. O método de correlação angular é discutido brevemente sendo dada maior atenção ao método de *tempo de vida de pósitron*.

A terceira seção descreve os testes destrutivos que foram empregados neste trabalho: tração, microscopia eletrônica de varredura (MEV), de transmissão (MET) e “creep” a ênfase sendo dada aos dois últimos.

3.1 Simulação de Danos com o Ciclotron

Atualmente os dois principais métodos para simulação de danos produzidos por nêutrons são:

- microscopia eletrônica a alta voltagem^[81], onde os responsáveis pela produção de átomos primários são os elétrons, e

- aceleradores de partículas carregadas, que foi o método utilizado neste trabalho.

Assim como os nêutrons, quando um feixe de íons produzidos em um acelerador interage com a rede cristalina de um sólido, são produzidos os deslocamentos. A comparação entre danos produzidos por nêutrons e íons, é possível porque, como já foi dito, 99% dos átomos deslocados em uma irradiação com nêutrons são produzidos por átomos primários. A unidade estabelecida para esta comparação é o *dpa* (deslocamento por átomo).

Em reatores rápidos os materiais do núcleo estão sujeitos a uma taxa de aproximadamente *20 dpa/ano*, (o que corresponde por exemplo, no Reator Rápido de Dounreay DFR, a uma dose de 4×10^{22} *nêutron.cm⁻²*). Em seu tempo de vida útil, estes materiais devem suportar uma dose que corresponda a ≈ 100 *dpa*. Portanto, o estudo de danos com reatores rápidos levaria no mínimo 5 anos só para irradiação das amostras.

Devido a grande diferença nas seções de choque de espalhamento elástico, a utilização de íons pesados pode produzir danos a uma taxa de 10^6 vezes maior. Para íons leves este fator cai para ordem de 10^3 vezes porém, com a possibilidade de produzir danos homogeneamente em amostras com espessuras apropriadas a testes mecânicos para estudo de variações de propriedades, (“creep”, tração, etc). Outra vantagem do uso de íons leves é a possibilidade de implantar gases em materiais, também com taxas bem mais elevadas, da ordem de 10^4 vezes maior que irradiações neutrônicas.

3.1.1 A Escolha dos Íons

Na simulação de danos com íons, além da condição básica de produzir danos em uma região uniformemente distribuída, os íons escolhidos não devem produzir impurezas químicas. Um exemplo seria a irradiação de aços com íons C^{++} , o que aumentaria a quantidade de carbono presente nos aços, aumentando também a quantidade de precipitados influenciando, por exemplo, a formação de “voids”^[82], alterando as propriedades mecânicas desses aços de forma diferente das irradiações neutrônicas.

A escolha mais indicada seria então a irradiação com íons de mesma natureza que alvo, como feito por Marwick^[41], que utilizou *Ni* de 48 *MeV* para irradiar aços baseados

íon	energia <i>MeV</i>	alcance μm
C^+	20	7,2
N^{6+}	63	25,1
O^{7+}	72	23,5
Ni^+	48	4,4
Fe^+	65	5,6
Ta^+	100	5,7

Tabela 2: Tabela de alcances para alguns íons pesados em aço.

em níquel.

Embora a utilização de íons pesados tenha proporcionado bons resultados para estudos da formação de “voids”, eles não são os mais apropriados para estudo de variação de propriedades como a fragilização, e outras onde a espessura da amostra é um fator crítico. Mesmo para energias altas, da ordem de 100 *MeV*, os íons pesados tem seu alcance limitado a algumas *micra* (tabela (2)), que por sua vez limita o estudo de danos à aplicação da técnica de microscopia eletrônica de transmissão (MET), para observações e medidas de efeitos microestruturais.

Outra dificuldade é a preparação da amostra para MET, onde deve ser selecionada com *exatidão* a região da amostra que coincide com o alcance da partícula (íon pesado).

Assim, visando obter danos com distribuição mais uniforme possível em amostras com espessuras adequadas (ver seção (3.1.3)), e considerando a disponibilidade de íons acelerados pelo ciclotron CV-28/IEN (ver seção (3.1.2)), a escolha recaiu sobre os íons leves, mais especificamente prótons e alfas.

Os prótons são mais apropriados para produção de deslocamentos, tomando o devido cuidado para que não seja implantado hidrogênio na amostra, quando este não for o objetivo, o que também poderia alterar por exemplo, o processo de nucleação de

“voids”^[82]. Em outras palavras os prótons devem ter energia alta o suficiente para atravessar a amostra, e tão baixa quanto possível para uma maior taxa de produção de danos (ver seção (3.1.5)). Para os aços em estudo (AISI 316 E 347) com espessura de $100 \mu m$ a faixa de energia mais indicada está entre 6 e 7 MeV de prótons.

Uma dificuldade encontrada na simulação uniforme de danos com íons leves como prótons, pode ser observada na figura (18) onde a face posterior da amostra, com relação ao feixe, contém entre 10 e 20% mais danos do que a face onde incide o feixe, isto porque a seção de choque de deslocamento aumenta a medida que a energia do íon diminui (ver sec. (2.2.1) e referência [41]).

Uma possibilidade de minimizar esta variação, seria aumentar a energia. Entretanto, a taxa de produção de deslocamentos diminuiria inviabilizando este tipo de simulação.

Apesar desta desvantagem, existem vantagens que tornam a simulação com íons leves um método econômico e rápido para estudo de danos em materiais. Algumas destas vantagens com relação a utilização de reatores são: maior taxa de produção de danos, melhor controle e monitoração de parâmetros experimentais, as atividades envolvidas são muito menores proporcionando maior segurança, redução no custo e tempo, além da possibilidade de estudar os efeitos do *He* em separado e também em curto prazo.

Esta última vantagem é de particular importância pois o hélio presente em materiais de reatores (através da reação (n, α)), pode ser obtido por meio de um sistema de implantação (sec. (3.1.2)), onde um feixe de partículas alfa pode implantar altas concentrações de hélio homogeneamente distribuída, em um tempo de até 10^4 vezes menor que em reatores. Assim, com um feixe de partículas alfa aceleradas em um ciclotron pode-se em algumas horas implantar concentrações de hélio que levariam mais de 10 anos em reatores rápidos, como pode ser visto na tabela (3).

Considerando estas vantagens, e o fato que o estudo dos efeitos do hélio em materiais de interesse nuclear é o tema central deste trabalho, o íon escolhido foi o He^{++} , ou seja partículas alfa, com as quais foram realizadas diversas irradiações e/ou implantações.

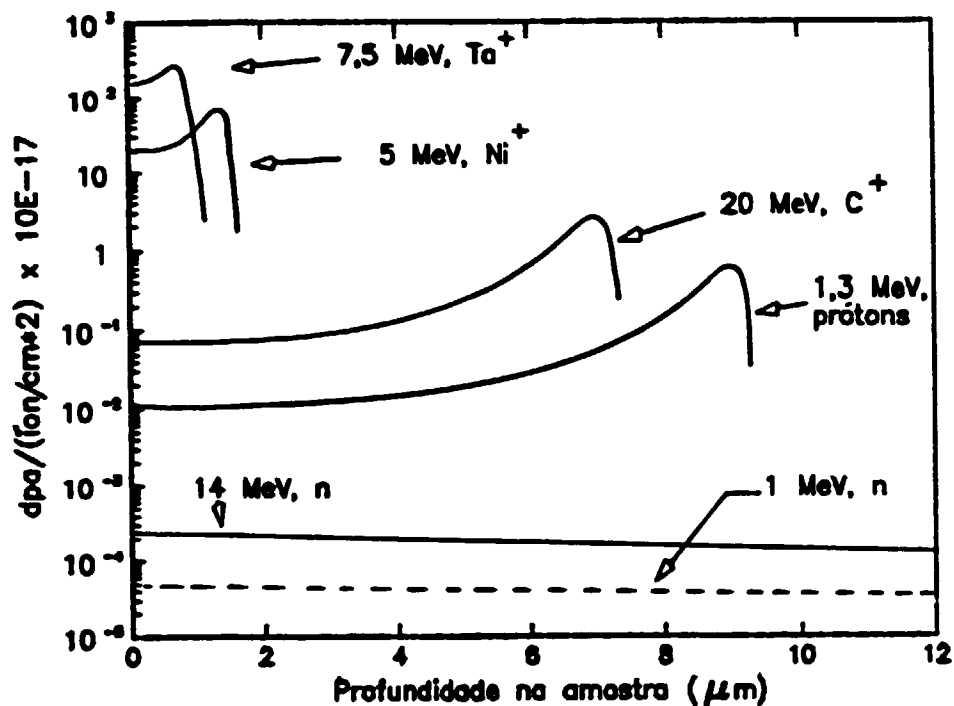


Figura 18: Produção de deslocamentos por íons e nêutrons na profundidade x do sólido irradiado.

fonte	reação	taxa aprox. ppm/ano
reator rápido	(n, α)	20
fonte intensa de nêutrons	(p, α)	10^2
reator a fusão	(n, α)	3×10^2
cíclotron	α	$10^6 a 10^7$

Tabela 3: Taxa de produção de He para diferentes fontes.

3.1.2 Sistema de Irradiação

O sistema de irradiação utilizado, mostrado na figura (19), é composto pelo ciclotron CV-28 e um transporte de feixe (denominado *linha 4*), com sistemas de alto vácuo, refrigeração, controle e monitoração do feixe, blindagens e uma câmara de implantação de He . Este sistema, foi projetado e desenvolvido^[83] especialmente para estudos de danos por irradiação. Contudo, é flexível, podendo ser adaptado para outras aplicações como: análise por ativação com partículas carregadas^[84], PIXE^[85], produção de certos radioisótopos e aquisição de dados nucleares.

A seguir são apresentados alguns detalhes de interesse de cada um dos componentes deste sistema.

O Ciclotron CV-28 do IEN

Entre as diversas aplicações do ciclotron do IEN^[86,87] (pesquisa e produção de radioisótopos para aplicações médicas, pesquisa em física pura, medidas de função excitação, levantamento de dados nucleares), existe uma *linha* dedicada a pesquisa de física do estado sólido, mais especificamente estudo de danos por irradiação em materiais.

Estudos nesta área com utilização de aceleradores do tipo ciclotron também são realizados em outros laboratórios como ANL^[88] - Argonne EUA, KFA^[48] - Jülich RFA, IPEN^[55] - São Paulo BR, RIISOM^[12] - Sendai Japão, entre outros já mencionados. Os aceleradores deste tipo são capazes de produzir feixes com correntes da ordem de $100 \mu A$ durante longos períodos (≈ 100 horas ou mais de irradiação). A tabela (4) mostra os íons, energias e correntes que podem ser obtidos do ciclotron CV-28 do IEN.

No presente trabalho o íon usado foi o He^{++} com energia de $28 MeV$ e correntes da ordem de $1 \mu A$ (seção (3.1.5)). Maiores detalhes sobre o ciclotron podem ser obtidos nas referências^[89,90].

O Transporte do Feixe

O feixe produzido no ciclotron é *transportado*, até uma caverna especial onde são realizadas as irradiações e/ou implantações, por um sistema de *transporte de feixe de íons*,

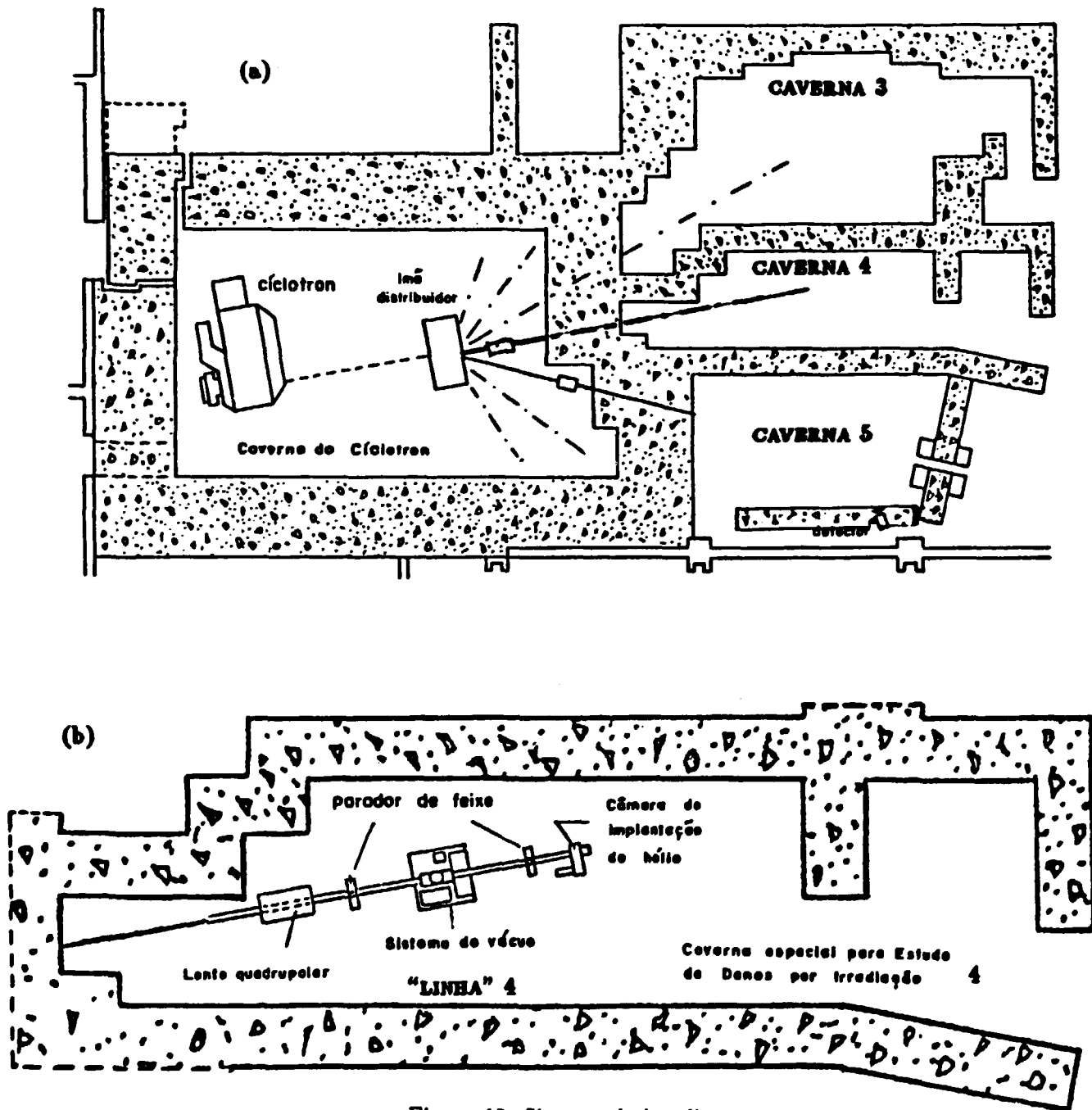


Figura 19: Sistema de irradiação
 (a) planta baixa da caverna do cíclotron e das cavernas externas (b) detalhe da linha 4.

partícula	energia (MeV)	corrente interna (μA)	corrente externa (μA)
p	2 a 24	500	70
d	3 a 14	500	100
3He	5 a 36	150	70
4He	6 a 28	100	50

Tabela 4: Características do ciclotron CV-28/LEN.

especialmente desenvolvido para estudos de danos por irradiação.

O transporte de feixe inicia-se a partir do *direcionador magnético* (figura (19 a)), e seus principais componentes são:

- a) duas lentes quadrupolares magnéticas duplas que atuam na focalização do feixe. Cada lente (dubleto) é composta por dois singletos. Cada singleto é constituído por quatro peças polares em aço de baixo teor de carbono, para assegurar uma “grande” permeabilidade magnética, envolvidas por bobinas com 265 espiras de cobre cada uma, e todas ligadas em série e comandadas pelo painel de controle do ciclotron
- b) Válvula de gaveta pneumática de alto vácuo, mostrado na figura (19 b), para manter o vácuo na linha de feixe do ciclotron quando da troca de porta-alvos
- c) Sistema de alto-vácuo (fig. (19 b)), constituído por uma bomba mecânica de dois estágios, com velocidade de bombeamento de $11 m^3.h^{-1}$, acoplada a uma bomba difusora dotada de válvula de acionamento pneumático e com capacidade de bombeamento de $289 l.s^{-1}$. Com este sistema, pode ser obtido pressões da ordem de $10^{-5} Torr$ em todo percurso do feixe
- d) Colimador de 4 fendas ajustáveis refrigerado a água, para monitoração de corrente

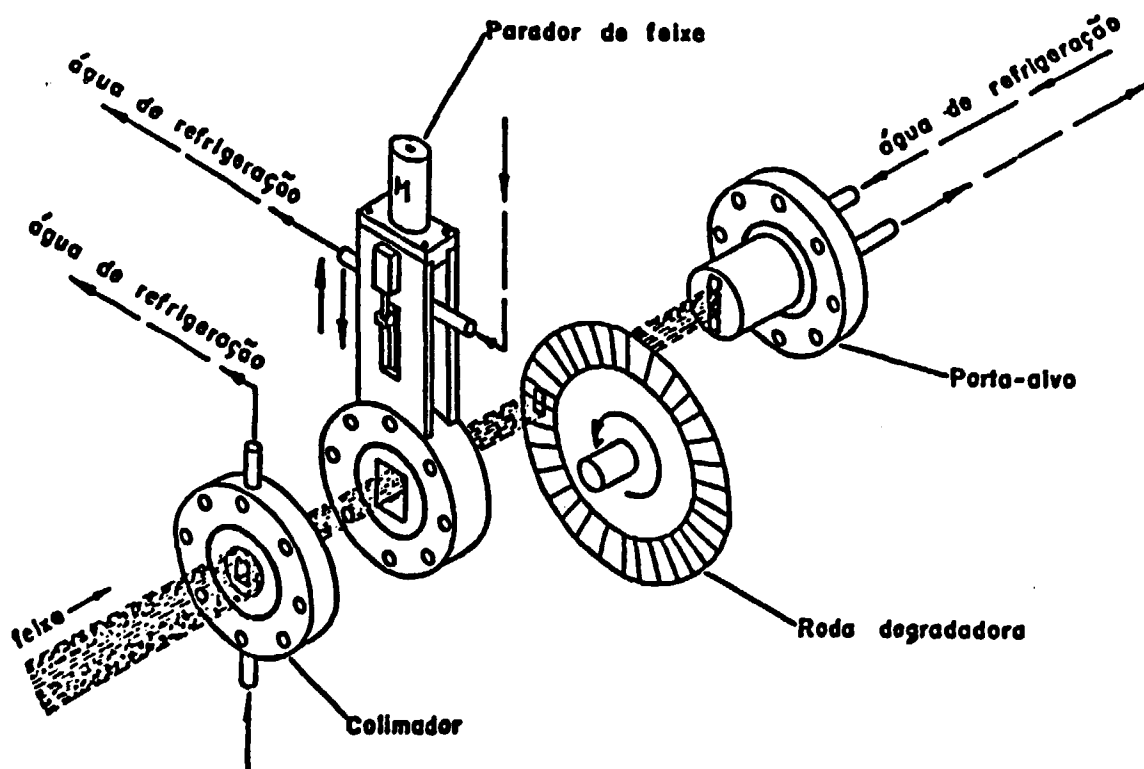


Figura 20: Esquema da câmara de implantação de He.

e perfil do feixe.

Ao final do transporte de feixe, é acoplado uma câmara de implantação de hélio (figura (20)), cedido pelo KFA - Jülich RFA, como parte de um intercâmbio mantido com aquela instituição. Esta câmara é composta de um colimador, um parador de feixe ("beam stop") refrigerados a água, uma roda degradadora de energia e de um porta-alvos também refrigerado a água.

A monitoração da corrente e perfil (geometria da seção) do feixe é feita através dos paradores de feixe, do colimador de 4 fendas móveis (ajustáveis), e de um varredor de feixe ("beam scanner").

Através das lentes quadrupolares é possível desfocalizar o feixe de partículas, e com ajuste adequado dos colimadores, pode-se obter uma distribuição homogênea na seção reta do feixe.

O feixe desfocalizado passa então por um colimador de alumínio, cuja *janela* possui $0,78 \text{ cm}^2$ de área, incidindo no último parador de feixe, que depois de retirado remotamente, permite que o feixe tenha sua energia degradada por uma roda giratória contendo folhas de alumínio de diversas espessuras *apropriadas* e montadas em seu perímetro. Assim, é possível a implantação uniforme de hélio na área irradiada e também ao longo de toda espessura da amostra, que é limitada pelo alcance da partícula α mais energética, 28 MeV .

No porta-alvos da figura (20), feito em bloco de cobre, as amostras de aço são *moldadas* com índio metálico (PF: 156°C), diretamente ao porta-alvos objetivando a maior dissipação possível de calor, proporcionando medidas precisas da corrente na amostra.

O colimador, os paradores de feixe e o porta-alvos são refrigerados a água e isolados eletricamente entre si, possibilitando medidas de corrente do feixe em todos os paradores de feixe assim como no porta-alvos, que funciona como um "faraday cup".

Este sistema, depois de montado alinhado e testado, foi utilizado em todas as irradiações /implantações, incluindo irradiações relativas ao intercâmbio com o Centro Nuclear de Jülich RFA. A eficiência média de transmissão ficou em torno de 80%, entre a corrente no porta-alvos com a corrente do feixe na saída do cíclotron^[91].

3.1.3 Preparação e Irradiação de Amostras

Material Estudado

São estudados os aços AISI 316 e 347, adquiridos na forma de folhas com $300 \mu\text{m}$ de espessura e com sentido de laminação conhecido.

Foram realizadas, no Departamento de Química do IEN, análise semiquantitativa por fluorescência de raios-X e análise química quantitativa para verificação da composição. As tabelas (5) e (6), mostram os resultados das análises

	Aço AISI 316	Aço AISI 347
Elemento principal	<i>Fe</i>	<i>Fe</i>
Acima de 10%	<i>Cr</i>	<i>Cr</i>
Entre 1 e 10%	<i>Ni</i>	<i>Ni</i>
Abaixo de 1%	<i>Mn, Co, Mo</i>	<i>Mn, Co, Mo</i>
Traços		<i>Cu, Pb, Nb (suspeita)</i>

Tabela 5: Análise semi-quantitativa dos aços AISI 316 e 347 por fluorescência de raios-X.

Elemento	Aço AISI 316 (%)	Aço AISI 347 (%)
<i>C</i>	0,061	0,054
<i>Si</i>	0,68	0,47
<i>Mn</i>	1,00	1,00
<i>Cr</i>	18,7	18,6
<i>Ni</i>	7,97	8,00
<i>Mo</i>	0,054	
<i>Nb</i>		0,028

Tabela 6: Análise química quantitativa dos aços sc AISI 316 e 347.

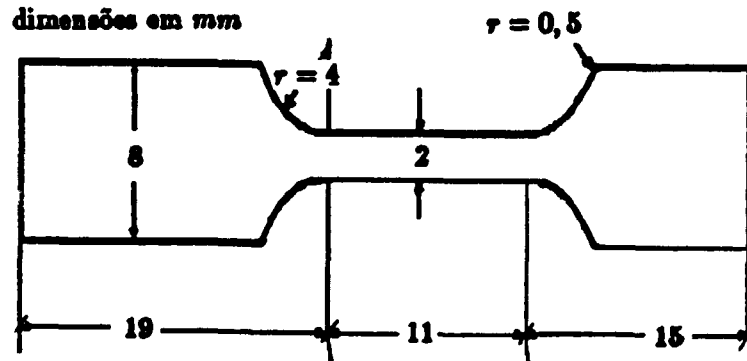


Figura 21: Dimensões e formato das amostras para irradiações e testes.

Dimensões das Amostras

Considerando as características do sistema de irradiação descrito, conclui-se que as dimensões da amostra estão sujeitas a certos limites. A área de seção do feixe, após o colimador do implantador, limitou a irradiação simultânea de duas amostras com largura de 2 mm cada (figura (21)).

A energia máxima das partículas α (28 MeV) limitou a espessura em 150 μm , para o caso de implantação de He em aço. Para a produção de deslocamentos com prótons de 7 MeV a espessura das amostras (aço AISI série 300) não deve passar de 100 μm , de modo que os prótons atravessem totalmente a espessura das amostras.

Como visto na seção (2.2.2), a taxa de produção de danos aumenta com a diminuição da energia da partícula incidente. Uma solução alternativa para não diminuir a energia, (o que implicaria na diminuição da espessura), é aumentar a corrente do feixe.

O aumento da corrente está limitado pelas características do ciclotron, porém antes de se atingir os valores limite de corrente, deve-se observar o limite de temperatura

da amostra, como consequência do aumento da corrente.

Na interação entre as partículas do feixe e as do alvo, o principal processo de perda de energia (ver seção (2.1.5)) é através da ionização e excitação eletrônica. Com isto grande parte da energia do feixe é transformada em calor e apenas uma pequena quantidade é transformada em deslocamentos atômicos.

Usando uma relação aproximada^[78], para calcular a potência por unidade de área, depositada na amostra, como resultado da irradiação tem-se

$$Q = \Delta E \times j \quad (132)$$

onde ΔE é a perda de energia na amostra e j , a densidade de corrente.

Supondo amostras de aço ($k = 0,12 \text{ cal.s}^{-1}.\text{cm}^{-1}$)*, com espessura de $100 \mu\text{m}$ e uma alta taxa de produção de dpa , da ordem de $10^{-6} \text{ dpa.s}^{-1}$, a potência depositada na amostra seria de aproximadamente 630 W.cm^{-2} , o que representa uma densidade de corrente da ordem de $20 \mu\text{A.cm}^{-2}$. Como, no presente caso, a amostra é moldada com índio metálico no porta-alvos (ver figura (20)), esta energia pode ser facilmente dissipada devido a “grande” massa de cobre ($\approx 0,5 \text{ Kg}$), do porta-alvos, sua eficiente refrigeração, e o bom contacto proporcionado pelo índio metálico.

Apesar desta capacidade de dissipação de calor, as correntes utilizadas em todas as irradiações não ultrapassaram $1 \mu\text{A}$. Os motivos, maiores detalhes sobre corrente, tempo de irradiação e outros dados relativos a irradiação, serão vistos na seção (3.1.5).

Considerando estes fatos, a espessura escolhida para as amostras foi de $100 \mu\text{m}$. Com relação as outras duas dimensões, as limitações foram impostas pela adequação à testes mecânicos (tração e “creep”), pois as limitações impostas pelas características do feixe de íons são menos restritivas no caso da largura e do comprimento.

Em irradiações preliminares, foi possível obter feixe com área de até 2 cm^2 , (ver seção (3.1.5)). Com estas condições e considerando que as amostras deveriam possuir um acabamento adequado que pudessem garantir a reprodutibilidade de resultados, a geometria final da amostra foi determinada conforme mostra a figura (21).

* coeficiente de condutibilidade térmica

Comparando as espessuras apropriadas para irradiações com diferentes íons, pode-se dizer que, aquelas irradiadas com íons leves, (ex: 7 MeV prótons, 28 MeV α), são “grossas” (100 μm), enquanto que aquelas irradiadas com íons pesados (ex: 50 MeV Ni, 2 MeV C), são “finas” ($\approx 1 \mu m$). Entretanto do ponto de vista da preparação da amostra, as duas são consideradas como amostras *finas*, e exigem método especial de preparação.

Preparo de Amostras Finas

A preparação de amostras com estas dimensões envolve a aplicação de técnicas especiais como laminação de precisão, associada a um tratamento térmico adequado, acabamento superficial uniforme, e corte por um processo que evite ao máximo a formação de concentradores de tensão no perfil de corte.

A etapa inicial da preparação de amostras finas foi a laminação para reduzir a espessura da amostra como recebida (300 μm), para espessura determinada (100 μm). Entretanto, o processo de laminação a frio altera o grau de encruamento e o tamanho de grão, que devem ser considerados quando se trata de amostras finas.

As informações sobre as propriedades mecânicas de “folhas finas” de aço são limitadas. Segundo J. Anner and Sagués^[92], folhas finas de aço 316 reproduzem o comportamento de uma amostra representativa do material (“bulk”) em testes de tração, e a temperatura ambiente, se a espessura da folha for no mínimo três vezes o tamanho do grão. No presente caso, isto significa que o grão deve ter no máximo $\approx 30 \mu m$, o que implica em 3 grãos no mínimo para espessura das amostras. Esta condição exigiu laminação a frio intercalada com tratamentos térmicos, acompanhados da metalografia para controle do tamanho de grão.

O tratamento térmico por sua vez exigiu a construção de um forno especial a vácuo (figura (22 a)), com possibilidade de tratamentos com vácuo de até 10^{-7} Torr, para evitar oxidação das amostras durante o tratamento.

Variando-se a temperatura, o tempo de recozimento e acompanhando-se em cada etapa o crescimento do grão, foi constatado que tempos de recozimentos da ordem de 0,1 h, a uma temperatura entre 1000 e 1100°C, foi o suficiente para reduzir o grau de

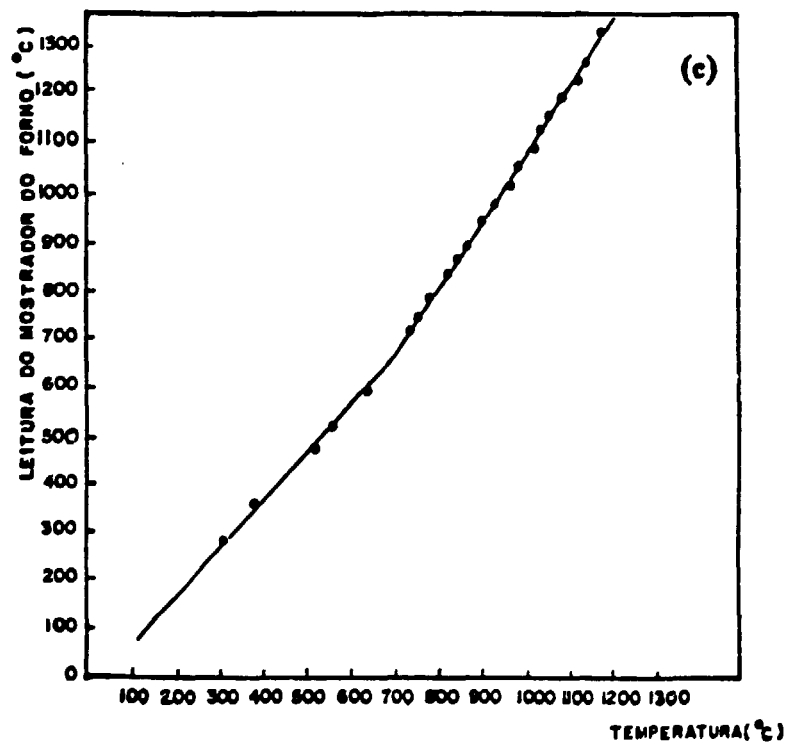
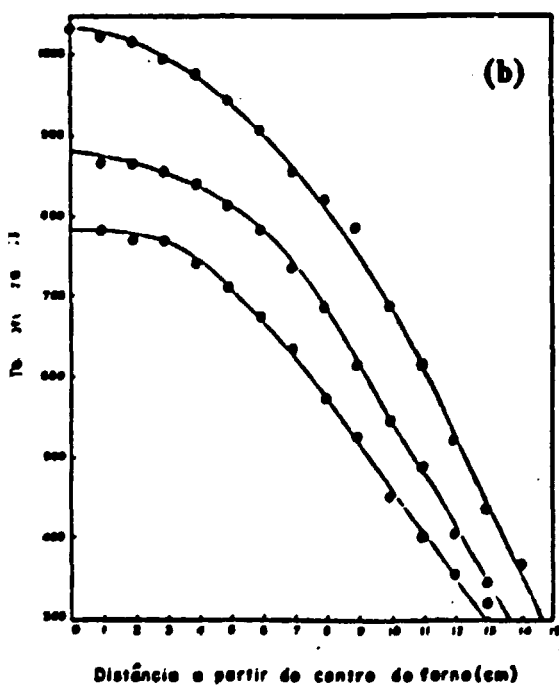
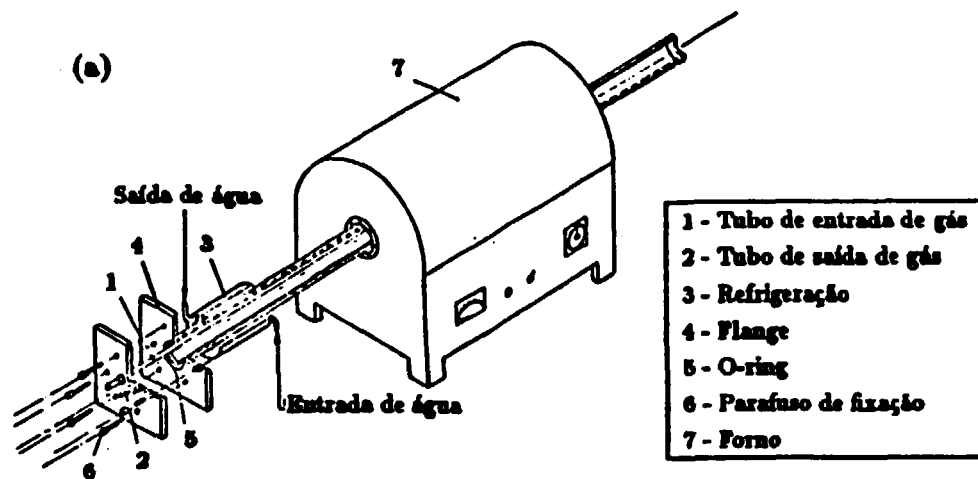


Figura 22: Sistema de recozimento a vácuo
 (a) forno tubular
 (b) variação da temperatura com relação ao centro do forno
 (c) calibração com termopar Ni - Cr.

encruamento sem comprometer o tamanho de grão.

O número de etapas de laminação e recozimentos intermediários dependem da eficiência do laminador utilizado. Foram utilizados dois laminadores com eficiências diferentes, um pertencente ao IEN e outro ao Departamento de Metalurgia da COPPE/UFRJ. Para o primeiro, foram necessárias três etapas de laminação e duas de recozimento, enquanto que para o segundo foram necessárias apenas duas etapas de laminação e uma de recozimento. Este segundo laminador apresentou vantagens devido sua maior potência e por possuir acessórios específicos para este tipo de operação, como rolo de laminação de encosto, refrigeração, lubrificação, etc.

Depois de atingida a espessura desejada, e passar por controle de tamanho de grão por microscopia ótica^[93] (figura (23)), as amostras são cortadas na forma apropriada aos testes mecânicos (figura (21)).

Foram testados 5 métodos de corte de amostras finas:

1. Estampagem - este método consiste em estampar numa chapa o formato da amostra através do impacto de uma matriz de formato idêntico. Experiências preliminares com amostra de formato simples revelaram-se dispendiosas na produção em quantidade de amostras com bom acabamento, sendo este método abandonado.
2. Fresa - para a fresagem foi projetado um dispositivo especial acoplado a uma máquina "Tensil-out", pertencente ao Laboratório de Materiais do IEN. O acabamento lateral dos corpos de prova apresentaram rebarbas e amassamento. Tentou-se solucionar este problema com o uso de um rebolo cilíndrico adaptado ao prendedor da fresa, e intercalando-se as lâminas dos corpos de prova, com lâminas de aço mais espessas. Ainda assim, os resultados não foram satisfatórios e o método foi abandonado.
3. Foto-Corrosão - este método, desenvolvido em cooperação com a Supervisão de Instrumentação e controle do IEN, consistiu-se basicamente das seguintes etapas:
 - Limpeza e revestimento da chapa com resina adequada
 - Secagem da resina em estufa a 50°C
 - Polimerização da resina com radiação ultra-violeta, no formato desejado

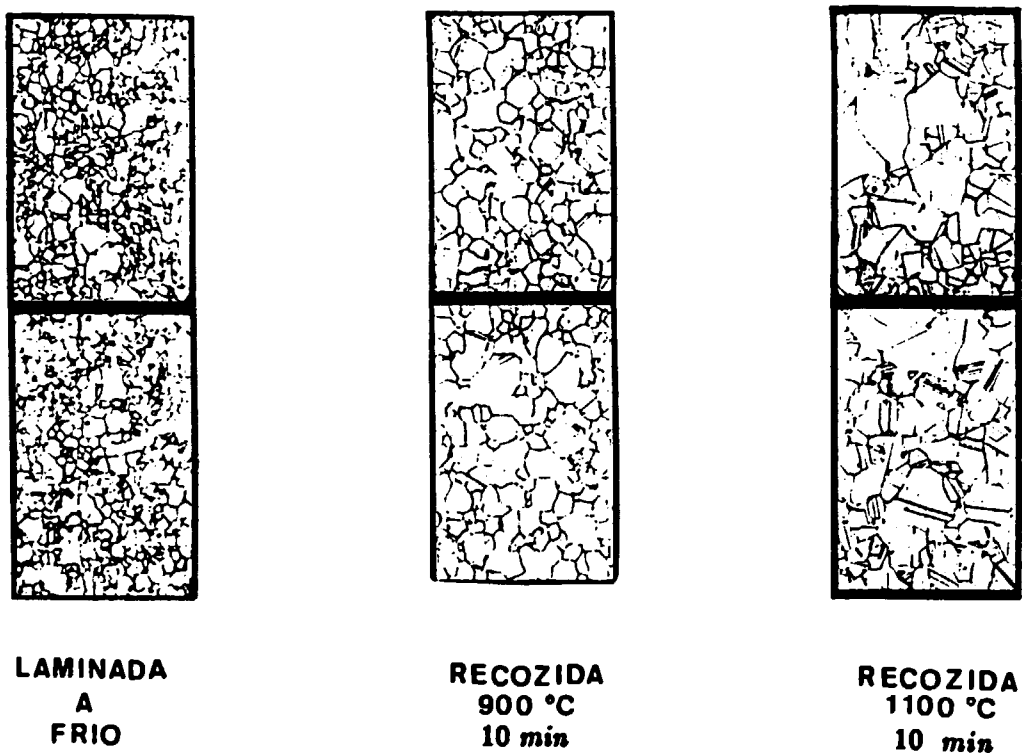


Figura 23: Microscopia ótica para controle de tamanho de grão.

Resina	C. P.	tensão de escoamento (0,5%) (<i>Kgf/mm²</i>)	tensão de escoamento (0,2%) (<i>Kgf/mm²</i>)
Riston sem decapagem	1	37,11	20,28
	2	36,30	14,72
	3	36,56	16,06
KPR com decapagem	1	30,66	14,30
	2	34,81	12,93
	3	33,60	16,42
KPR sem decapagem	1	32,85	14,30
	2	35,89	15,60

Tabela 7: Tensão de escoamento em *Cu* cortado por foto-corrosão.

- Eliminação da resina não polimerizada
- Ataque químico da chapa não protegida pela resina
- Eliminação, por ataque químico, da resina aderida a chapa já cortada.

Inicialmente este método foi aplicado em folhas de cobre. As amostras foram submetidas a testes de tração em uma máquina do Laboratório de Materiais do IEN, com uma célula de carga de 500 *Kgf*.

O critério de medida adotado para análise dos resultados foi a tensão de escoamento a 0,2% de deformação. Os resultados iniciais estão dispostos na tabela (7), onde observa-se que a utilização da resina RISTON proporcionou resultados com maior reprodutibilidade.

O método foi então aplicado a chapas de aço. Contudo a resina não se mostrou resistente ao ataque químico final, introduzindo irregularidades no acabamento da amostra, fazendo com que este método fosse também abandonado.

4. Retífica Ótica de Perfis - este método utilizou chapas de aço sobrepostas, formando um bloco único com dimensões ($5 \times 9 \times 3 \text{ mm}$), e foi subdividido em duas etapas. Na primeira foi feito um gabarito no formato final da amostra (figura (24)), e um desenho da amostra, em papel vegetal, ampliado 50 vezes. O desenho, reproduzido na tela da máquina, foi então alinhado em composição com a imagem do gabarito. Posteriormente as chapas foram desgastadas pelo método de retífica, até que o desenho ficasse no esquadro com o gabarito. O controle visual foi feito através do contraste mostrado pela tela, como consequência do desgaste.

A segunda etapa deste processo, consistiu no lixamento manual (lixa 600) da superfície desgastada, para eliminar eventuais rebarbas, seguido por eletropolimento com solução de ácido perclórico em meio alcoólico^[94], nas seguintes condições:

94% Etanol + 5,4% ácido perclórico + 0,6% água

voltagem - 45 V, corrente - 0,6 A, temperatura de 4 a 5°C, tempo - 0,1 h

Foi também utilizado com maior economia e com a mesma eficiência, uma solução alternativa de ácido nítrico a 7,3 M nas seguintes condições:

voltagem - 8 V, temperatura - 5°C, corrente - 5 A, tempo - 90 s. Este método foi

desenvolvido e aplicado em cooperação com o centro *Técnico Euvaldo Lodi* do SENAI.

Os resultados com chapas de 0,3 mm de espessura foram excelentes, entretanto quando aplicados a chapas de 0,1 mm, a parte manual de lixamento de rebarbas, que ficaram mais frequentes, mostrou-se ineficiente tanto na produção em quantidade como na qualidade. Assim, este método foi também abandonado.

5. Eletro-Erosão - Este método, desenvolvido em cooperação com o *Centro de Pesquisas Elétricas da Eletrobras, CEPEL/RJ*, consistiu na utilização do mesmo gabarito e a mesma disposição de lâminas de aço, utilizado no método de retificação ótica, e um eletrodo com o formato do negativo do corpo de prova (figura (24)). O gabarito é então submerso em um banho de óleo, e submetido a uma diferença de potencial variável com relação ao eletrodo. Quando o eletrodo entra em contato com as lâminas, estas são cortadas eletricamente no formato final desejado.

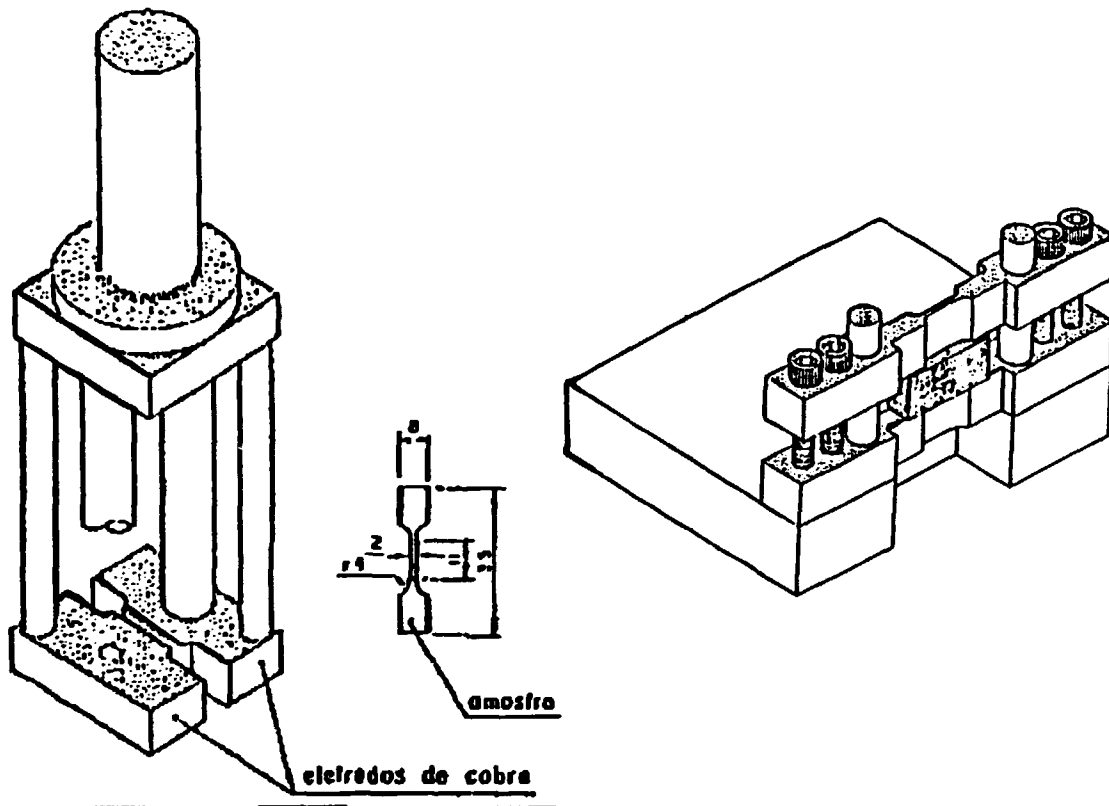


Figura 24: Eletrodo para corte de amostras finas por eletro-erosão.

Inicialmente, foi utilizado um eletrodo de grafite, que apesar de produzir um bom acabamento nas amostras, apresentou desgaste prematuro acentuado. O problema foi finalmente resolvido com a confecção de um eletrodo de cobre, idêntico ao de grafite, com o qual foram obtidas as condições ótimas, e por conseguinte a produção de todas as amostras utilizadas neste trabalho.

O fluxograma da figura (25) mostra a sequência de preparação das amostras de aços AISI 316 e 347, e como foram distribuídas para os testes não destrutivos, e destrutivos (ver também capítulo (4)).

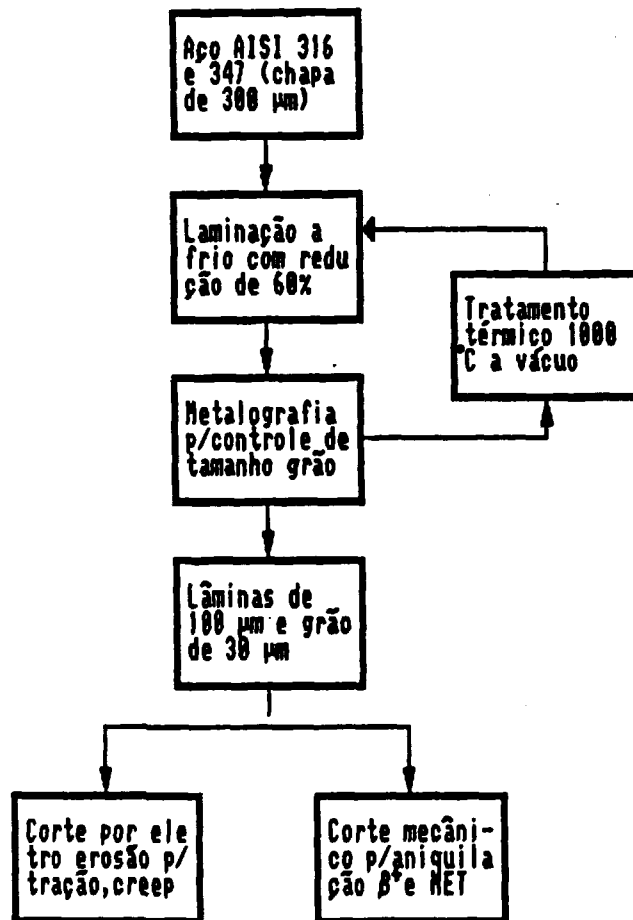


Figura 25: Fluxograma de preparação de amostras.

3.1.4 Irradiações com Prótons

Com o objetivo de se obter os parâmetros iniciais de irradiação, com o ciclotron CV-28/LEN, foram feitas experiências preliminares com feixe de prótons de 4 MeV em amostras de cobre. Para estas experiências, foi projetado um porta-alvos especial em alumínio, refrigerado a água (figura (26)), com um degradador também em alumínio, que possibilitou a degradação da energia inicial do feixe de 24 MeV para 4 MeV. A utilização deste degradador teve como justificativa uma “limitação” (à época destas experiências), do ciclotron em produzir feixes de baixa energia ≈ 4 MeV, com correntes altas ≈ 30 μ A.

Com estas experiências, foi possível determinar alguns limites, tanto a amostra como o degradador resistiram sem fundir, a correntes da ordem de 30 μ A por um período máximo de 2 horas.

As amostras irradiadas neste porta-alvos foram submetidas a testes de tração em uma máquina KRATOS (seção (3.3.1)). Os resultados iniciais não foram satisfatórios, levando a suspeitar de um possível recozimento das amostras durante a irradiação, devido a uma deficiência na troca de calor. Assim, foi desenvolvido um outro porta-alvos também em alumínio.

O porta-alvos foi aperfeiçoado, dividindo-o em duas partes (figura (26)), ambas refrigeradas. A primeira contém o degradador que pode ser trocado por outros de espessuras diferentes, a segunda parte contém o dispositivo de fixação das amostras. A primeira parte contém ainda, dois orifícios que permite equalizar as pressões entre as partes. Este arranjo permitiu que a amostra não ficasse em contato com o degradador, onde a geração de calor é maior.

Apesar de melhorias introduzidas com o novo porta-alvos, os limites obtidos anteriormente não foram satisfatoriamente ampliados. Para uma irradiação prolongada (≈ 8 h) com prótons de 24 MeV a corrente máxima suportada pelo conjunto *porta - alvos + amostra* não passou de 10 μ A.

De acordo com o que foi apresentado nas seções (2.2.3), (2.2.4) e (3.1.1) e será visto com maiores detalhes no capítulo (4), esta fluência não é suficiente para produção de deslocamento em uma quantidade que justifique a simulação de danos com prótons.

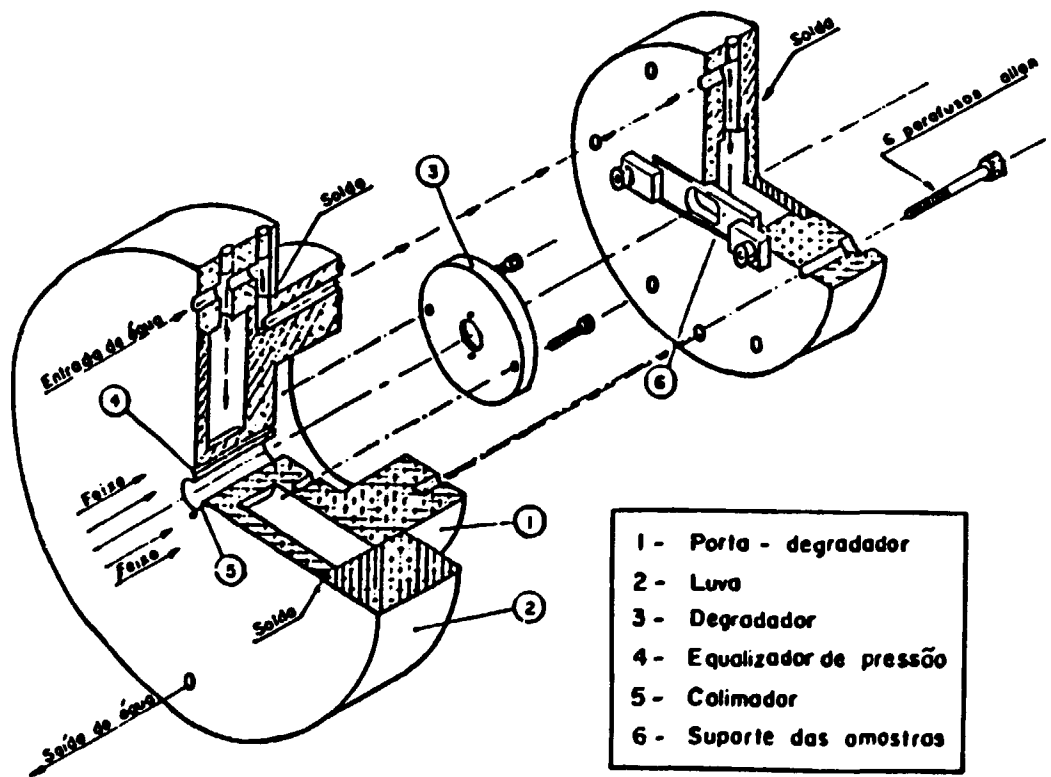


Figura 26: Porta-alvos especial para irradiações com prótons.

Foram também realizadas medições de doses de nêutrons durante as irradiações na “caverna 4”, para diferentes pontos do prédio do ciclotron do IEN, e como decorrência da blindagem precária, específica para nêutrons, foram registradas doses acima da mínima permitida.

Considerando estes fatos, as irradiações com prótons foram postergadas para uma oportunidade financeiramente mais favorável, onde o desenvolvimento de porta-alvos aliados a uma blindagem adequada da caverna, permitam a produção de deslocamentos com prótons. Assim, a opção natural foi a irradiação com partículas alfa para implantação e estudo do *He* em aço, o que na realidade, já havia sido escolhido como objetivo principal de estudo deste trabalho.

O fluxograma da figura (27), mostra a sequência experimental a que foi submetida as amostras.

3.1.5 Irradiações com α (Implantação de *He*)

Para implantação de hélio, as amostras foram irradiadas com partículas alfa com energia máxima de 28 *MeV*. A energia do feixe de partículas foi degradada ciclicamente, por folhas de alumínio com diferentes espessuras fixadas em uma roda giratória, já descrita na seção (3.1.2) (figura (20)).

Para que fosse obtida homogeneidade de implantação com relação a área irradiada, o feixe foi desfocalizado e monitorado no colimador de 4 fendas ajustáveis (figura (19)).

Com taxa de implantação de 10 a 15 *ppma.h⁻¹*, foram implantadas amostras com 1, 3, 5, 10, 20, 30, 50, 70, 100, 120 *ppma* de *He*, sendo 4 amostras de cada, no formato especial para testes de tração. Foram também implantadas amostras no formato especial para teste não destrutivo (seção (3.1.3)), nas concentrações nominais de 10, 30, 50, 100 e 300 *ppma*.

Durante as implantações são produzidos os deslocamentos atômicos. A seguir são apresentados os cálculos para a determinação do número de *dpa* produzidos durante a implantação de *He*.

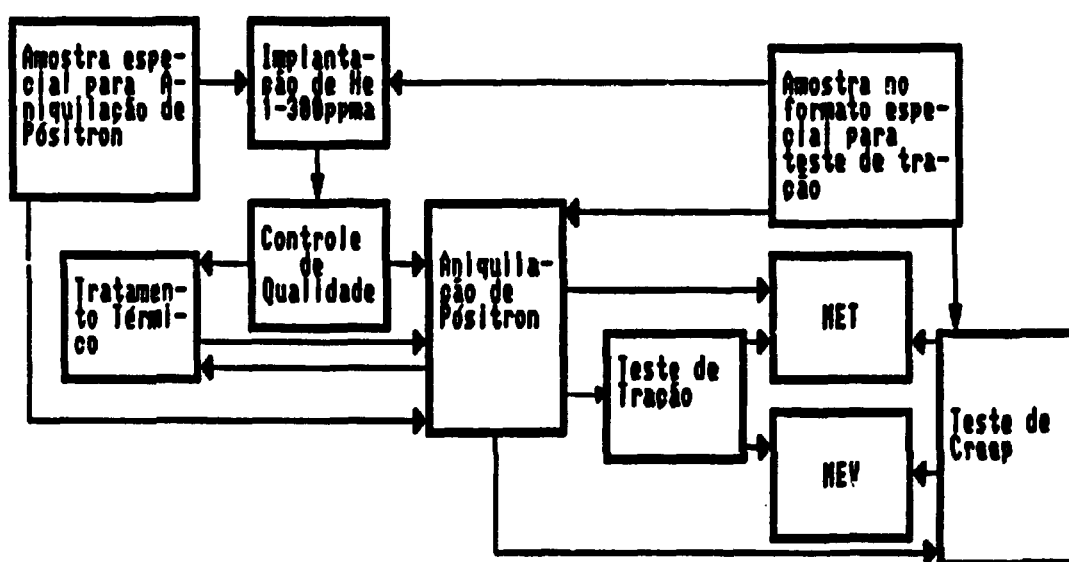


Figura 27: Fluxograma do procedimento experimental.

Produção de dpu Durante a Implantação de He

O número de colisões entre as partículas α , do feixe produzido pelo ciclotron e os átomos da rede cristalina do aço a ser implantado, em uma profundidade x , é calculado usando-se a equação (15)

$$P(E_i, T)dT = \sigma(E_i, T)dTNdx$$

onde, $\sigma(E_i, T)dT$ é a probabilidade de colisão com transferência de energia entre T e $T + dT$, e Ndx é o número de átomos da rede por centímetro quadrado, (com N em átomo.cm^{-3} , dx em cm), e E_i , a energia da partícula incidente.

Se na profundidade x do aço, o número de partículas alfa por centímetro quadrado por segundo é I , então o número de colisões por segundo em um elemento de volume de espessura dx e área de 1 cm^2 é dado por

$$IN\sigma(E_i, T)dTdx . \quad (133)$$

Dividindo a expressão (133) por dx , tem-se o número de colisões por unidade de volume, com transferência de energia na faixa entre T e $T + dT$, na profundidade x , como

$$IN\sigma(E_i, T)dT . \quad (134)$$

Se em uma colisão da partícula α houver a produção de um átomo primário de energia T , este por sua vez produzirá uma quantidade de átomos deslocados por unidade de volume $n(T)$, vista na seção (2.1.7). Assim a taxa de produção de átomos deslocados na profundidade x é

$$R_d(x) = \int_{E_d}^{\Lambda E_i} IN\sigma(E_i, T)n(T)dT. \quad (135)$$

Observe que agora o termo utilizado é *átomos deslocados*, no lugar de colisões. Observe também que o limite inferior da integral agora é E_d , energia de deslocamento, vista na seção (2.1.6), e ΛE_i é a energia máxima transferida, vista na seção (2.1.1).

* não confundir T com temperatura; T representa aqui a energia transferida por uma partícula incidente de energia E_i , para um átomo da amostra.

Multiplicando a taxa de produção de deslocamentos pelo tempo t de irradiação (ou implantação), tem-se a quantidade de átomos deslocados por unidade de volume

$$R_d(x)t \text{ em } \frac{\text{átomos deslocados}}{\text{cm}^3}.$$

Dividindo pela densidade atômica N da rede

$$\frac{R_d(x)t}{N} \text{ em } \frac{\text{átomos deslocados}}{\text{átomo}} \text{ (dpa)}$$

$$dpa = It \int_{E_d}^{\Delta E_i} \sigma(E_i, T) n(T) dT. \quad (136)$$

Este cálculo para o dpa é feito na profundidade x , que por sua vez está relacionado com a energia do feixe, isto é, E_i é função de x , $E_i(x)$ (ver seções (2.1.3) e (2.1.5)). Esta função pode ser obtida do “stopping-power” ou seja, do modo como as partículas alfa perdem energia em função da distância x percorrida dentro da amostra.

$$\frac{-dE_i(x)}{dx} \propto \sqrt{E_i} \quad (137)$$

chamando k a constante de proporcionalidade tem-se

$$dE_i(x) = -k\sqrt{E_i} dx \quad (138)$$

integrando

$$E_i(x) = \left[E_i^{1/2}(0) - \frac{k}{2}x \right]^2. \quad (139)$$

Usando a equação (61) para $n(T)$, com T sendo a energia do átomo primário

$$n(T) = \frac{T}{2E_d}$$

Substituindo (61) e (139) em (136)

$$dpa = It \int_{E_d}^{\Delta E_i(x)} \sigma(E_i(x), T) n(T) dT \quad (140)$$

dividindo pela fluência ($I \times t$)

$$\frac{dpa}{(\alpha \cdot \text{cm}^{-2})} = \int_{E_d}^{\Delta E_i(x)} \sigma(E_i(x), T) \frac{T}{2E_d} dT. \quad (141)$$

Considerando a interação íon-átomo do tipo coulombiana, o potencial é dado pela equação (29)

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r}$$

onde r é a distância íon-átomo. De acordo com cálculos feitos na seção (2.1.5), para a seção de choque de interação com um potencial deste tipo, tem-se

$$\sigma(E_i(x), T) = \pi Z_1^2 Z_2^2 e^4 \frac{M_1}{M_2} \frac{1}{E_i(x)} \frac{1}{T^2} \quad (142)$$

Seja,

$$\gamma = \pi Z_1^2 Z_2^2 e^4 \frac{M_1}{M_2} \quad (143)$$

substituindo em (141)

$$\begin{aligned} \frac{dpa}{(\alpha.cm^{-2})} &= \gamma \int_{E_d}^{\Lambda E_i(x)} \frac{1}{E_i(x)} \frac{T}{2E_d} \frac{1}{T^2} dT = \\ &= \frac{\gamma}{2E_d E_i(x)} \int_{E_d}^{\Lambda E_i(x)} \frac{1}{T} dT = \frac{\gamma}{2E_d E_i(x)} \ln \left(\frac{\Lambda E_i(x)}{E_d} \right) \end{aligned} \quad (144)$$

como $E_i(x) = [E_i^{1/2}(0) - \frac{k}{2}x]^2$, pode-se escrever

$$\left. \frac{dpa}{(\alpha.cm^{-2})} \right|_x = \frac{\gamma}{2E_d [E_i^{1/2}(0) - \frac{k}{2}x]^2} \ln \left\{ \frac{\Lambda}{E_d} [E_i^{1/2}(0) - \frac{k}{2}x]^2 \right\}, \quad (145)$$

na profundidade x da amostra irradiada.

Chamando $dpa/(\alpha.cm^{-2})$ de $R_d(x)$, sua representação gráfica em função de x tem a forma da figura (28).

Para calcular o número de $dpa/(\alpha.cm^{-3})$ na espessura da amostra, basta integrar (145) em dx , com x variando de 0 até o alcance x_i relativo a energia E_i do íon incidente.

Como estamos utilizando uma roda degradadora de energia para implantação de *He* (seção (3.1.2)), este cálculo deve ser feito para cada energia degradada pelas folhas de alumínio (figura (20)), e posteriormente considerados em um somatório.

Para a energia E_i na espessura x_i da amostra tem-se

$$\frac{dpa}{(\alpha.cm^{-3})} = \frac{\gamma}{2E_d} \int_0^{x_i} \frac{dx}{[E_i^{1/2}(0) - \frac{k}{2}x]^2} \ln \left\{ \frac{\Lambda}{E_d} [E_i^{1/2}(0) - \frac{k}{2}x]^2 \right\} \quad (146)$$

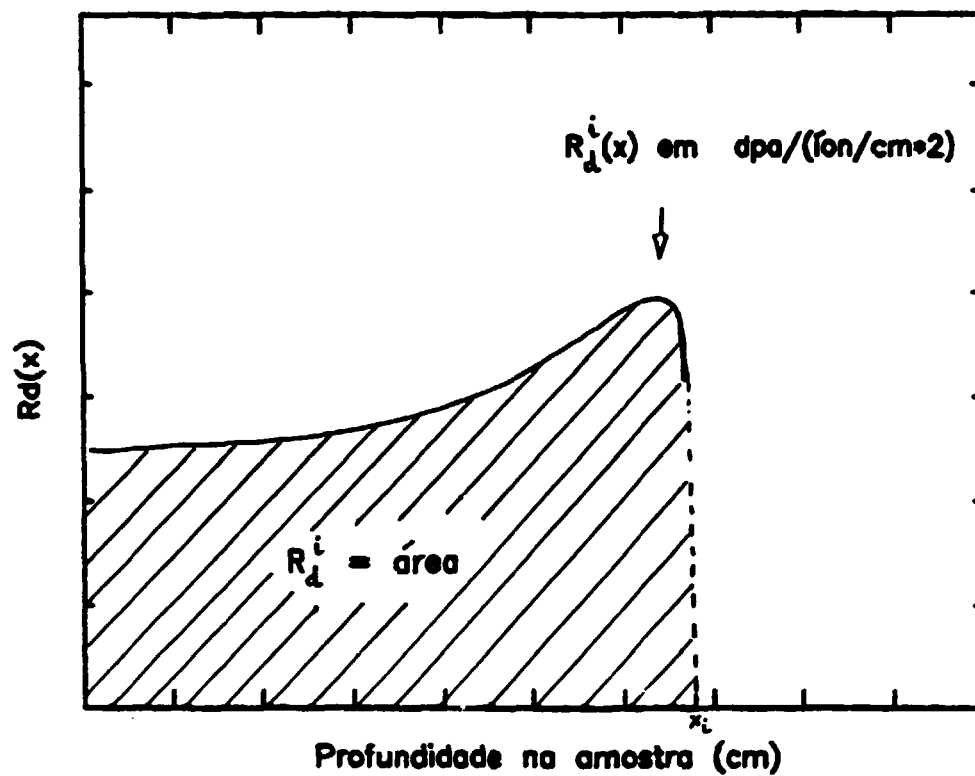


Figura 28: Representação gráfica de $R_d^i(x)$ em $\text{dpa}/(\text{ion}/\text{cm}^2)$.

por simplicidade seja

$$\begin{cases} \frac{dpa}{(\alpha.cm^{-3})} \rightarrow R_d^i \\ \frac{\gamma}{E_d} = \Omega ; A_i = E_i^{1/2} \\ \frac{\Lambda}{E_d} = \xi^2 ; B = \frac{k}{2} \end{cases} \quad (147)$$

R_d^i significa o número de $dpa/(\alpha.cm^{-3})$ produzido em toda a espessura x_i , devido a partícula incidente de energia $E_i(0)$, ou seja a área sob $R_d^i(x)$, mostrada na figura (28).

Assim das equações (147) em (146)

$$R_d^i = \frac{\Omega}{2} \int_0^{x_i} \frac{dx}{[A_i - Bx]^2} \ln \xi^2 [A_i - Bx]^2 \quad (148)$$

multiplicando e dividindo a equação (148) por ξ^2

$$R_d^i = \frac{\Omega}{2} \xi^2 \int_0^{x_i} \frac{dx}{\xi^2 [A_i - Bx]^2} \ln \xi^2 [A_i - Bx]^2 \quad (149)$$

fazendo

$$\begin{cases} \xi A_i = a_i \\ \xi B = b \end{cases} \quad (150)$$

tem-se

$$R_d^i = \Omega \xi^2 \int_0^{x_i} \frac{dx}{[a_i - bx]^2} \ln [a_i - bx] \quad (151)$$

resolvendo esta integral

$$R_d^i = \Omega \xi^2 \left\{ \frac{\ln [a_i - bx] + 1}{b[a_i - bx]} \right\} \Big|_0^{x_i}, \quad (152)$$

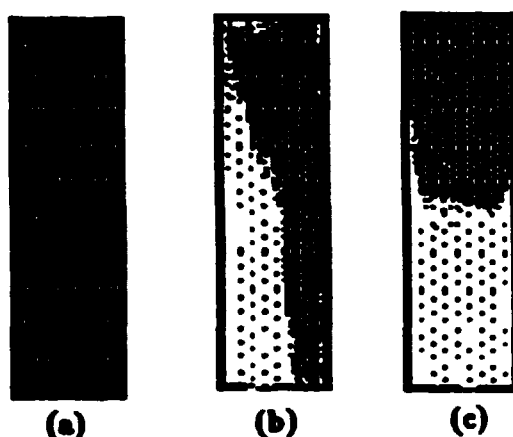
usando (150)

$$R_d^i = \frac{\Omega}{B} \left\{ \frac{\ln [A_i - Bx] + \ln \xi + 1}{[A_i - Bx]} \right\} \Big|_0^{x_i}$$

ou

$$R_d^i = \frac{\Omega}{B} \left\{ \frac{\ln [A_i - Bx] + \ln \xi + 1}{[A_i - Bx]} - \frac{\ln A_i + \ln \xi + 1}{A_i} \right\}. \quad (153)$$

Esta equação será usada na seção (4.1) para o cálculo da razão $\frac{ppma}{dpa}$, durante as implantações de He com a roda degradadora de energia.



(a) implantação homogênea, (b) e (c) implantações não homogêneas

Figura 29: Sensibilização fotográfica para controle de qualidade das implantações.

Controle de Qualidade das Implantações

São realizados dois tipos de controle de qualidade, o primeiro está relacionado com a homogeneidade da área irradiada, e é feito pela sensibilização de filme dosimétrico (figura (29)).

O segundo tipo de controle tem por objetivo a verificação comparativa da quantidade de hélio implantada. Nesta técnica utiliza-se a espectrometria gama (figura (30)), para medição da atividade de um determinado radionuclídeo produzido durante a implantação.

No caso dos aços o raio gama mais conveniente para estas medidas é o de 811 keV emitido pelo ^{58}Co produzido pelas reações $^{56}\text{Fe}(\alpha, np)^{58}\text{Co}$ e $^{55}\text{Mn}(\alpha, n)^{58}\text{Co}$. Como a atividade do pico gama é proporcional a quantidade de hélio implantado, é possível uma verificação relativa destas quantidades.

Assim, foram selecionadas as amostras para testes não destrutivos e posteriormente, testes destrutivos apresentados a seguir.

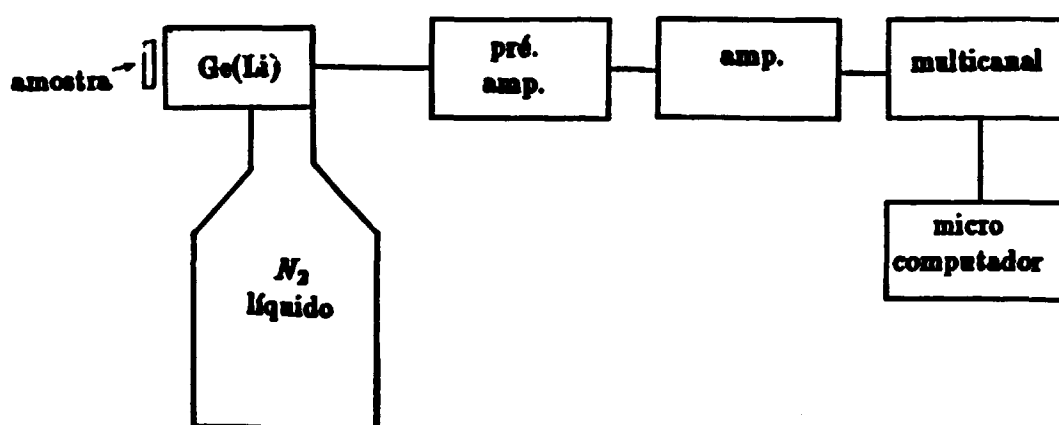


Figura 30: Diagrama esquemático da espectrometria gama para controle de dose e qualidade das implantações de *He*.

3.2 Técnica não Destrutiva (Aniquilação de Póstron)

Como as propriedades de um material não podem ser estudadas acompanhando cada um de seus átomos, o estudo é feito considerando o material como um todo, ou seja, um sistema de muitos corpos. Assim as posições dos elétrons podem ser expressas pela distribuição da densidade eletrônica e as velocidades pela distribuição dos momenta dos elétrons^[95]. Informações a respeito destas distribuições possibilitam prever as condições que determinam as propriedades macroscópicas dos materiais.

Os pósitrons, devido a sua carga positiva e pequena massa, são partículas sensíveis às imperfeições estruturais dos materiais. Esta sensibilidade está relacionada com o fato de que alguns defeitos são carregados negativamente. Por esta razão os pósitrons *respondem* a estes defeitos de modo diferente do resto do material^[96].

Quando um pósitron entra na matéria condensada, ele atinge profundidades que variam entre 10 μm e 1 mm . O processo de perda de energia do pósitron, se dá através de choques com elétrons e íons. Depois de aproximadamente 3 ps (em metais e ligas^[97]), quando o pósitron atinge a energia térmica ($\approx 0,025 \text{ eV}$), ele aniquila-se com um elétron do meio, emitindo raios gama cuja energia e hora de emissão podem ser medidos com precisão.

O processo de aniquilação fornece uma energia de $\approx 2 mc^2$ (aproximadamente a massa de repouso do par elétron-positron). Assim, o resultado da aniquilação é a emissão de dois raios gama de $\approx 511 \text{ keV}$, chamados de radiação de aniquilação.

A teoria quântica deste fenômeno é complicada, mas para partículas de baixa energia (\approx *térmica*), pode-se mostrar^[98] que as características da radiação de aniquilação depende quase que totalmente do estado inicial do sistema elétron-póstron.

Existem também evidências experimentais indicando que a probabilidade de aniquilação é pequena, a menos que a velocidade relativa do par seja pequena, ou seja, é a mesma condição de termalização do pósitron antes de sua aniquilação^[99].

Em ligas metálicas como o aço, os pósitrons são repelidos pelos potenciais iônicos para regiões intersticiais fazendo com que defeitos do tipo vacâncias, discordâncias, “voids” e bolhas de gases sejam favoráveis ao aprisionamento^[100].

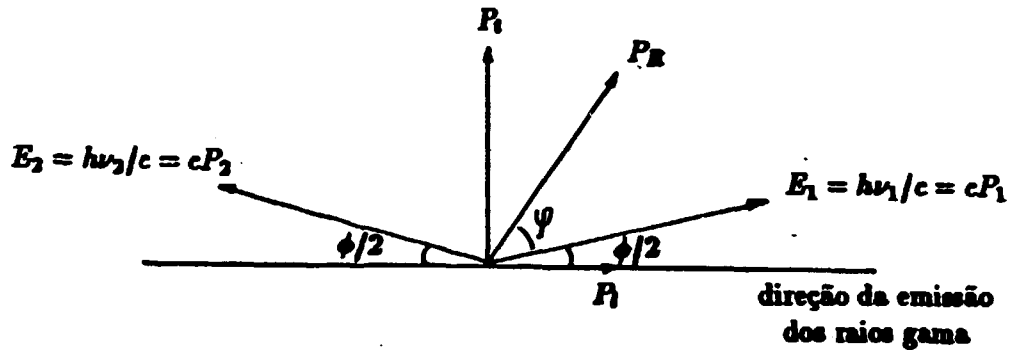


Figura 31: Radiação de aniquilação onde P_r é o momento do centro de massa, P_t e P_l são as componentes transversal e longitudinal do momento do par, $P_{1,2}$ são os momenta dos fótons 1 e 2.

As características da radiação de aniquilação em uma região com defeitos ou danos, é diferente daquelas onde o material não contém defeitos. Assim, a medida da variação destas características fornece a base para uma técnica não destrutiva para estudos de danos em materiais.

3.2.1 Correlação Angular

Se no momento da aniquilação, o par elétron-pósitron tiver alguma quantidade de movimento no referencial do laboratório, a radiação de aniquilação sofrerá alterações a fim de conservar o momentum e energia do processo de aniquilação. Em outras palavras a radiação de aniquilação deixa de ser colinear e ainda experimenta uma variação ΔE no valor da energia^[10] (figura (31)),

Usando a conservação de energia e momento

$$c|\vec{P}_1| + c|\vec{P}_2| = 2m_0c^2 \quad (154)$$

$$(|\vec{P}_1| - |\vec{P}_2|)\cos(\phi/2) = P_t \quad (155)$$

$$(|\vec{P}_1| + |\vec{P}_2|)\text{sen}(\phi/2) = P_t \quad (156)$$

para ângulos pequenos

$$\cos(\phi/2) \simeq 1 \text{ e } \text{sen}(\phi/2) \simeq \phi/2$$

Somando as equações (154) e (155)

$$|\vec{P}_1| = m_0c + P_t/2$$

mas

$$c|\vec{P}_1| = E_1 \text{ ou } c|\vec{P}_1| = m_0c^2 + P_t c/2$$

logo,

$$E_1 = E_0 + \Delta E \quad (157)$$

$$\Delta E = P_t c/2 \quad (158)$$

Subtraindo as equações (154) e (155)

$$c|\vec{P}_2| = m_0c^2 - P_t c/2 \quad (159)$$

ou

$$E_2 = E_0 - \Delta E \quad (160)$$

Substituindo (154) e (156) tem-se

$$\phi = \frac{P_t}{m_0c} \quad (161)$$

A distribuição dos valores de ϕ em um plano, tem uma largura da ordem de miliradianos. Esta distribuição pode ser medida com o arranjo experimental da figura (32), composto de dois detectores de $NaI(Tl)$, dois colimadores e um sistema de contagens de coincidência. Um dos detectores é fixo enquanto o outro pode girar em torno de um eixo perpendicular ao plano da figura, e que passa pelo conjunto (*amostra+fonte*).

A pequena variação angular implica em ângulos sólidos de detecção também pequenos. Assim, um sistema de medida com a resolução adequada deve satisfazer algumas condições:

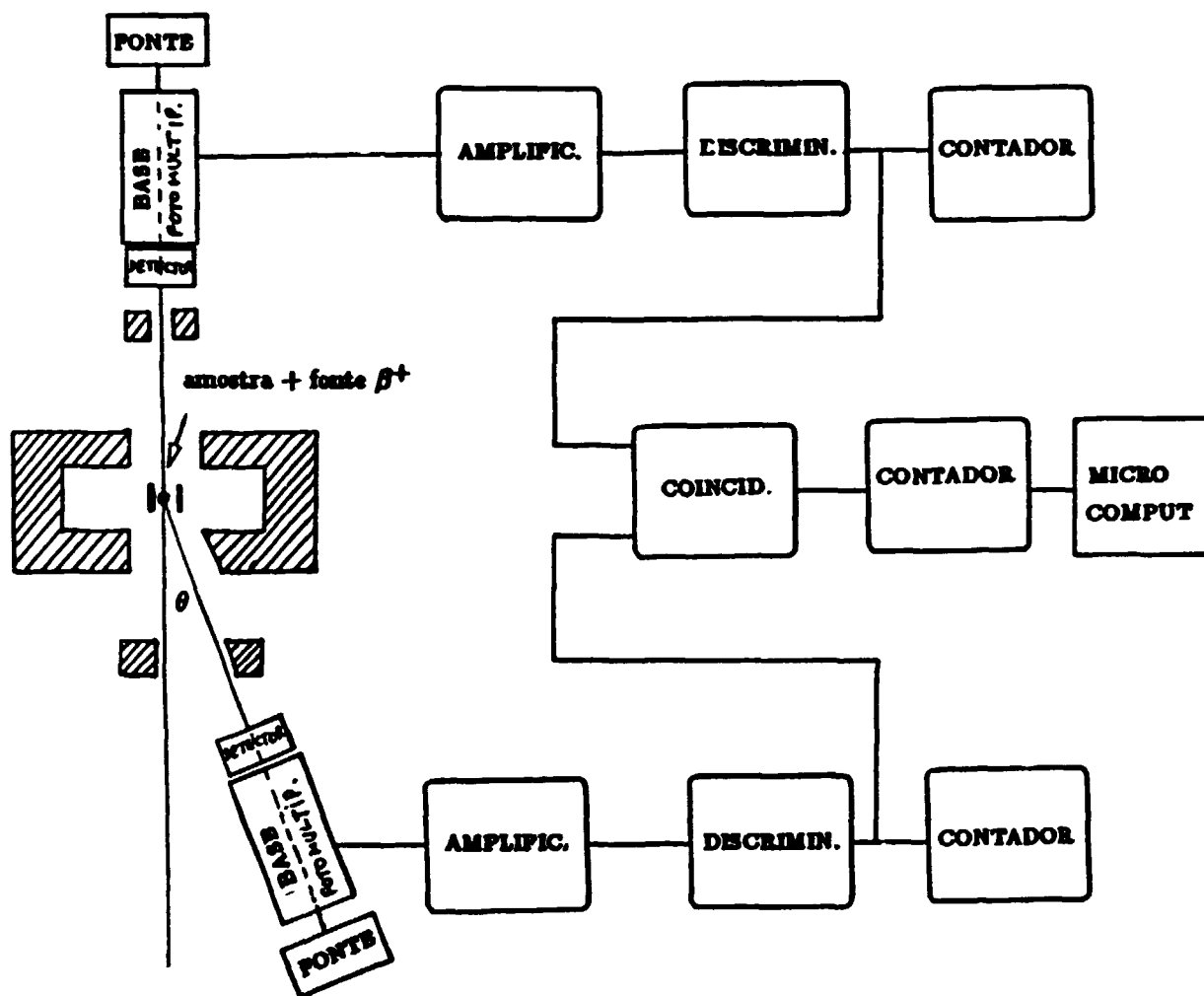


Figura 32: Diagrama esquemático do sistema de medida de correlação angular.

- a distância entre os detectores e o conjunto de *amostra+fonte* β^+ deve ter aproximadamente 2 metros,
- a atividade da fonte de pósitrons deve ser alta o suficiente (10–50 *mCi*), para satisfazer as condições de estatística de contagens, de 10^4 contagens/posição, considerando a distância,
- blindagem adequada

No processo de aniquilação, o elétron é responsável pela maior parte do *momentum* do centro de massa do par elétron-pósitron. Esta contribuição é maior ainda se a aniquilação se dá com um elétron de valência. A razão entre a taxa de aniquilação com elétrons de condução e elétrons de valência depende se o pósitron penetra *livremente* através da amostra até sua aniquilação, ou se é aprisionado em algum tipo de defeito como; vacâncias, “voids” ou bolhas.

Quando o pósitron é *preso* em um defeito, a probabilidade de aniquilação com elétrons de condução é maior. Por esse motivo, a quantidade de movimento de par elétron-pósitron é pequena, de tal modo que o desvio angular da radiação de aniquilação é insignificante, assim como sua variação de energia ΔE eq. (158). Na prática, isto resulta em um número maior de contagens de coincidências medidas a 180° , provocando um *estreitamento* da curva característica de correlação angular, (figura (33)).

3.2.2 Alargamento “Doppler”

Outro efeito da conservação da quantidade de movimento do centro de massa do par elétron-pósitron, é a variação ΔE (eq. (158)) na energia da radiação de aniquilação. Esta variação de energia pode ser entendida como uma variação “Doppler” (“Doppler shift”)^[102].

Da eq. ($\Delta E = P/c/2$) pode-se verificar que, se a energia do centro de massa do par é ≈ 1 eV, a mudança na energia de cada raio gama de 511 keV é de aproximadamente 1 keV. Esta variação de energia pode ser medida experimentalmente, utilizando um detector com resolução adequada ($< 1,5$ keV na FWHM do pico gama de 511 keV).

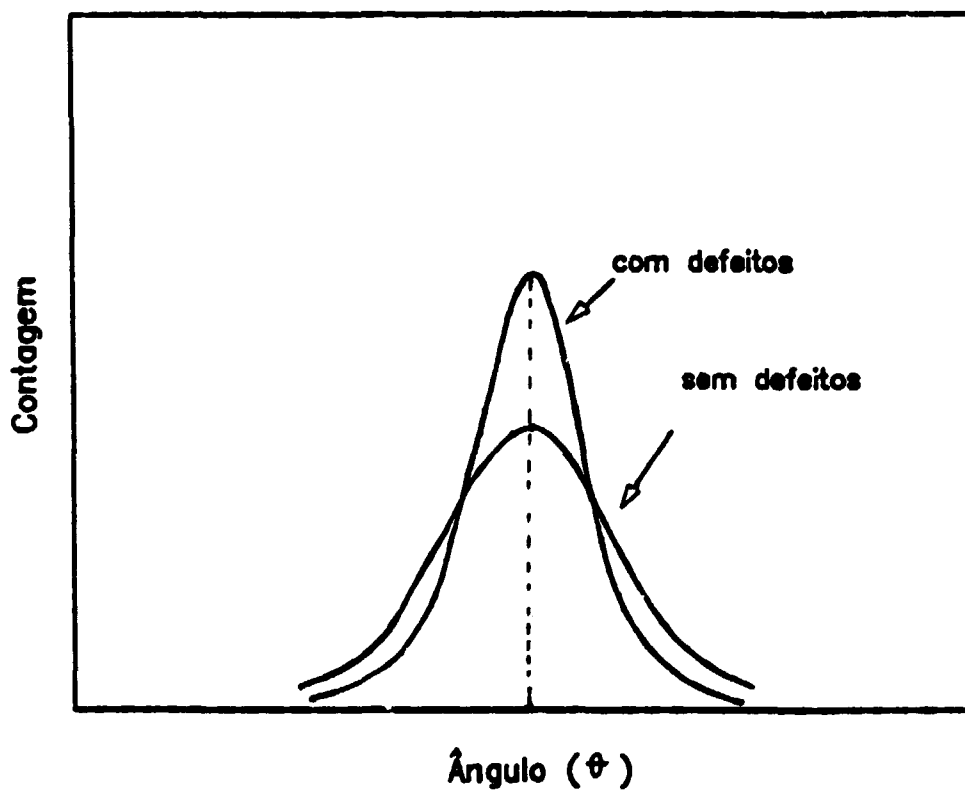


Figura 33: Curva típica de correlação angular.

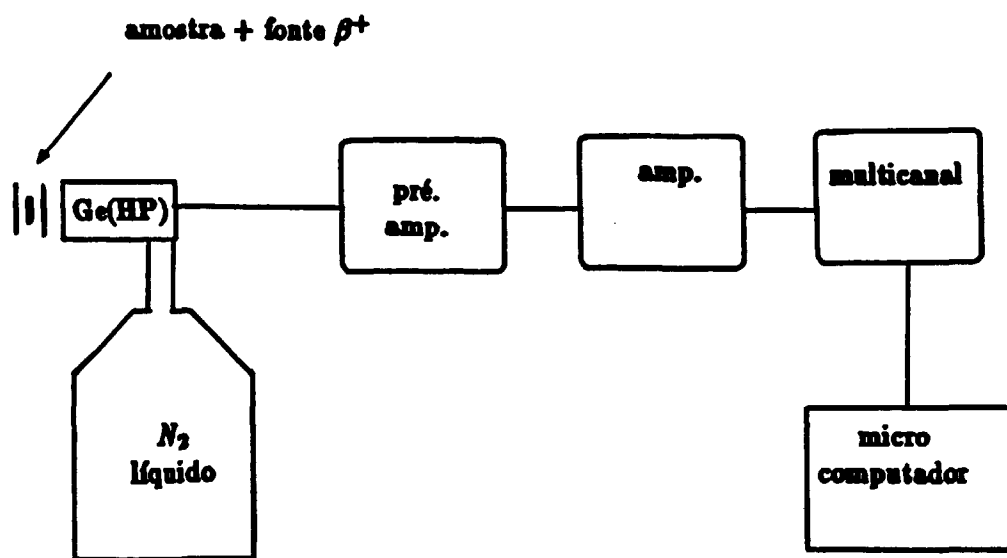


Figura 34: Diagrama esquemático do sistema de medida de alargamento "Doppler".

O método "Doppler" fornece uma curva de distribuição de quantidade de movimento dos elétrons. Esta distribuição é mais estreita quando o material testado apresenta defeitos em sua rede cristalina, pelas mesmas razões do estreitamento da curva de correlação angular.

A curva de distribuição neste caso tem precisão menor que no caso da correlação angular, porque o espectro de energia, cuja faixa normal é da ordem de alguns $keVs$, é medido com um detector que dificilmente possui resolução melhor que $1,2 keV$. Em compensação, o método "Doppler" é muito mais simples, usa fonte β^+ de baixa intensidade, é prático, compacto, flexível e atualmente até portátil. A representação esquemática do sistema utilizado para medidas de alargamento "Doppler" é mostrado na figura (34).

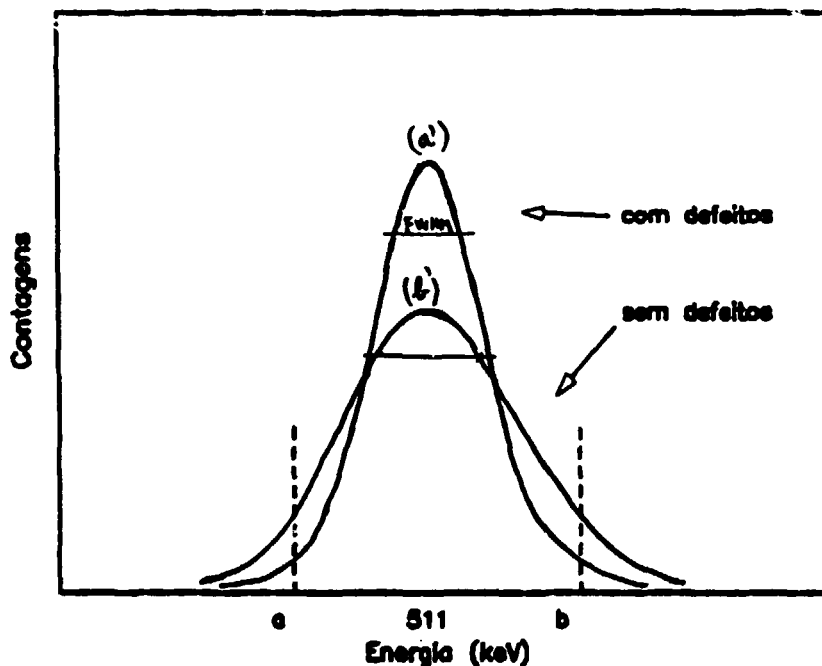


Figura 35: Curvas de alargamento “Doppler”.
 (a) curva característica de amostra com defeitos e (b) sem defeitos

Análise da Curva de Alargamento “Doppler”

Na prática, são feitas medidas da largura a meia altura (FWHM), do pico de 511 keV, que é mais estreito em amostras com maior quantidade de defeitos (figura (35)). Analogamente à descrição das características da curva de correlação angular, a justificativa para este estreitamento são aniquilações com elétrons de condução, onde o valor de ΔE é menor, proporcionando um número maior de contagens de raios gama com energia muito próxima de 511 keV.

A análise dos espectros obtidos pode ser feita, definindo-se o parâmetro $S_1^{[103]}$, como a razão das áreas entre determinados limites a e b , e a área total do pico gama de 511 keV (figura (36)).

$$S_1 = \frac{A_1^{ab}}{A_{tot}}$$

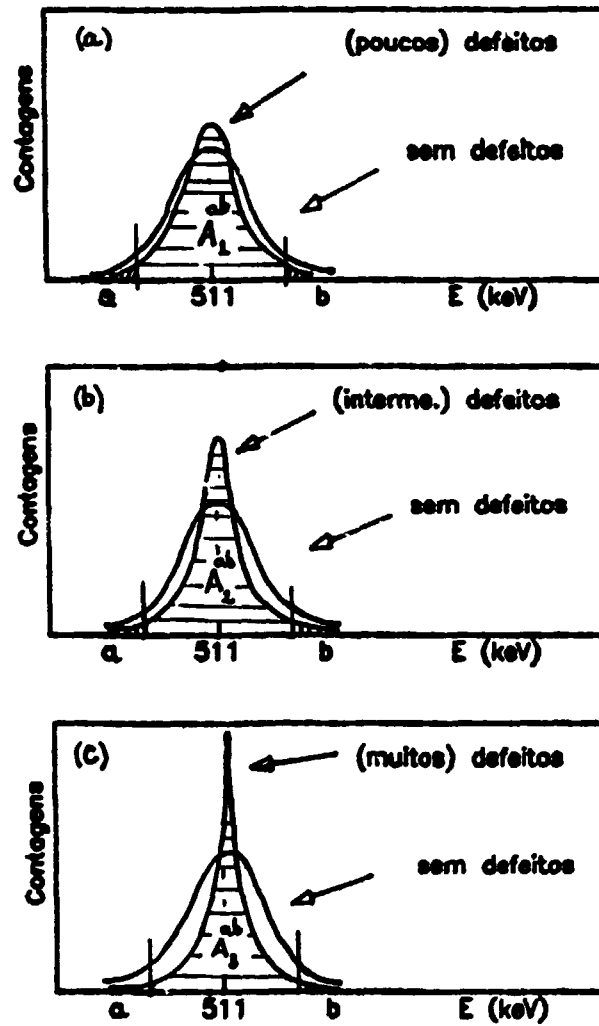


Figura 36: Determinação do parâmetro S comparativamente as áreas hachurradas representam: (a) pouca quantidade de defeitos, (b) quantidade intermediária e em (c) grande quantidade de defeitos no material estudado, com isto $S_3 > S_2 > S_1$.

$$S_2 = \frac{A_2^{ab}}{A^{tot}}$$

$$\Delta S = S_2 - S_1 > 0$$

onde A^{tot} , é a área total do pico, e A^{ab} , é a área do pico entre os limites a e b . ΔS crescente significa aumento da quantidade de defeitos na rede.

Este método foi aplicado nas amostra de aço AISI 316 e 347, os resultados e discussão estão na seção (4.3.4)

3.2.3 Tempo de Vida de Pósitron

As previsões teóricas^[104] e as evidências experimentais^[105] mostram que a probabilidade de aniquilação do par elétron-pósitron é pequena se a velocidade relativa do par é alta. Em outras palavras a taxa de aniquilação aumenta quando o pósitron se termaliza. Assim, aniquilações com elétrons mais internos são raras, não só pelo fato da velocidade relativa ser maior, como também pela repulsão coulombiana entre os núcleos de átomos da rede e o pósitron.

Deste modo, pode-se concluir que a taxa de aniquilação depende da concentração de elétrons *vista* pelo pósitron, e está relacionada com o tempo de vida médio do pósitron dentro do material. Em metais e ligas este tempo é da ordem de 120 a 300 ps. A variação deste tempo é atribuída a presença de regiões carregadas negativamente que atuam como armadilhas^[99] para os pósitrons, como é o caso de defeitos do tipo vacâncias.

Experimentalmente pode-se medir intervalos de tempo desta ordem com precisão de alguns picosegundos, utilizando-se um *espectrômetro de tempo*, que é descrito na seção seguinte.

Um dos componentes fundamentais do espectrômetro de tempo é a fonte emissora de pósitrons, que deve ter como uma de suas características, a emissão de um raio gama de alta energia *quase* simultaneamente à emissão do pósitron (seção (3.2.4)). Este raio gama é usado para determinar a hora de nascimento do pósitron enquanto que a radiação de aniquilação é usada para determinar sua morte. Com isso, é possível obter um espectro de tempo médio de vida de pósitron dentro de material.

3.2.4 O Espectrômetro de Tempo

Para as medidas de tempo de vida de pósitron nas amostras estudadas neste trabalho, foi montado e otimizado^[106] um espectrômetro de tempo (figura (37)).

As fontes de pósitrons comumente usadas em espectrometria de tempo são ^{22}Na e ^{68}Ge . Entretanto, por motivos que foram vistos na seção (3.2.3), foi utilizado o ^{48}V como fonte de pósitrons, também apropriado^[107] à espectrometria de tempo.

Segundo o esquema de decaimento do ^{48}V (figura (38)), depois de 1,7 ps da emissão de um pósitron, ocorre a emissão de um raio gama de 1312 keV, usado para determinar o instante em que o pósitron nasce e entra na amostra, sendo por isso chamado sinal de “start”.

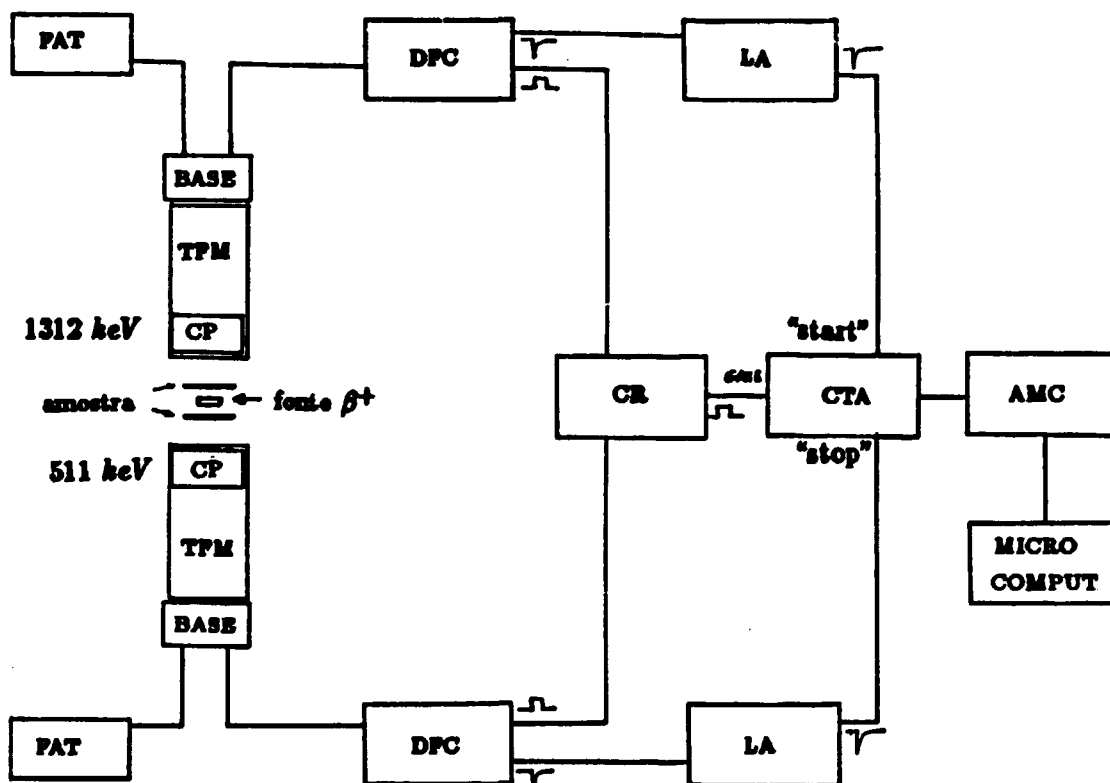
O tempo decorrido entre a emissão desse pósitron e a subsequente detecção da radiação de aniquilação (511 keV), determina o tempo que o pósitron vive dentro do material. Por isso a radiação de aniquilação é chamada de sinal de “stop”.

No espectrômetro de tempo, foram utilizados cintiladores plásticos NE 210 acoplados a tubos fotomultiplicadores HAMAMATSU R 329, montados em dois ramos; um ramo chamado lento, caracterizado pela presença de linhas de atraso ORTEC 425A, e um ramo rápido caracterizado pelo processamento eletrônico de sinais de tempo^[108], (figura (39)).

No ramo lento, os sinais de saída de cada fotomultiplicadora, são selecionados e processados por um discriminador diferencial DFC ORTEC 583 associado a cada detector.

A seleção é feita através de uma janela de energia variável que seleciona sinais para o “start” (1312 keV), e para o “stop” (511 keV). Estes sinais, selecionados e processados, são passados a um conversor de tempo em altura de pulso CTA ORTEC 467. Este módulo por sua vez, produz pulsos com altura proporcional ao intervalo de tempo entre a detecção de um evento no detector A, (“start”), e outro evento correlacionado no detector B, (“stop”).

A verificação da correlação entre os eventos é feita por um módulo de coincidência rápida CR ORTEC 414, ligado ao ramo rápido. Este módulo emite um sinal (figura (39)), para o “gate” do CTA, toda vez que os sinais de entrada provenientes dos discriminadores, estiverem dentro dos limites de tempo previamente ajustados. Assim, apenas os sinais



CP - CINTILADOR PLÁSTICO
 FAT - FONTE DE ALTA TENSÃO
 TPM - TUBO FOTOMULTIPLICADOR
 CR - COINCIDÊNCIA RÁPIDA

DFC - DISCRIMINADOR A FRAÇÃO CONSTANTE
 LA - LINHA DE ATRASO
 CTA - CONVERSOR TEMPO - ALTURA DE PULSO
 AMC - ANALISADOR MULTICANAL

Figura 37: Diagrama esquemático do espectrômetro de tempo.

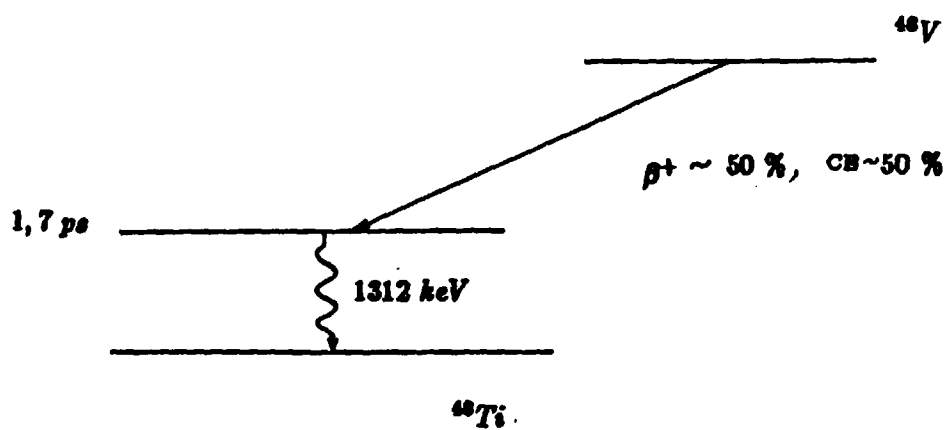


Figura 38: Esquema de decaimento do ^{48}V .

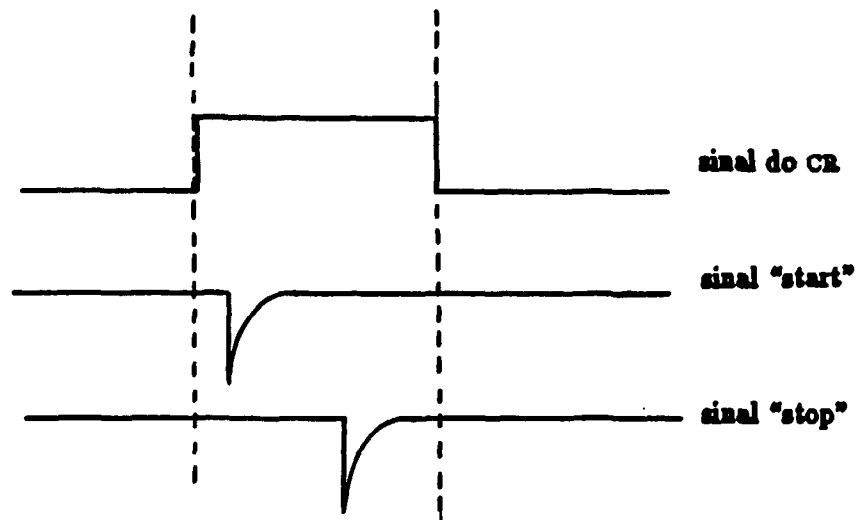
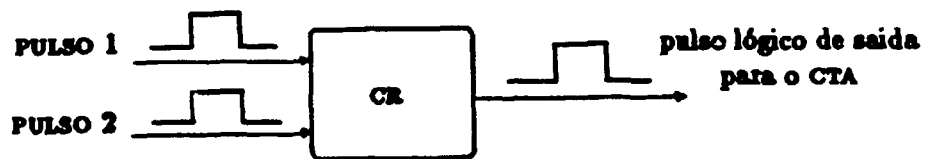


Figura 39: Processamento de sinais no espectrômetro de tempo
CR é o módulo de coincidência rápida. Os sinais "start" e "stop" são ajustados para ocorrerem dentro do intervalo de duração do sinal de saída do *CR*. O intervalo Δt registra, em um analisador multicanal, o tempo de vida de pósitron.

relevantes emitidos pelo CTA são enviados à um analisador multicanal.

Como o decaimento de um radioisótopo é um processo estatístico, o espectrômetro está sujeito a variações estatísticas, fazendo com que o espectro final obtido, seja a soma de uma *função resolução* do sistema com o espectro *puro* de tempo (curva de decaimento).

A função resolução do sistema pode ser *simulada* usando-se uma fonte de ^{60}Co , considerando-se que este isótopo emite dois raios gama (energia 1173 e 1332 keV) *quase* simultaneamente.

A função resolução para o espectrômetro utilizado neste trabalho foi determinada deste modo e teve como resultado, uma resolução de ≈ 363 ps FWHM e ≈ 980 ps FWTM (figura (52)).

Produção da Fonte de β^+

As fontes de pósitrons comumente utilizadas em medidas desta natureza são ^{22}Na e ^{68}Ge . Entretanto, considerando as dificuldades tanto de importação como de produção das fontes citadas, foi feito um estudo sobre a viabilidade de produção de uma fonte alternativa^[107].

Como critério de seleção das reações mais adequadas aos nossos propósitos, foram considerados os seguintes fatores:

- decaimento (da fonte) para um estado excitado de vida curta (≤ 3 ps),
- material a ser utilizado como alvo,
- limitações do cíclotron como: corrente, energia e partículas que podem ser aceleradas,
- tempo de meia vida do radioisótopo produzido,
- viabilidade econômica, isto é: reação com rendimento satisfatório e,
- relação entre a taxa de emissão β^+ e captura eletrônica.

Das reações pesquisadas, as reações $\text{Ga}^{69}(p, 2n)^{68}\text{Ge}$, $\text{Mg}^{24}(d, \alpha)^{22}\text{Na}$ e $^{48}\text{Ti}(p, n)^{48}\text{V}$, foram as que melhor satisfizeram as condições acima.

A primeira reação, apesar de ter um rendimento razoável ($\approx 15 \mu Ci/\mu Ah$) para uma mesma espessura de $\approx 1,1 \text{ mm}$ de *Ga*, tem a desvantagem do *Ga* ser líquido acima de $30^\circ C$, o que dificulta a irradiação.

A segunda reação tem a vantagem do tempo de meia vida do ^{22}Na ser relativamente longo (2,6 a), porém, a separação química^[109] exige cuidados especiais, e o baixo rendimento da reação nas condições desejadas ($\approx 0,7 \mu Ci/\mu Ah$), fizeram com que a escolha recaísse sobre a reação $^{48}Ti(p, n)^{48}V$.

Um cálculo teórico inicial do rendimento esperado para uma espessura de *Ti* de $\approx 570 \mu m$, indicou um rendimento de $\approx 216 \mu Ci/\mu Ah$. Uma desvantagem desta reação, com relação a anterior, é o tempo de meia vida do ^{48}V (16 d). Contudo, esta desvantagem é compensada pela facilidade do uso do ciclotron quando for necessário a produção de nova fonte com atividade suficiente.

Após um teste inicial feito com 4 folhas de *Ti* empilhadas, cada uma com $125 \mu m$ de espessura, foi possível determinar as condições *ideais* para produção da fonte alternativa de pósitron. A condição final foi a seguinte, 5 folhas de *Ti* com $\approx 25 \mu m$ cada uma, empilhadas e irradiadas com prótons de 14 MeV .

A atividade média de cada folha de *Ti* foi de $\approx 12 \mu Ci$ sendo que as folhas 3 e 4 ficaram com a atividade maior que as outras e foram as utilizadas como fonte de β^+ para medidas de tempo de vida.

As figuras (38) e (40) mostram o esquema de decaimento e o espectro de energia do ^{48}V , com os picos de energia característicos deste radionuclídeo.

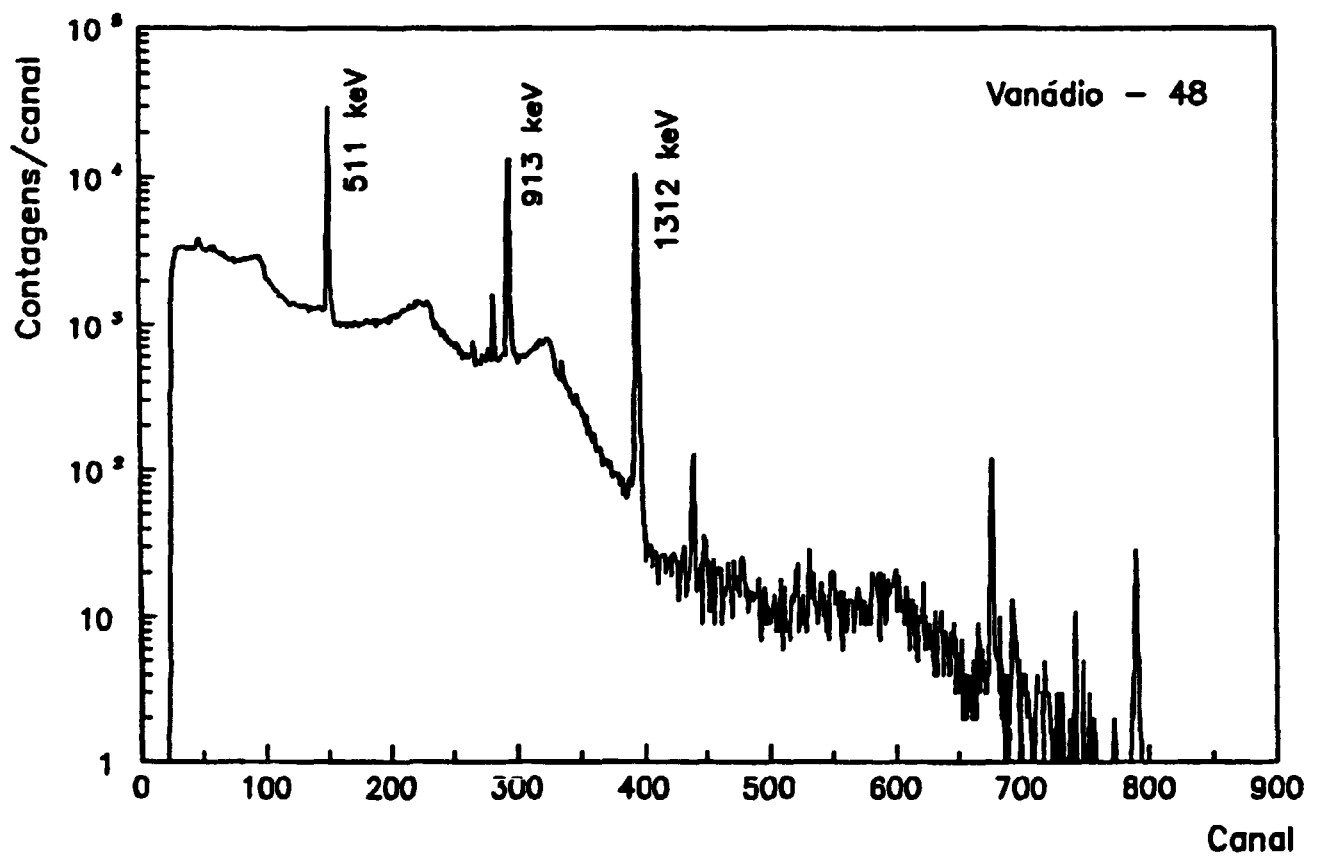
Análise do espectro de tempo

O espectro de tempo, é composto basicamente de duas ou mais exponenciais, uma função resolução e um "background" (figura (41)).

A função exponencial que corresponde à taxa de aniquilação λ_i (ou inverso do tempo de vida τ_i), é dado por

$$I_i(t) = I_{0i}e^{-\lambda_i t} \text{ para } t > 0 \text{ e } 0 \text{ para } t < 0, \quad (162)$$

onde t é o número do canal e representa uma medida do tempo, e I_{0i} é uma constante.

Figura 40: Espectro de energia do ^{48}V .

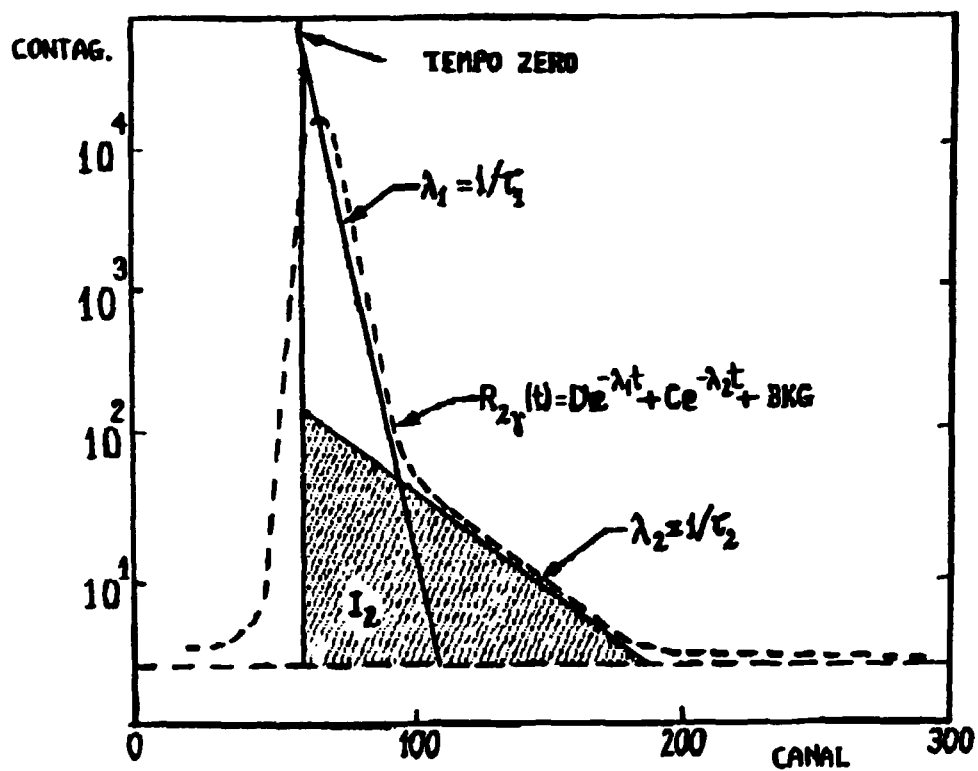


Figura 41: Espectro típico de tempo com duas componentes τ_1 e τ_2 , I é a intensidade.

A função resolução $G(t)$, é uma gaussiana do tipo

$$G(t) = \frac{1}{\sqrt{\pi}\sigma} \exp[-(t - t_0)/\sigma]^2. \quad (163)$$

A convolução^[110] das exponenciais com a gaussiana dá a forma final do espectro de tempo de vida de pósitron

$$G(t) = \frac{1}{2} I_{0i} \exp[-\lambda_i(t - t_0 - \lambda_i\sigma^2/4)] \times [1 - \operatorname{erf}\{\lambda_i\sigma/2 - (t - t_0)/\sigma\}], \quad (164)$$

onde σ é o desvio padrão e está relacionado com FWHM por

$$2(\ln 2)^2 \sigma = FWHM.$$

Assim, a análise dos espectros é feita através da determinação experimental da função resolução, seguida da *deconvolução* das exponenciais, e subtração do *background*.

3.3 Técnicas Destrutivas

Após as amostras terem sido submetidas ao teste não destrutivo de aniquilação de pósitron, houve uma seleção das mesmas para determinar grupos de amostras a serem submetidas aos testes destrutivos. A seleção teve como objetivo, além do controle de qualidade, obter conjuntos de amostras em que os resultados possam ser analisados e comparados com resultados de outros testes destrutivos, uma vez que cada teste destrutivo inutiliza a amostra.

Um dos critérios de seleção, foi a análise por espectrometria gama^[111], para determinar, com maior precisão a dose de irradiação recebida pela amostra, e a sensibilização fotográfica para verificação da homogeneidade da área irradiada (seção (3.1.5)).

Posteriormente, as amostras foram submetidas aos seguintes testes destrutivos; ensaios de tração, “creep”, MET e MEV.

3.3.1 Teste de Tração

O objetivo principal dos ensaios de tração, foi determinar os parâmetros fundamentais que caracterizam o comportamento mecânico e os limites de carregamento a ser usado em outro teste destrutivo, “creep”, que será visto na seção (3.3.2)).

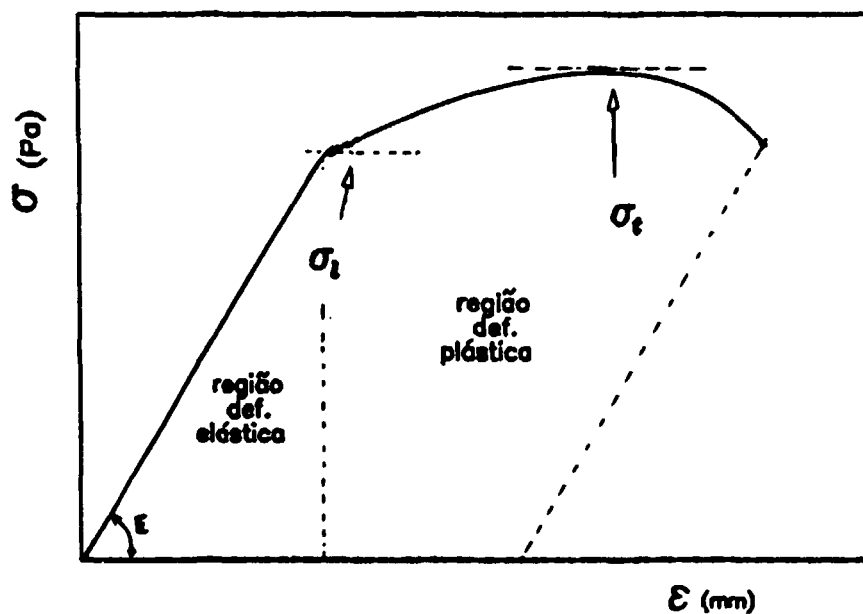


Figura 42: Curva típica de um ensaio de tração onde σ é a tensão e ϵ é a deformação.

Em uma curva típica de um teste de tração^[112] (figura (42)), observa-se a variação da tensão σ com a deformação ϵ . Desta curva pode-se obter os seguintes parâmetros:

- resistência à tração (σ_t/A_i), com A_i a área inicial de secção do corpo de prova
- limite de escoamento (σ_e/A_i)
- módulo de elasticidade $\Delta\sigma/\Delta\epsilon = E$, (dentro do regime elástico)
- ductilidade caracterizada pelo alongamento (deformação plástica máxima) e da estricção (redução máxima da secção transversal da amostra)
- tenacidade (energia máxima de deformação no regime plástico)
- resistência (energia máxima da deformação no regime elástico)

A análise da curva de tensão deformação de dois materiais diferentes, um dúctil e outro frágil permite observar que: a) no material dúctil a região do regime plástico é muito maior que a do regime elástico, o alongamento é grande e a fratura apresenta redução acentuada na seção transversal. b) No material frágil, a região do regime elástico é bem maior que a região do regime plástico, o limite de escoamento é quase igual ao limite de resistência a tração, o alongamento é muito pequeno e a fratura quase não apresenta deformação plástica.

Em reatores, os projetos de estrutura metálica são desenvolvidos de tal modo que o limite de escoamento não seja ultrapassado. Entretanto estes materiais quando sujeitos a irradiação (como visto anteriormente), sofrem alterações estruturais, modificando os limites iniciais.

O elevado grau de deformação plástica que o material suporta está ligado à presença de gases na rede cristalina e a facilidade com que as dicordâncias são geradas e emitidas durante a deformação^[113,114].

A movimentação de gases no interior da estrutura do material é determinada por inúmeros fatores, como por exemplo: tipo de arranjo cristalino, grau de deformação prévia imposta ao material, existência de solitação mecânica durante a implantação de gases, gradientes térmicos ao longo do componente metálico, quantidade e tipo de aprisionadores de gases no interior do material.

Assim, através de testes como este é possível estudar os efeitos de irradiação no comportamento destes materiais, em especial na fragilização devida à presença de gases na rede cristalina.

Aqui o parâmetro mais importante a ser determinado é o limite, ou tensão de escoamento, que além de estabelecer a região de comportamento elástico, fornece o parâmetro inicial (σ_e) para aplicação do teste de "creep" que oferece maior reprodutibilidade de resultados quando se considera as dimensões das amostras (seção(3.3.2)).

Os ensaios de tração foram realizados em uma máquina KRATUS, e os resultados são apresentados na seção (4.4.1).

3.3.2 Teste de “Creep”

O “creep” em metais e ligas é definido como a deformação plástica sofrida por um corpo de prova (amostra), quando submetida a uma carga e temperatura constantes durante um longo período de tempo, produzindo grande deformação plástica seguida de ruptura.

O “creep” é um processo termicamente ativado, onde a temperatura em que se dá o início do “creep” está em torno de 40% da temperatura de fusão do material. No caso dos aços (aqui estudados) esta temperatura está em torno de 550°C.

O modo convencional de estudar o “creep” em metais, é submeter a amostra a uma tensão constante σ , a uma temperatura (elevada) T , e dispor em um gráfico as medidas da deformação da amostra ϵ , em função do tempo t .

As figuras (43 a) e (43 b) mostram curvas características de um teste de “creep” onde a tensão σ aplicada é ajustada automaticamente durante a extensão da amostra, de modo a permanecer constante com a diminuição da área de seção. No presente caso o ajuste é feito por uma mola especial de constante elástica conhecida^[115]. Desse modo a tensão aplicada produz uma curva, que em geral é composta de 3 estágios^[116] (figura(43 a)).

No primeiro estágio, (“creep” primário), a velocidade de “creep” diminui com o tempo (figura (43 b)). Em um determinado instante esta velocidade passa a ser constante caracterizando a segunda fase (“creep” secundário). Quando a velocidade de “creep” começa a aumentar inicia-se o terceiro estágio (“creep” terciário), até que a amostra se rompe. A existência do terceiro estágio depende do nível de tensão aplicado, ou seja baixos níveis não apresentam a formação do “creep” terciário^[117].

Várias tentativas têm sido feitas para descrever, de forma analítica, a deformação de uma amostra em “creep” em função do tempo, temperatura e tensão. Uma das primeiras propostas para descrever a função $\epsilon(t)$ foi feita por Andrade^[118]

$$\epsilon = \epsilon_0(1 + \beta t^{1/3}) \exp(kt) \quad (165)$$

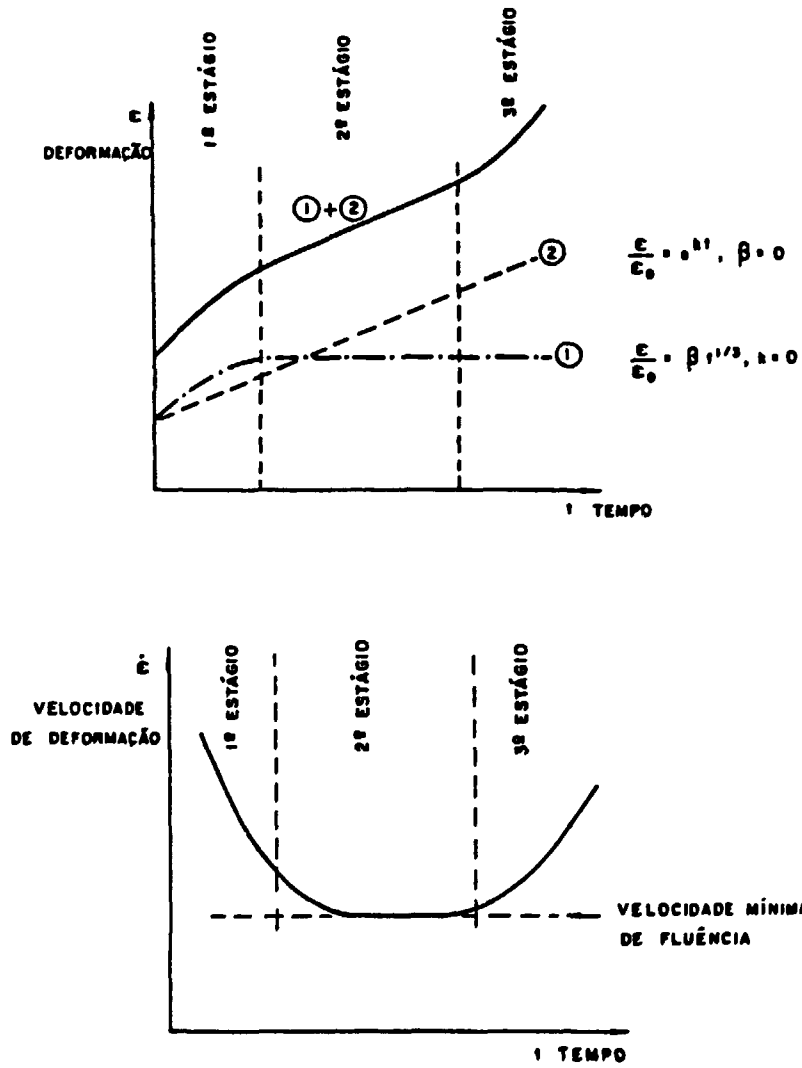


Figura 43: (a) curva típica de "creep" deformação x tempo
 (b) velocidade de deformação x tempo.

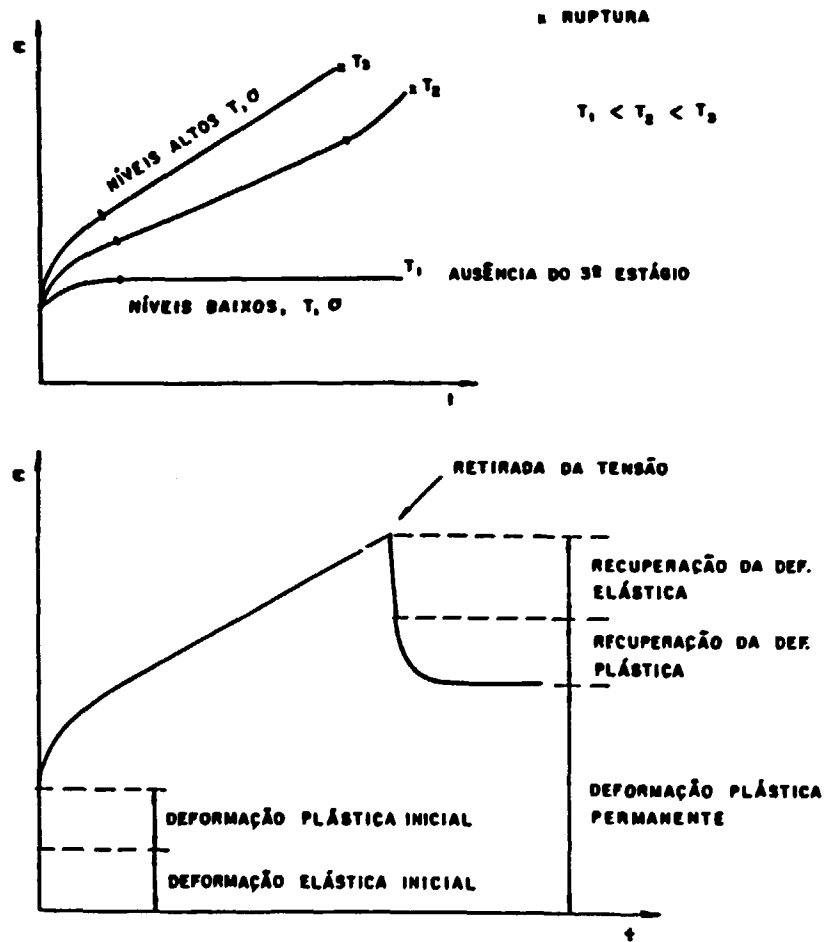


Figura 44: Processos na curva de "creep"

- (a) influência do nível de tensão e temperatura no comportamento da curva de "creep",
 (b) detalhes do fenômeno de recuperação da deformação.

onde ϵ_0 é deformação inicial resultante da aplicação da carga, k e β são constantes determinadas empiricamente através de ajustes da curva teórica aos resultados experimentais.

Esta equação representa a soma de dois processos, (figura (44)). Um deles, o que contém o termo em β ($k = 0$), corresponde ao estágio primário onde $\epsilon \propto t^{1/3}$. O outro processo, o que contém o termo em k ($\beta = 0$), corresponde o estágio secundário onde $\epsilon \propto \exp(kt)$.

A análise de curva de "creep" em outros materiais, mostra que nem sempre é possível obter uma equação que descreva as diferentes curvas. Ao longo do tempo surgiram

outras equações como a sugerida por Wyatt^[119] em 1953

$$\epsilon = a \log(t) + bt^n + ct, \quad (166)$$

onde $n \simeq 1/3$, a , b , c constantes que dependem do material.

Posteriormente Dorn e Weertman^[120] propuseram uma equação para descrever, em particular, o “creep” secundário quando a amostra é submetida a altas temperaturas ($> T_m/2$)

$$\frac{d\epsilon}{dt} = A\sigma^n \exp(\Delta Q/RT). \quad (167)$$

Esta equação é do tipo Arrhenius^[116] e descreve a velocidade de “creep”, onde σ é a tensão aplicada, T a temperatura, A e R são constantes e ΔQ é a energia de ativação. Outras proposições para $d\epsilon/dt$, mais complicadas, desenvolvidas por Weertman podem ser vistas na referência[53].

Neste trabalho, o interesse do teste de “creep” está em obter informações sobre a variação das propriedades mecânicas dos materiais sujeitos a radiação, por esse motivo, um estudo aprofundado sobre descrição analítica das curvas de “creep” são deixadas como trabalho futuro.

Em projetos de estruturas metálicas, um dos objetivos é evitar a formação do terceiro estágio. Isto pode ser obtido controlando-se a temperatura, criando assim uma condição estacionária, ou seja, os efeitos do endurecimento pela deformação plástica são recompensados pelo recozimento, que recupera algumas propriedades da estrutura através do aquecimento^[121].

Entretanto, quando um material é submetido a radiação e temperaturas elevadas, pode ocorrer a formação de *vazios* ou bolhas de gases em contornos de grãos, como visto na seção (2.3.3). A formação destes vazios tem influência direta no comportamento dos materiais, ou seja uma fratura pode ter início nestes vazios através do deslizamento dos grãos^[122].

Uma fratura deste tipo é dita fratura frágil intergranular, onde se observa uma *pequena* deformação. Na fratura dúctil transgranular a deformação da amostra é maior e a origem da fratura ocorre no interior do grão.

Outra propriedade importante que pode ser obtida dos testes de “creep” é o tempo de ruptura T_r , definido como o tempo necessário para que ocorra a ruptura, para uma determinada temperatura T e tensão aplicada σ .

Para cada temperatura, pode-se determinar a relação entre a tensão aplicada e o tempo de ruptura através da representação gráfica *log-log* de $T_r \times \sigma$, onde os pontos podem ser ajustados por uma reta. Através desta “curva” pode-se observar também o tipo de fratura^[123].

Várias proposições, visando o ajuste de resultados experimentais, têm sido feitas para função $T_r(\sigma)$. A mais conhecida é devida a Garofalo^[124], que é dada por:

$$T_r = \frac{1}{(\sinh(b\sigma))^a} \quad (168)$$

onde a e b são parâmetros de ajuste.

Como mencionado anteriormente, o “creep” é um fenômeno termicamente ativado, com uma energia de ativação ΔQ , eq.(167). Assim, como o efeito da temperatura no “creep” é cumulativo, pode-se escrever

$$T_r \propto f(\sigma)A \exp(\Delta Q/RT) \quad (169)$$

onde $f(\sigma)$ pode ser a expressão de Garofalo, ou alguma outra que melhor se ajuste aos resultados experimentais.

Como visto na seção (2.3.3), a presença de gases, combinada com a temperatura a que está submetida a amostra, leva à nucleação e ao crescimento de bolhas em contorno de grão, que por sua vez atuam como concentradores de tensão alterando também o tempo de ruptura.

Os resultados dos testes de “creep” foram obtidos em uma *coluna de “creep”*, do IPEN/CNEN^[115,125], que pode ser vista na figura (45).

Na seção (4.4.2) são apresentados resultados de experiências^[126], onde amostras de aço AISI 316 e 347 implantadas com diferentes concentrações (C) de He foram submetidas a testes de “creep” à diferentes tensões e temperaturas. Assim, foi possível obter uma função $T_r(\sigma, T, C)$, que considerou não só a tensão σ , a temperatura T , mas também a concentração C de hélio implantado (ver. seção (4.4.2)).

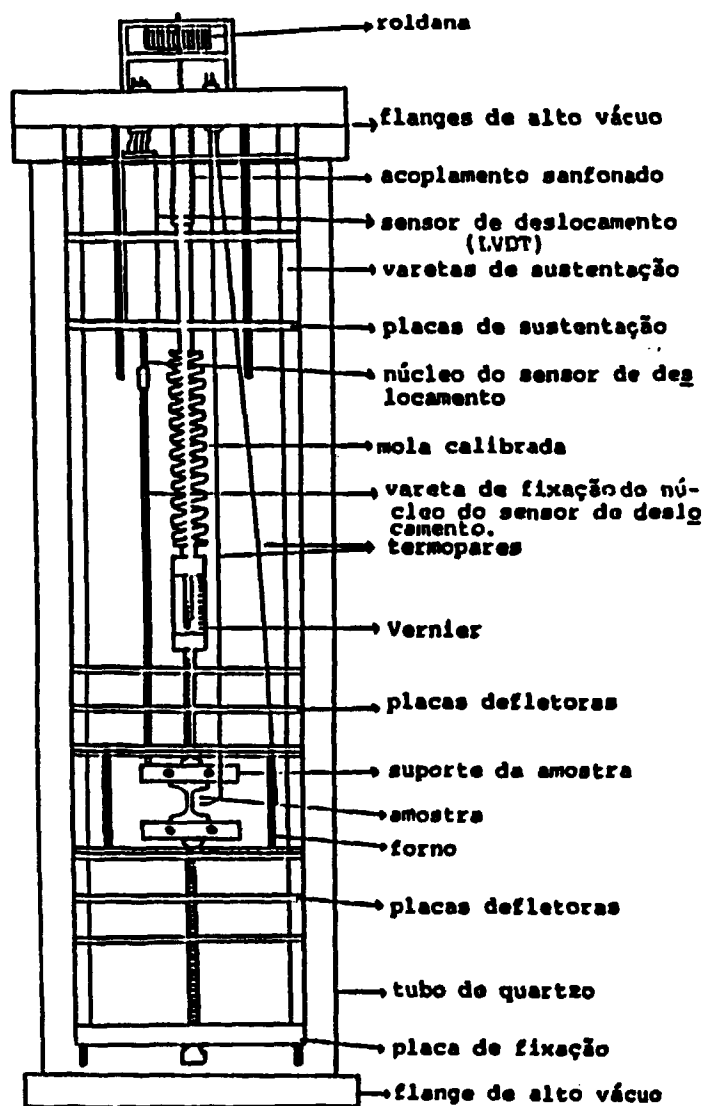


Figura 45: Coluna de "creep" (IPEN/CNEN).

3.3.3 Microscopia Eletrônica (MET e MEV)

A microscopia eletrônica de varredura permite determinar a micromorfologia de fratura (transgranular ou intragranular) da amostra caracterizando o grau de fragilização^[127] do material, com e sem presença de gases.

Atualmente os microscópios eletrônicos possuem uma grande profundidade de foco, apropriado para estudo de superfície de fratura com grandes desníveis. Através da microscopia eletrônica de transmissão pode-se por exemplo, analisar qualitativa e quantitativamente as dicordâncias, detalhes da microestrutura, localização de bolhas, sua evolução^[128] (crescimento) com a temperatura, assim como densidade e tamanho.

A partir destas observações podem ser estabelecidas relações para o mecanismo de crescimento de bolhas, calcular energias de ativação para processos de migração e difusão de gases e outros defeitos. Pode-se também verificar e estabelecer modelos^[129] para nucleação de bolhas de gases em contornos de grãos e dicordâncias, contribuindo para compreensão de seus efeitos em metais, e de modo geral para o estudo da cinética de gases em sólidos cristalinos.

As amostras a serem analisadas por MET são de formato circular, discos de 3 mm de diâmetro que são retiradas, por meio de um punção, das amostras irradiadas e não irradiadas. Estes discos são então atacados eletroquimicamente^[130], utilizando-se um equipamento de polimento eletrolítico de jato duplo (TENUPOL), até a formação de um pequeno orifício que é detectado por uma fotocélula, quando um feixe de luz atravessa esse orifício. As condições utilizadas para o ataque são:

Temperatura: 4°C, Corrente: 0,5 A, Voltagem: 45 V.

Reagentes: 94% de etanol, 5,4% de ácido perclórico e 0,6% de H₂O.

Outra técnica associada à microscopia eletrônica, é a medida de espalhamento de raios-X EDX^[131], que permite por exemplo, análise da composição do material observado.

Os resultados e algumas micrografias são dispostos na seção (4.4.3).

Capítulo 4

Resultados e Discussão

4.1 Cálculo de dpa Durante a Implantação de He

De acordo com cálculos feitos na seção (3.1.5), o número de $dpa/(\alpha.cm^{-3})$, na profundidade x_i , produzido por um feixe de energia E_i , é dado pela equação (153).

No presente caso, irradiação de aço com partículas alfa, e considerando que o ferro é o principal componente do aço seja:

$$Z_1 = 2, \quad M_1 = 4$$

$$Z_2 = 26, \quad M_2 = 56$$

esta suposição não introduz variação significativa, assim da equação (143)

$$\gamma = \pi Z_1^2 Z_2^2 e^4 \frac{M_1}{M_2} = 1,26 \times 10^{-23}$$

onde $e^4 = 2,07 \times 10^{-26} MeV^2 cm^2$.

Com estes valores e supondo $E_d = 25 \times 10^{-6} MeV$ (ver seção (2.1.6)).

$$\Omega = \frac{\gamma}{E_d} = 5,04 \times 10^{-19}$$

e de acordo com as equações (3) e (147)

$$\Lambda = 0,25 ,$$

$$\xi^2 = \frac{\Lambda}{E_d} = 10^4 \text{ MeV}^{-1} ,$$

$$k \simeq 9,11 \times 10^2 \frac{\text{MeV}^{1/2}}{\text{cm}}$$

e

$$B \simeq 4,55 \times 10^2 \frac{\text{MeV}^{1/2}}{\text{cm}} .$$

Assim, da equação (145)

$$R_d^i(x) = 2,52 \times 10^{-19} \frac{1}{[E_i^{1/2}(0) - Bx_i]^2} \ln \left\{ 10^4 [E_i^{1/2}(0) - Bx_i]^2 \right\} , \quad (170)$$

e de (153)

$$R_d^i = \frac{\Omega}{B} \left\{ \frac{\ln [E_i^{1/2}(0) - Bx_i] + \ln 10^2 + 1}{[E_i^{1/2}(0) - Bx_i]} - \frac{\ln E_i^{1/2}(0) + \ln 10^2 + 1}{E_i^{1/2}(0)} \right\} . \quad (171)$$

Como a roda degradadora de energia (figura (20)) é composta de 50 folhas de alumínio (espessuras diferentes), por onde passa o feixe, tem-se então 50 valores diferentes para as energias $E_i(0)$, começando em $\approx 0,1 \text{ MeV}$ até 28 MeV , em intervalos de aproximadamente $0,5 \text{ MeV}$. Como cada valor de $E_i(0)$ é função da espessura da i -ésima folha de alumínio, tem-se também 50 valores para os respectivos alcances x_i , resultando em 50 funções do tipo $R_d^i(x)$. A tabela (8) mostra alguns destes valores, e a figura (46) mostra algumas funções $R_d^i(x)$, também conhecidas como curvas de Bragg.

A quantidade total de $dpa/(\alpha.cm^{-3})$ produzido durante uma implantação de He com a roda degradadora é dada por

$$R_d^{total} = \sum_{i=1}^{50} \frac{\gamma}{2E_d} \int_0^{x_i} \frac{1}{[E_i^{1/2}(0) - \frac{k}{2}x]^2} \ln \left\{ \frac{\Lambda}{E_d} [E_i^{1/2}(0) - \frac{k}{2}x]^2 \right\} dx . \quad (172)$$

O resultado de R_d^{total} representa o número total de $dpa/(\alpha.cm^{-3})$ na espessura toda da amostra. Esta afirmação pode ser melhor entendida através da figura (47) onde R_d^{total} é a área sob a curva (h), que por sua vez representa

$$\sum_{i=1}^{50} R_d^i(x) .$$

energia do íon (MeV)	dE/dx eletrônico ($keV.\mu m^{-1}$)	dE/dx nuclear ($keV.\mu m^{-1}$)	alcance projetado (μm)	"stragging" longitudinal (μm)	"stragging" lateral (μm)
1.00	7.256E+02	1.162E+00	1.62	0.161	0.288
1.20	7.062E+02	1.003E+00	1.89	0.168	0.305
1.40	6.825E+02	8.843E-01	2.18	0.174	0.322
1.60	6.572E+02	7.927E-01	2.47	0.181	0.339
1.80	6.319E+02	7.194E-01	2.78	0.187	0.356
2.00	6.073E+02	6.594E-01	3.10	0.196	0.373
2.20	5.840E+02	6.093E-01	3.43	0.206	0.390
2.40	5.621E+02	5.667E-01	3.78	0.215	0.408
2.60	5.416E+02	5.301E-01	4.14	0.225	0.427
2.80	5.224E+02	4.982E-01	4.51	0.235	0.446
3.00	5.047E+02	4.702E-01	4.90	0.246	0.465
3.30	4.803E+02	4.340E-01	5.51	0.266	0.496
3.60	4.584E+02	4.033E-01	6.14	0.287	0.528
4.00	4.325E+02	3.689E-01	7.04	0.322	0.573
4.50	4.044E+02	3.338E-01	8.23	0.373	0.632
5.00	3.803E+02	3.052E-01	9.49	0.424	0.695
5.50	3.593E+02	2.814E-01	10.84	0.475	0.762
6.00	3.408E+02	2.612E-01	12.26	0.526	0.833
6.50	3.244E+02	2.439E-01	13.76	0.578	0.907
7.00	3.097E+02	2.288E-01	15.33	0.631	0.984
8.00	2.845E+02	2.040E-01	18.69	0.810	1.15
9.00	2.636E+02	1.843E-01	22.33	0.980	1.33
10.00	2.459E+02	1.682E-01	26.24	1.15	1.52
11.00	2.307E+02	1.549E-01	30.43	1.31	1.72
12.00	2.175E+02	1.436E-01	34.88	1.48	1.93
13.00	2.059E+02	1.339E-01	39.59	1.65	2.15
14.00	1.957E+02	1.256E-01	44.55	1.82	2.39
15.00	1.866E+02	1.182E-01	49.77	1.99	2.63
16.00	1.784E+02	1.117E-01	55.23	2.16	2.89
17.00	1.710E+02	1.060E-01	60.94	2.34	3.16
18.00	1.643E+02	1.008E-01	66.89	2.52	3.43
20.00	1.525E+02	9.190E-02	79.49	3.14	4.02
22.00	1.426E+02	8.452E-02	93.02	3.74	4.63
24.00	1.340E+02	7.829E-02	107.45	4.32	5.29

Tabela 8: Poder de freamento, alcance e "stragging" de α em aço calculados pelo programa TRIM^[132].

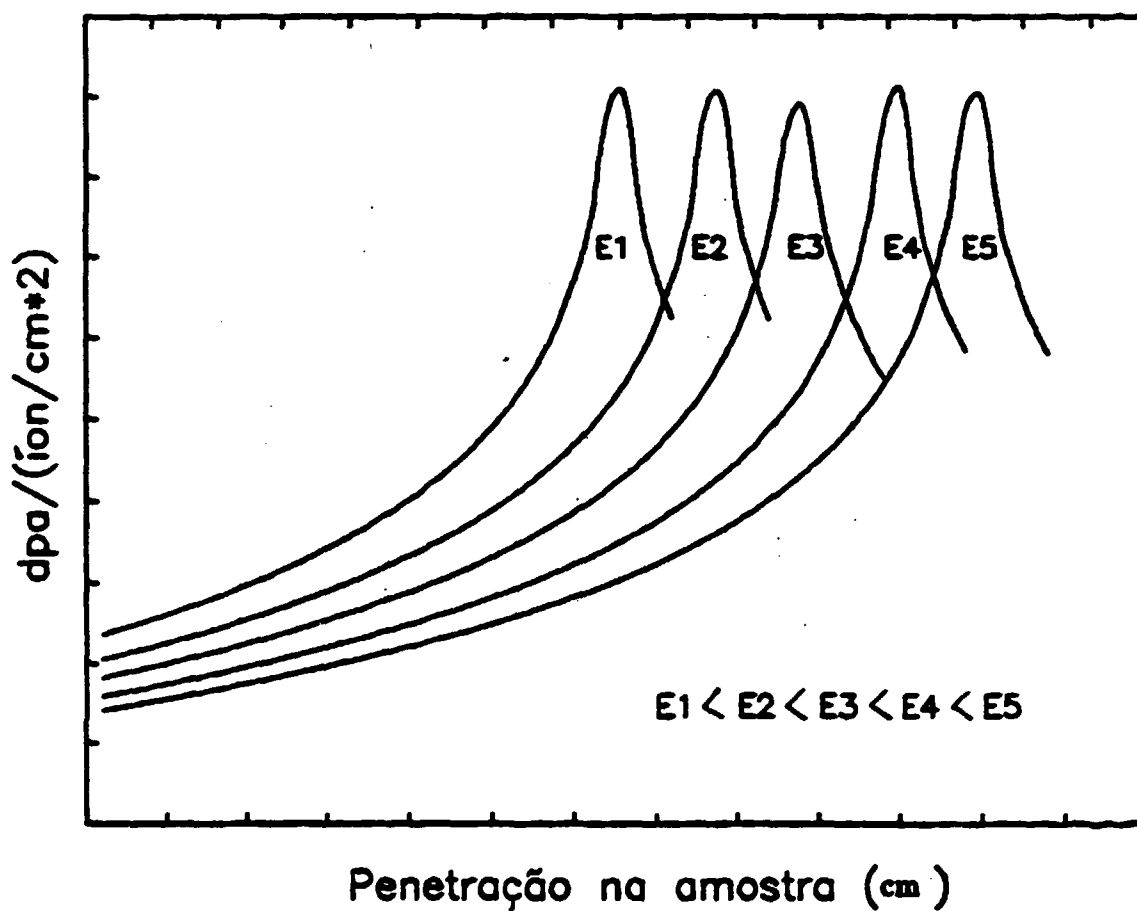


Figura 46: Curvas de Bragg para a produção de dpa por íon por unidade de área, para íons de energia incidente E_i , na profundidade x da amostra irradiada.

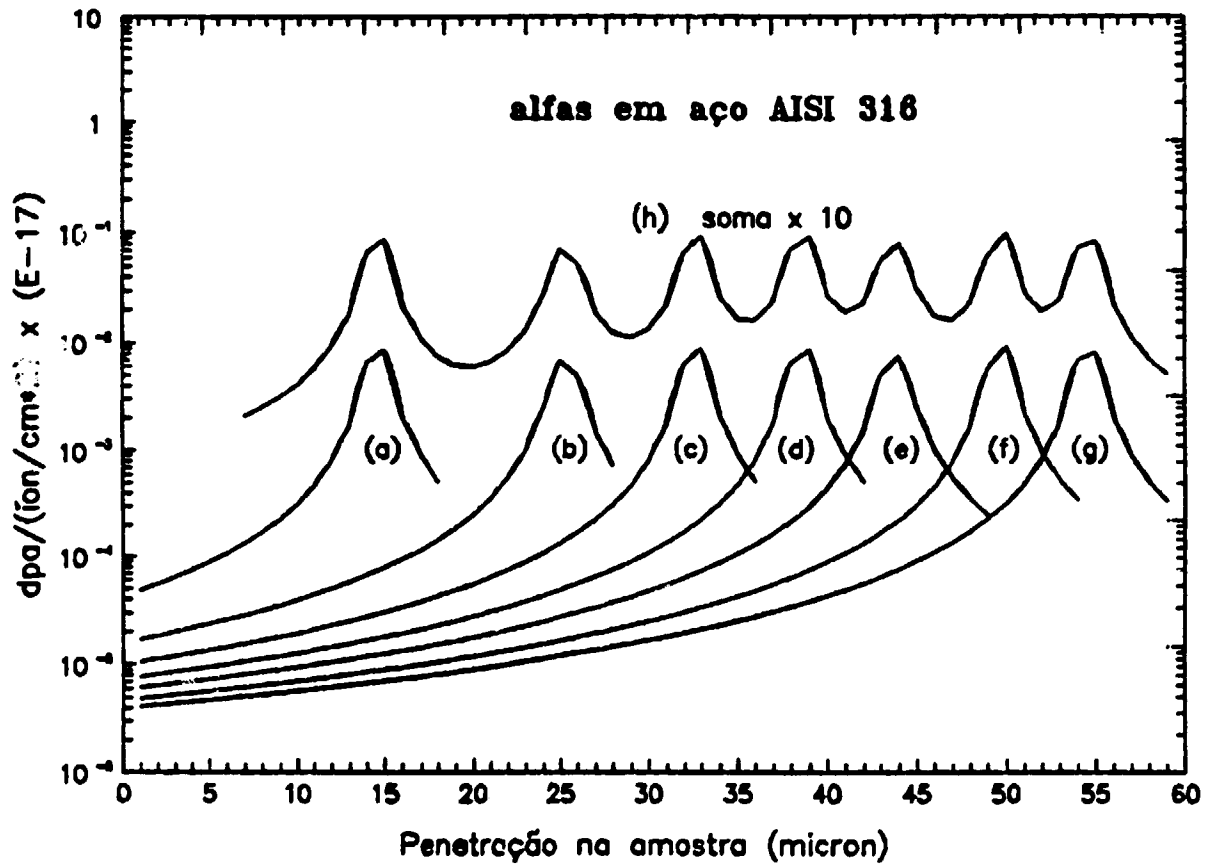


Figura 47: Taxas ($R_d^i(x)$) de produção de deslocamentos em aço para α com as seguintes energias incidentes: (a) 4,3; (b) 8,1; (c) 10; (d) 12; (e) 13,3; (f) 14,3 e (g) 16,3 MeV. A curva (h) é a soma (multiplicada por 10), das curvas (a) até (g) representando o perfil de deslocamentos produzidos durante a implantação de He com o uso da roda degradadora.

Assim, da curva (h) da figura (47), pode-se verificar a produção de deslocamentos de forma relativamente homogênea ao longo da espessura da amostra, quando é usada a roda degradadora de energia.

No caso particular de um feixe de partículas α de 22,3 MeV, o número de $dpa/(\alpha.cm^{-3})$ produzido em toda espessura da amostra (100 μm), é calculado pela equação (171) que resulta em:

$$R_d^i = 2,27 \times 10^{-20} \frac{dpa}{(\alpha.cm^{-3})}.$$

A partir deste valor é possível calcular a razão $dpa/[C_{He}]$. A carga correspondente a implantação de 1 *ppma* de He é de $\approx 206 \mu C$ no volume irradiado, onde

$$206 \mu C \simeq 647 \times 10^{12} \alpha.$$

O volume irradiado é dado pelo produto da área do colimador do feixe (0,79 cm^2), pela espessura das amostras ($10^{-2} cm$). Assim, a implantação de 1 *ppma* de hélio, com partículas alfa de 22,3 MeV produz

$$R_d^i \times \frac{647 \times 10^{12}}{79 \times 10^{-4}} \simeq 1,8 \times 10^{-3} \frac{dpa}{ppma}$$

Este valor está de acordo com resultados obtidos por Ulmaier e Brimhall^[133,134], mostrados na figura (48).

O cálculo da soma dos $dpa/(\alpha.cm^{-3})$ devido a cada energia incidente E_i é dado pela equação (172), ou também

$$R_d^{total} = \sum_i R_d^i,$$

onde i representa o i -ésimo alcance (x_i), devido a i -ésima energia (E_i), do feixe de partículas alfa.

Para o cálculo dos R_d^i e R_d^{total} foi desenvolvido um programa de cálculo^[135] com parâmetros iniciais de entrada E_i , x_i , e os resultados de saída R_d^i e R_d^{total} . O resultado para R_d^{total} foi:

$$R_d^{total} = 3,53 \times 10^{-19} dpa/(\alpha.cm^{-3}),$$

que é uma quantidade pequena quando comparada com a produção de dpa com íons pesados, que podem (em condições semelhantes) produzir deslocamentos a uma taxa de

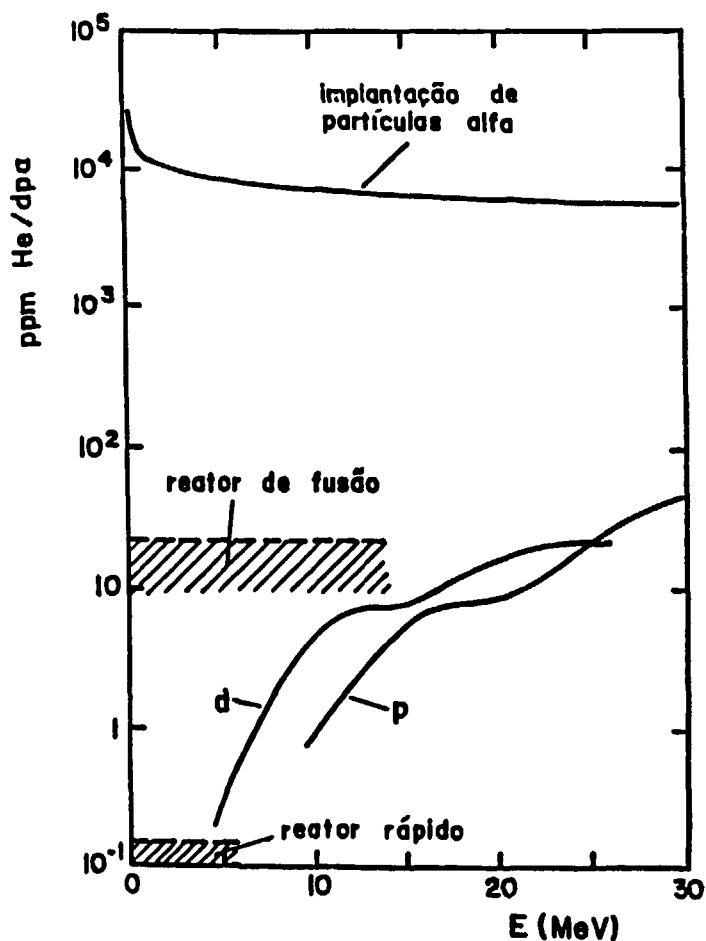


Figura 48: Razão da produção de He/dpa em função da energia para diferentes tipos de radiação (ver referências[41,42]).

até 10^3 vezes maior. Porém, não atingem o objetivo do momento que é a implantação de hélio. O fato da baixa produção de dpa durante as implantações será usado na discussão sobre os resultados de testes de "creep", na seção (4.4.2).

4.2 Perfil de Implantação de He

O perfil de hélio implantado na espessura da amostra é calculado de modo análogo ao cálculo do perfil de *dpa*. A principal diferença está no fato de que para cada energia $E_i(0)$ a distribuição $D^i(x)$ de átomos de hélio, em torno do alcance x_i , é dada por uma distribuição *gaussiana*, mostrada esquematicamente na figura (49).

Os valores x_i , h_i , e δ_i dependem do tipo de partícula incidente, da dose, da energia $E_i(0)$, além da composição do material a ser implantado. Estes valores foram obtidos através da utilização do programa TRIM^[132], que gera um arquivo com valores de x_i e δ_i . A partir destes resultados e do desenvolvimento de outro programa de cálculo^[135], foram geradas as curvas $D_i(x)$ e $D^{total}(x)$, mostradas na figura (50), com

$$D^{total}(x) = \sum_i D_i(x) ,$$

onde cada $D_i(x)$ é uma *gaussiana* centrada em x_i (alcance da partícula alfa de energia $E_i(0)$), e escrita como

$$D_i(x) = \frac{A}{\delta_i} \exp \left\{ \frac{-(x - x_i)^2}{2\delta_i} \right\} \quad (173)$$

com

$$A = \frac{It}{N\sqrt{2\pi}} \quad (174)$$

onde It é a fluência utilizada na implantação, em $\alpha.cm^{-2}$, e N é a densidade atômica do alvo (aço) em $\text{átomo}.cm^{-3}$.

A figura (50) mostra algumas curvas $D_i(x)$ e $D^{total}(x)$, indicando que, também, a implantação de hélio com a roda degradadora é homogeneamente distribuída ao longo da espessura da amostra.

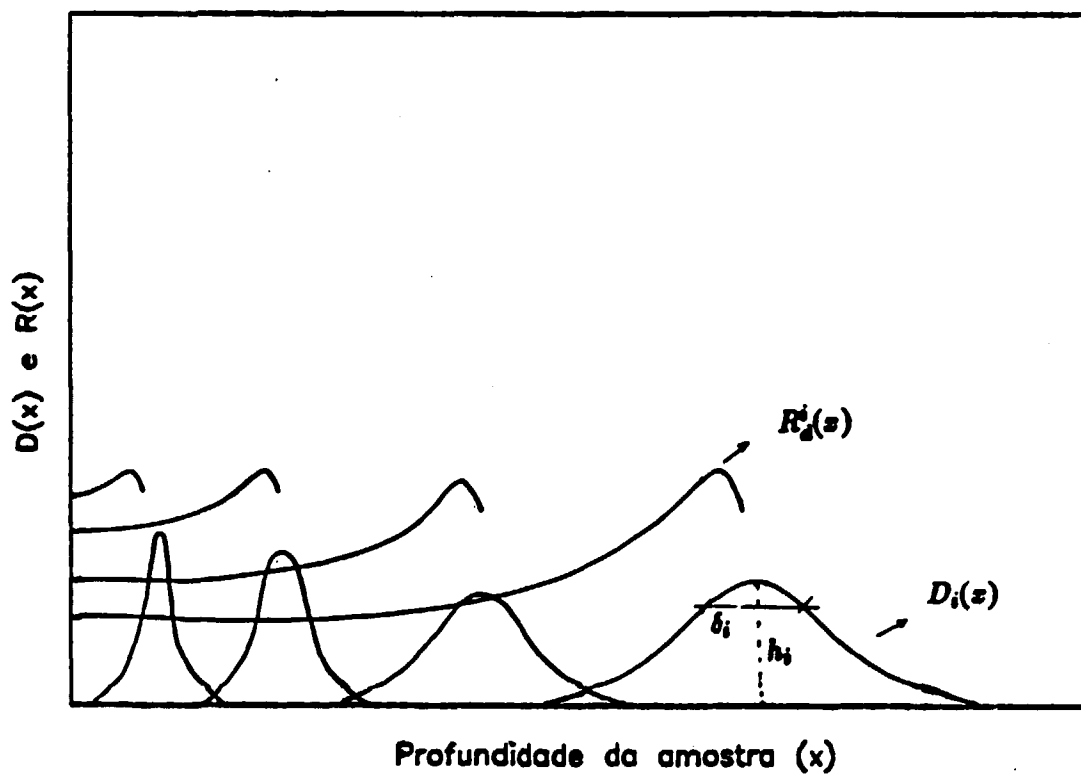


Figura 49: Representação da produção de dpa $R_d^i(x)$, e das distribuições $D_i(x)$ de He implantado na profundidade x da amostra.

Perfil de He implantado com a roda degradadora

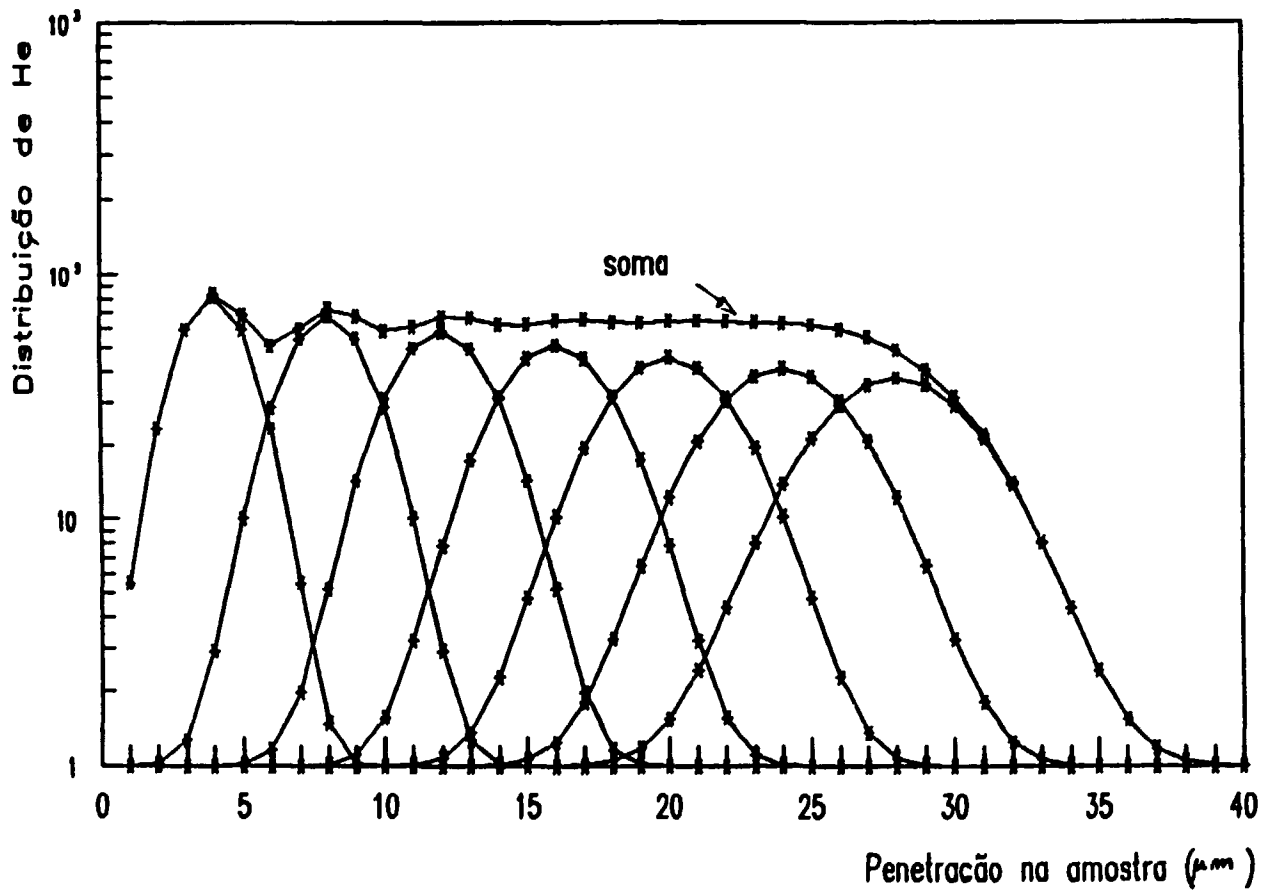


Figura 50: Perfil de He implantado em aço AISI 316 distribuições gaussianas de He implantado com partículas α de diferentes energias.

4.3 Resultados de Teste não Destrutivo

4.3.1 Resultados Iniciais de Tempo de Vida de Póstron

Após a montagem do espectrômetro de tempo e a produção da fonte de póstron ^{48}V , foram realizados testes do sistema visando sua confiabilidade e reprodutibilidade^[136] de resultados, através de medidas de tempo de vida de póstron em alguns materiais, assim como a medida da resolução do sistema utilizando o isótopo ^{60}Co .

A figura (51) mostra alguns espectros obtidos, onde o espectro (a) é típico de metais, onde não há formação de positrônio (apenas uma componente de tempo de vida). Os espectros (b) e (c) são típicos de materiais moleculares. Estes espectros podem ser compostos de duas ou mais componentes de tempo de vida, associadas a formação de positrônio^[137]. O espectro (d) é o da função resolução do sistema com 363 ps FWHM, que é também mostrada na figura (52 a), e um ajuste por uma gaussiana feito pelo programa SPEKT^[138] (figura (52 b)).

Além de calibrações, foram comparados os resultados experimentais^[139,140], e da literatura^[141] (tabelas (9) e (10)).

A tabela (9), mostra uma comparação entre os resultados obtidos e os de literatura, para alguns metais, enquanto a tabela (10) compara resultados para materiais orgânicos. Destas tabelas, pode-se verificar a coerência dos resultados, considerando que as informações sobre o estado inicial dos materiais referentes aos resultados da literatura, não são disponíveis. Porém, uma informação importante que se observa da tabela (9) é que em um mesmo tipo de material o tempo de vida de póstron diminui após o tratamento térmico, de acordo com previsões teóricas^[104].

O espectrômetro foi submetido a um novo teste, usando uma fonte de ^{22}Na (com atividade 12 μCi), produzida no ciclotron do IEN^[109] especialmente para esta finalidade. Todos os módulos componentes do espectrômetro foram mantidos com os mesmos ajustes, com excessão da janela do sinal de "start", que obviamente passou a ser em torno da energia de 1275 keV do ^{22}Na , e da utilização de outro multicanal, também produzido no IEN^[142].

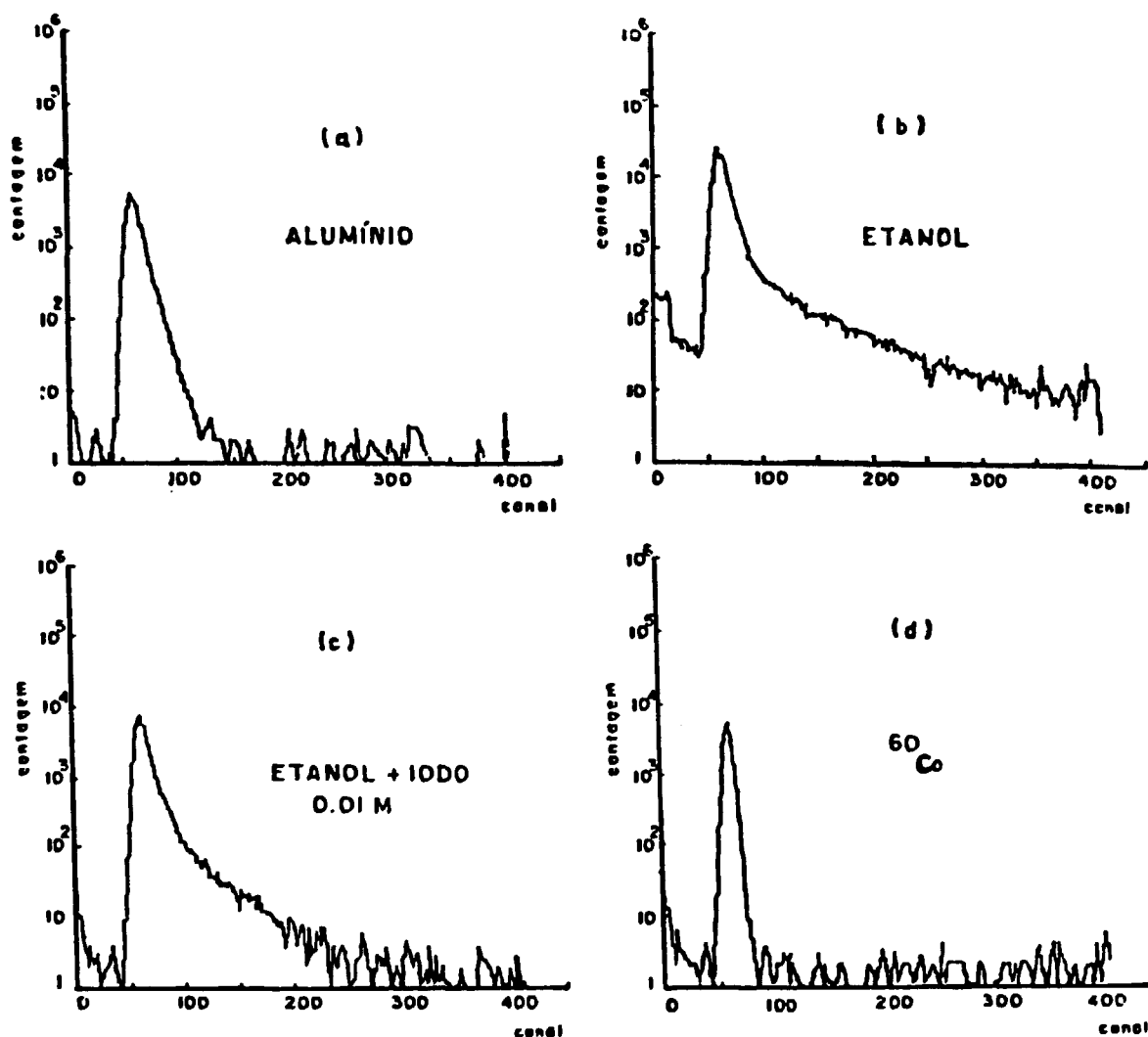


Figura 51: Resultados iniciais de tempo de vida de pósitron (τ_v) em alguns materiais ($0,097 \text{ ps/canal}$): (a) espectro de tempo em Alumínio, onde não há formação de *positrônio*, (b) teflon, (c) ciclo-hexano apresentando mais de uma componente de tempo de vida de pósitron e (d) função resolução com ^{60}Co .

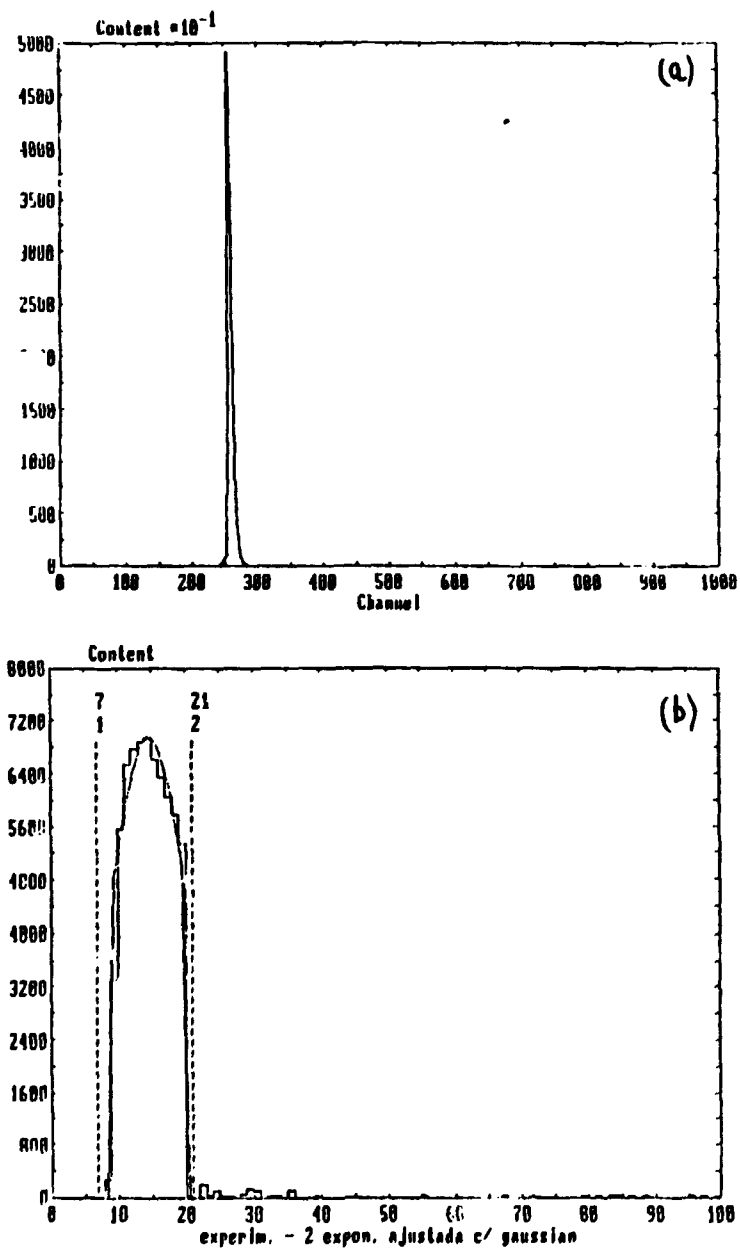


Figura 52: Função resolução do espectrômetro de tempo
(a) um exemplo em escala linear e (b) um exemplo de ajuste com uma gaussiana, utilizando o programa SPEKT.

MATERIAIS	RESULTADOS OBTIDOS		RES. LITERATURA
	estado da amostra	tempo de vida (ps)	tempo de vida (ps)
Al	laminado	189±4	175±4
	recozido 800°C 1 h	169±7	-
	recozido 450°C 1 h	145	-
	recozido 470°C 3 h	136	-
	-	-	174
Cu	laminado	173	147±3
	recoz. bico Bunssen	144	-
	recozido 470°C 3 h	121	-
Zn	laminado	176	179±5
In	laminado	188	203±5
Na	tarugo	256	333±7
Pb	laminado	210	230
Zr	laminado	178	-
Aço	laminado	185	180
	recozido 1000°C 0,2 h	164	-

Tabela 9: Resultados iniciais de τ_v para materiais inorgânicos e comparação com alguns resultados disponíveis da literatura.

MATERIAIS	1 COMPONENTE	2 COMPONENTE
	(ps)	(ps)
etanol	473	2060
etanol+iodo(0,01M)	461	1890
etanol+iodo(0,05M)	336	-
ciclohexano	360	2880
telfon	600	5570

Tabela 10: Resultados iniciais de τ_v para materiais orgânicos.

Novos resultados foram obtidos sem variações significativas e com resolução ainda melhor (292 ps FWHM com ^{60}Co), entretanto a quantidade foi insuficiente, fazendo com que fosse usado novamente o ^{48}V .

4.3.2 Medidas de τ_v em função de C_{He}

As amostras de aço AISI 316 e 347 implantados aos pares nas concentrações nominais de 3, 5, 10, 20, 30, 100, 120 e 300 ppma de He (seção (3.1.5)), foram submetidas a medidas de tempo de vida de pósitron.

A resolução do espectrômetro de tempo para estas medida foi de ≈ 363 ps (seção (3.2.4)). A fonte de pósitron utilizada foi o ^{48}V (seção (3.2.4)).

A nomenclatura utilizada para as amostras implantadas, é composta de três termos, exemplo: 3, 1, A e 3, 1, B. O primeiro termo (3), caracteriza a concentração de hélio que se objetivou na irradiação, 3 ppma de He, o segundo termo (1), representa o número do porta-alvos, número 1, o terceiro faz a diferenciação entre o par de amostras irradiadas simultaneamente (A e B).

A análise dos espectros de tempo de vida foram feitos por três métodos diferentes:

i) ajuste simples por mínimos quadrados, da parte do espectro de tempo, correspondentes às componentes principal e secundária^[143].

ii) ajuste do espectro de tempo por funções do tipo gaussiana e exponencial utilizando o programa SPEKT^[138] (figura (53)).

iii) utilização do programa PFPOFIT^[144], para “deconvolução” de até 6 componentes (decaimento).

Os resultados são mostrados no gráfico da figura (54), onde a curva (A) representa a medida da concentração de hélio implantado, por espectrometria gama, medindo a atividade do pico de 811 keV proveniente das reações $^{56}\text{Fe}(\alpha, np)^{58}\text{Co}$ e $^{55}\text{Mn}(\alpha, n)^{58}\text{Co}$ (seção (3.1.5)). A curva (B) corresponde a medida da componente principal, $\tau_{v,1}$ do tempo de vida de pósitron, enquanto a curva (C) corresponde a segunda componente $\tau_{v,2}$.

A figura (55) compara resultados da primeira componente de tempo de vida de pósitron, no aço 316, obtidos^[145] por três diferentes métodos de análise: (a) ajuste simples

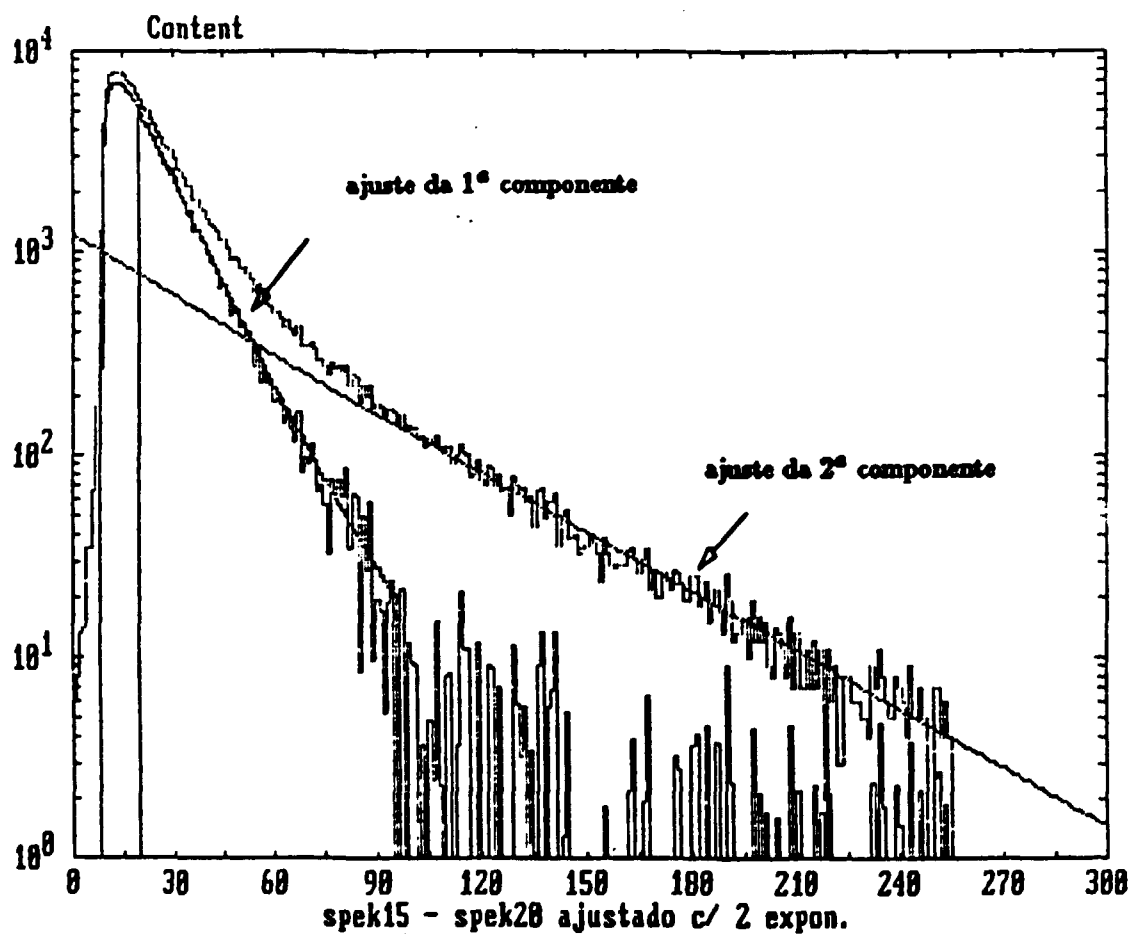


Figura 53: Espectro de tempo analisado pelo programa SPEKT mostrando o processo de *deconvolução*.

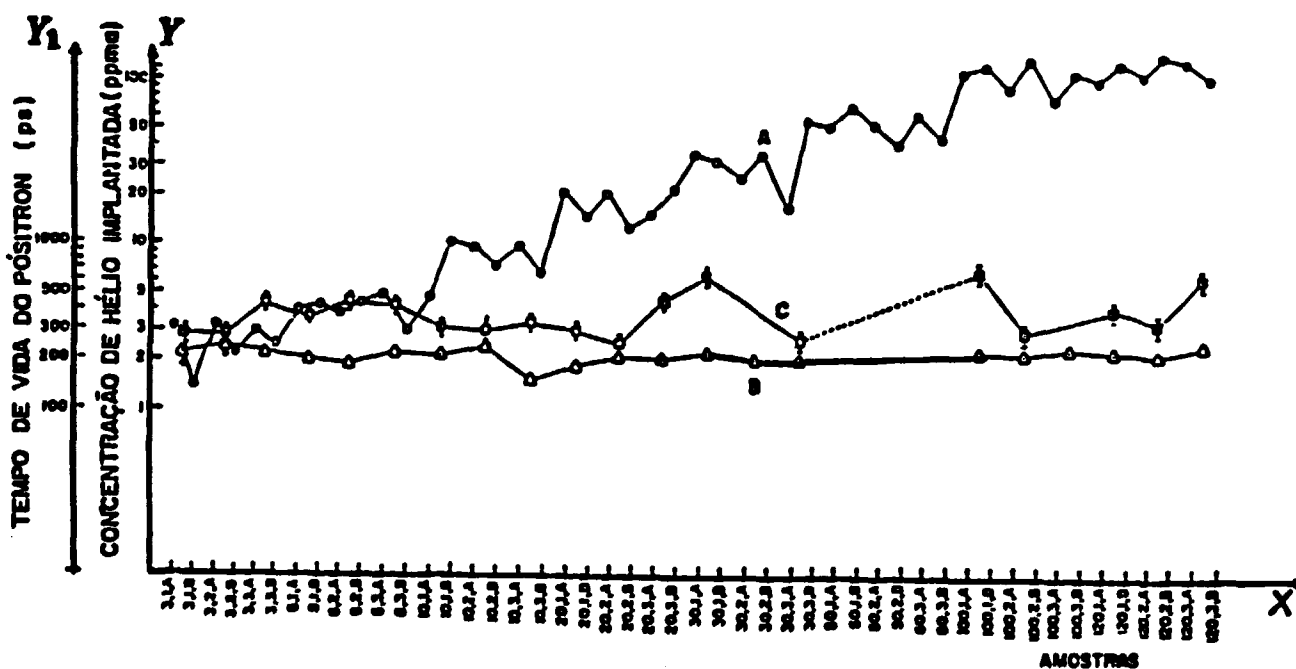


Figura 54: Atividade e tempo de vida de β^+ em amostras de aço implantadas com hélio. O eixo Y refere-se a medidas da concentração de hélio (curva A), o eixo Y_1 refere-se a medidas de $\tau_{v,1}$ e $\tau_{v,2}$ (curvas B e C). No eixo X estão dispostas as identificações das amostras.

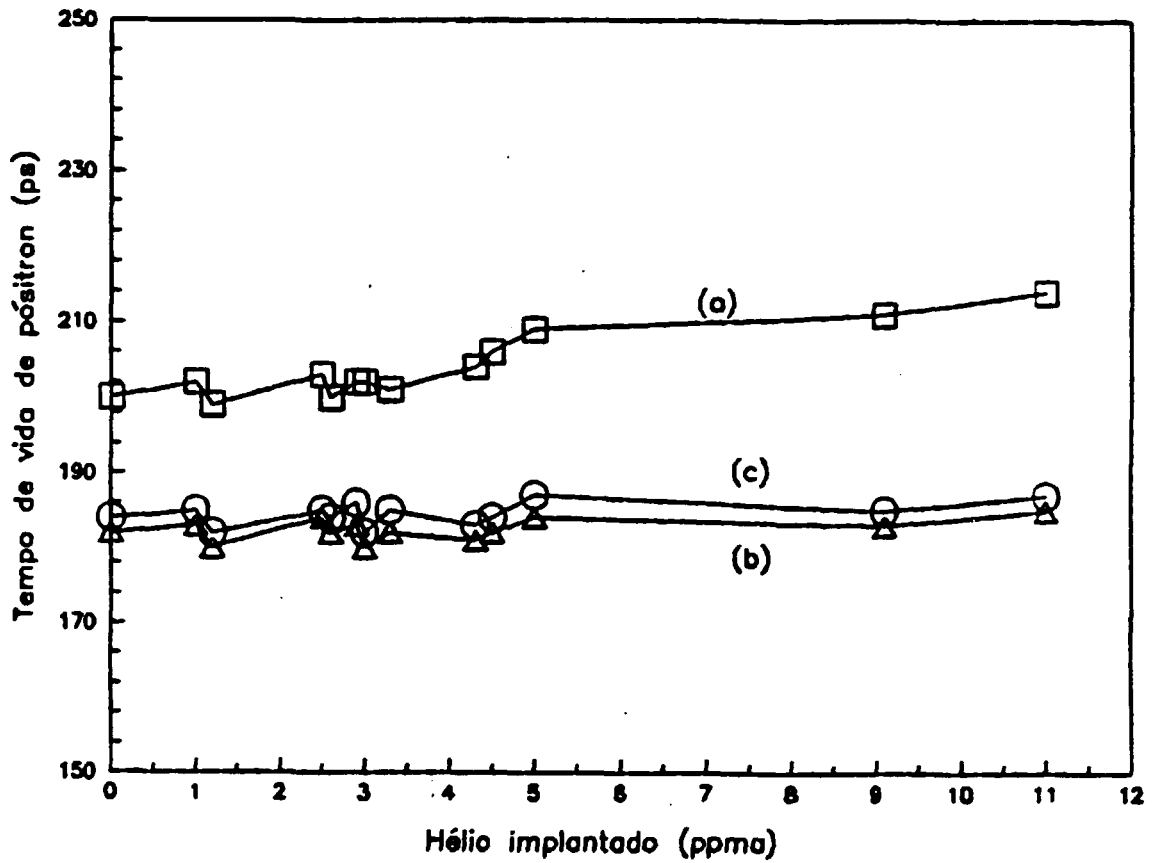


Figura 55: Comparação de métodos de medidas de tempo de vida de β^+ em amostras de aço 316 implantadas até 11 ppma de He: (a) ajuste por mínimos quadrados, (b) programa PFPOSIT e (c) programa SPEKT.

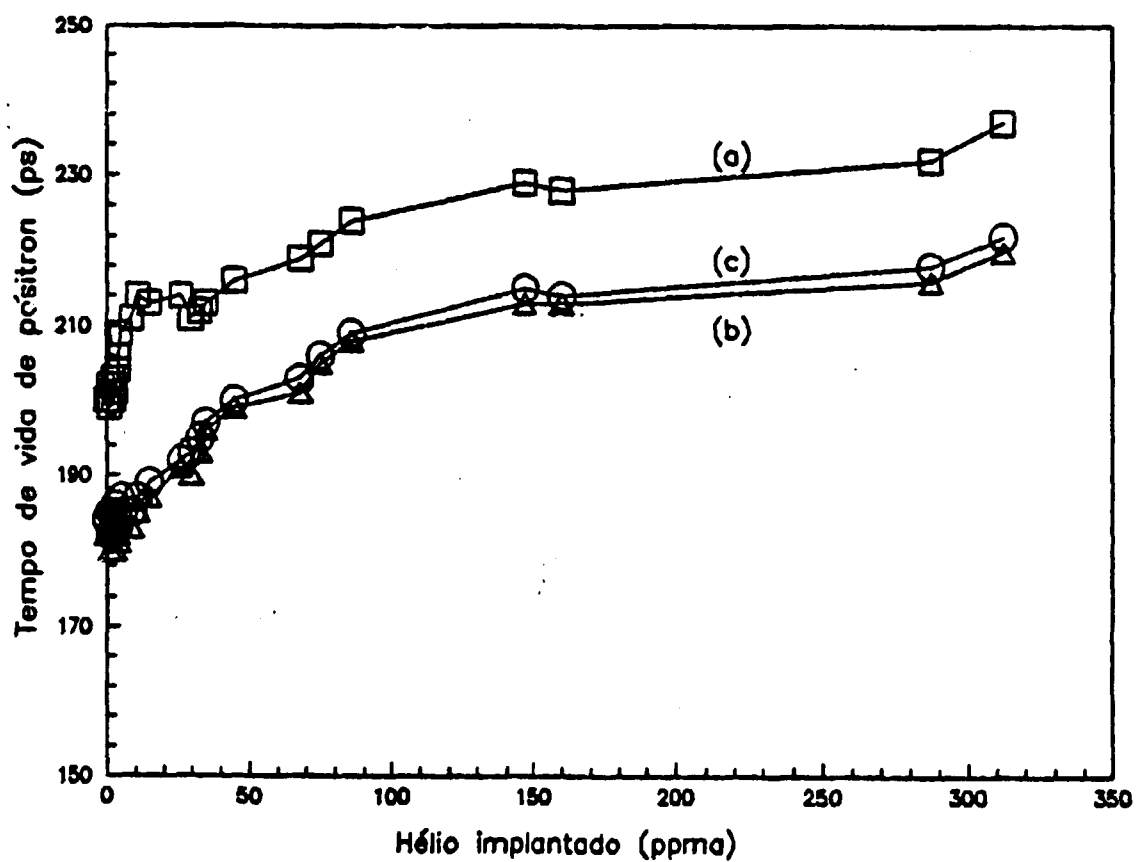


Figura 56: Comparação de métodos de medidas de tempo de vida de β^+ em amostras de aço 316 implantadas até 311 ppma de He: (a) ajuste por mínimos quadrados, (b) programa PFPOSIT e (c) programa SPEKT.

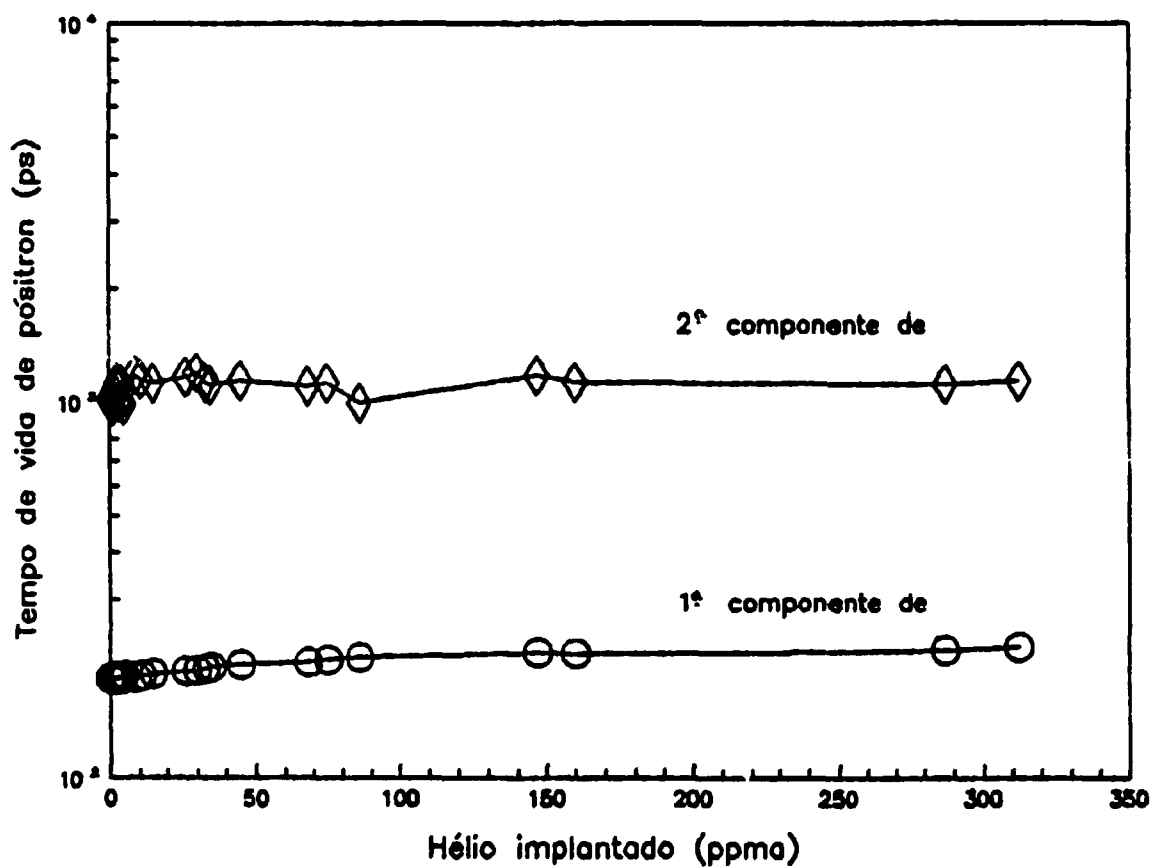


Figura 57: Comparação entre medidas da 1ª e da 2ª componente de tempo de vida de β^+ em amostras de aço 347 implantadas até 311 ppma de He, sem tratamento térmico, calculadas pelo programa SPEKT.

por mínimos quadrados, (b) programa PFPOFIT e (c) programa SPEKT, mostrando que o tempo de vida de pósitron não varia de modo sensível para concentrações menores que 10 *ppma* de *He*. A figura (56) mostra este mesmo tipo de comparação para concentrações até 311 *ppma* de *He*. A figura (57) mostra pequenas variações tanto da 1ª como da 2ª componente de tempo de vida de pósitron, agora para o aço 347, sem tratamento térmico.

As medidas de tempo de vida de pósitron em amostras não irradiadas mostraram valores menores que $\tau_{v,1} \approx 140$ ps. Quando as amostras irradiadas são recozidas a temperaturas de $\approx (2/3)$ de T_m por tempo de aproximadamente 15 minutos as medidas de $\tau_{v,1}$ caem de 220 ps, para valores próximos a 160 ps, indicando um “recozimento” de danos produzido durante a implantação, por um processo de ativação térmica.

4.3.3 Medidas de τ_v para Determinação de E_a

Um exemplo de processo que pode ser térmicamente ativado, discutido na seção (2.3.3), é a migração de defeitos na rede cristalina para posições de energia mais baixa, e de acordo com o conteúdo da seção (2.3.3), esta migração contribui para mudanças de propriedades.

Na implantação de hélio em uma amostras de aço, há a produção de uma determinada quantidade de vacâncias e interstícios, seja n a densidade de vacâncias produzidas em um determinado estado inicial. Quando esta amostra é submetida a um tratamento térmico, a variação de n com o tempo é dada pela equação (119) aplicada à densidade de vacâncias

$$\frac{dn}{dt} = R_2 e^{-E_a/KT} . \quad (175)$$

Simultaneamente à evolução de vacâncias com a temperatura, acontece a difusão do hélio implantado, e segundo o conteúdo da seção (2.3.3), no caso de aços *cfc* em altas temperaturas a difusão do hélio se dá principalmente pelo *mecanismo dissociativo*. A energia de difusão para este mecanismo é dada pela equação (116) (ver seção (2.3.3)),

$$E_{He}^{dif} = E_{He,v}^{diss} - E_v^f$$

com $E_{He,v}^{diss}$ dado pela equação (113)

$$E_{He,v}^{diss} = E_{He,v}^l + E_{He,i}^m .$$

A dinâmica das interações hélio-vacância sob influência da temperatura, pode ser monitorada pela técnica de aniquilação de pósitrons, uma vez que o tempo de vida de pósitron τ_v na rede cristalina está diretamente relacionado com a densidade n de vacâncias. Assim, a equação (118) aplica-se também a este parâmetro

$$\frac{d\tau_v}{dt} = R_3(\tau_v)e^{-E_a/KT} . \quad (176)$$

Este procedimento foi aplicado^[146] a dois conjuntos de amostra de aço AISI 316 e 347 com 30 *ppma* de hélio, submetidos a diferentes tratamentos térmicos.

Os resultados de tempo de vida de pósitron para o primeiro conjunto de amostras são mostrados nas figuras (58) a (61).

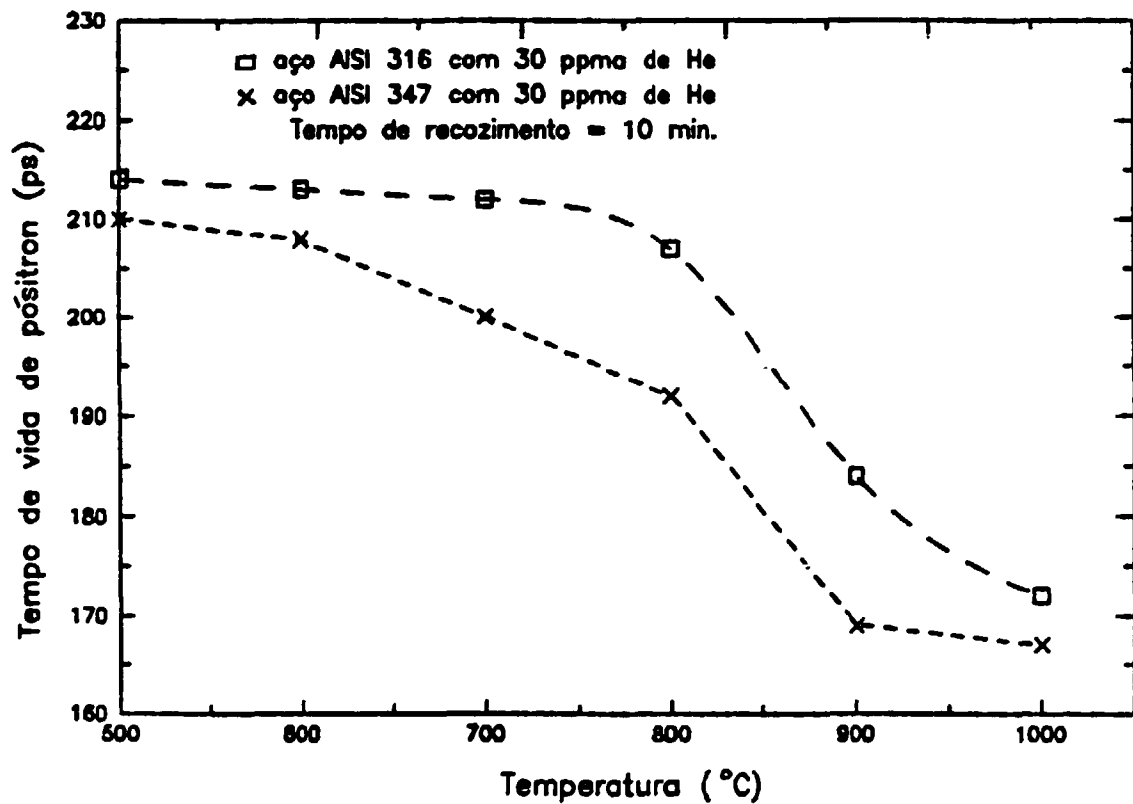
Do segundo conjunto de amostras foram selecionadas 2 pares de amostras de aço 316, e 2 pares de aço 347, todas com 30 *ppma* de hélio. O primeiro par foi tratado termicamente em diferentes temperaturas (T_i) iniciando em 500 °C até 1000 °C em *passos* de 100 °C, com duração de 10 minutos para cada temperatura. O tempo de vida de pósitron τ_v , foi medido ao final de cada tratamento, estes resultados são mostrados na figura (58).

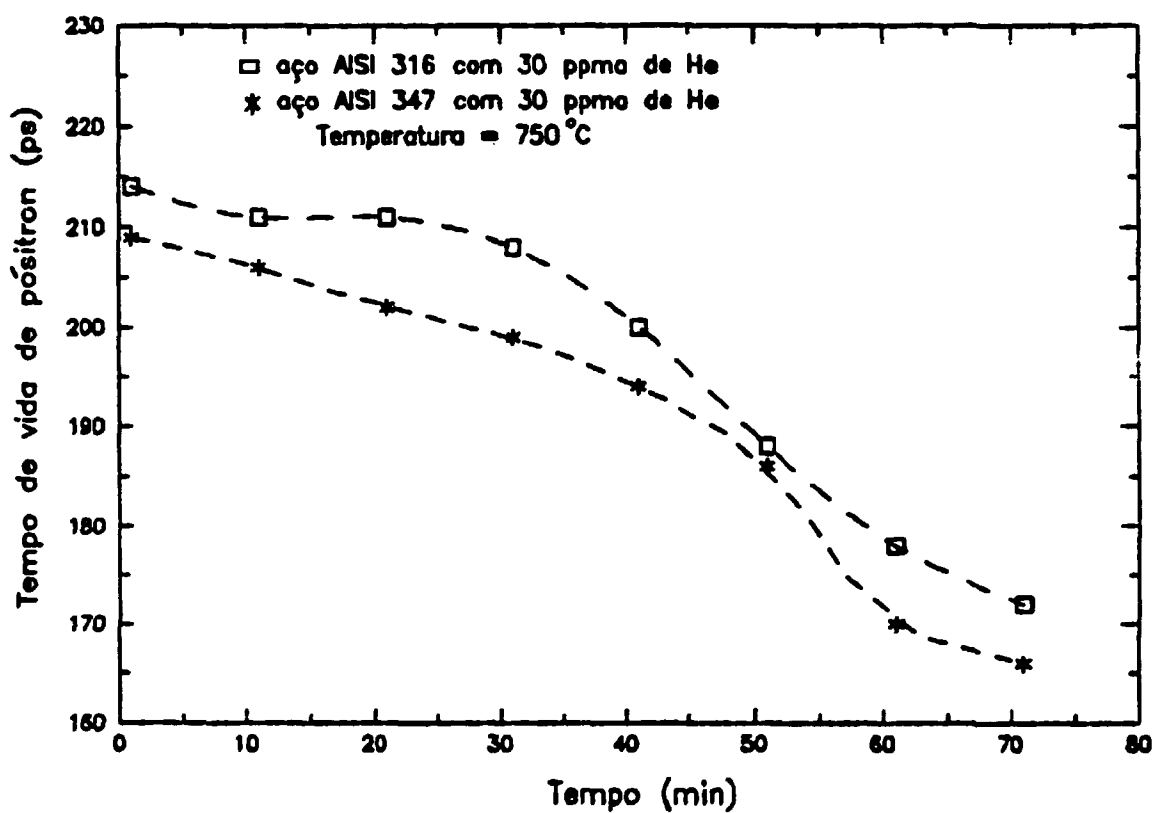
O segundo par de amostras, de cada tipo de aço, foi submetido a tratamentos térmicos a temperatura constante $T_a = 750$ °C, por intervalos de tempo de 10 minutos, iniciando em 1 até 71 minutos. Novamente foi medido o tempo de vida de pósitron ao final de cada tratamento, com resultados mostrados na figura (59).

Através do procedimento descrito, foram lançados no gráfico da figura (62) os valores de $\ln(t_i)$ e os correspondentes valores de T_i , para os cálculos das energias de ativação.

Para o aço 316 em temperaturas até 650 °C, foi obtido um valor de $1,70 \pm 0,10$ eV para energia de ativação, que foi atribuída a migração de vacâncias, e consequentemente o mesmo valor para energia de difusão do hélio nesta faixa de temperatura

$$E_{He}^{dif} \simeq E_v^m , \quad (177)$$

Figura 58: Medidas de τ_v em aços em função da temperatura de recozimento.

Figura 59: Medidas de τ_v em aços em função do tempo de recozimento.

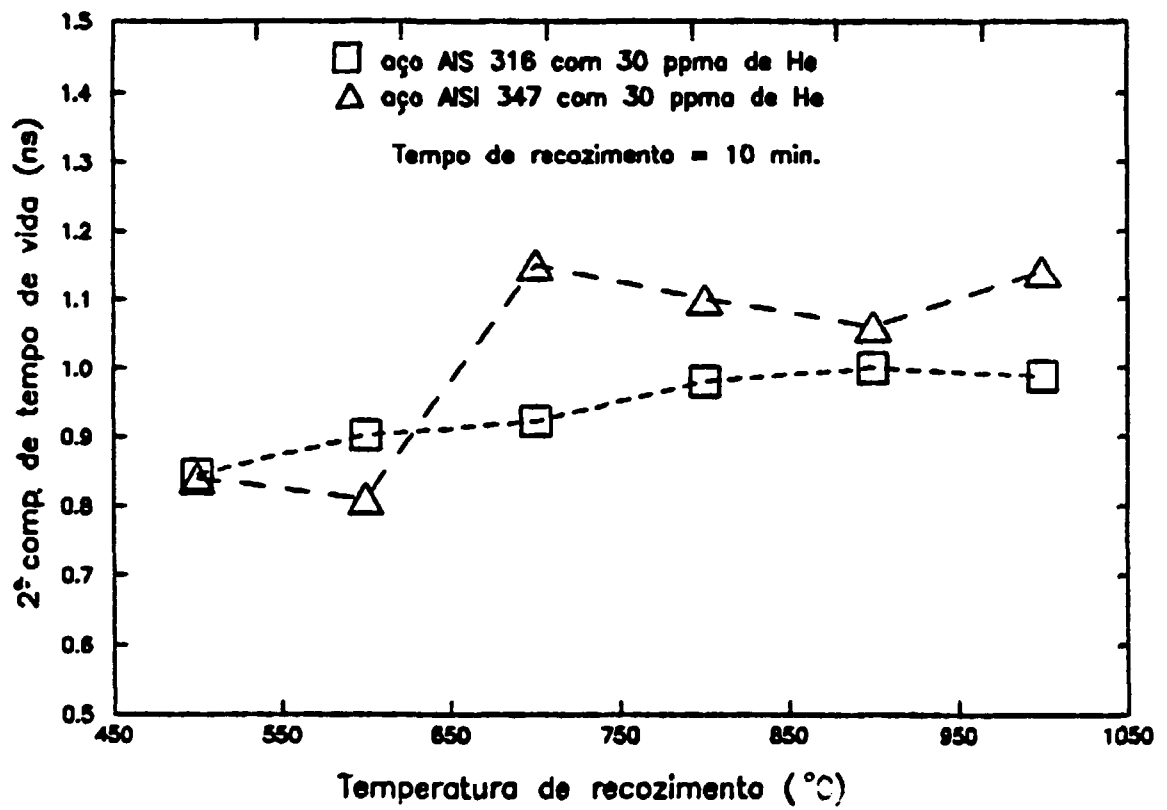


Figura 60: Medida da 2ª componente de τ_v .
em aços em função da temperatura de recozimento

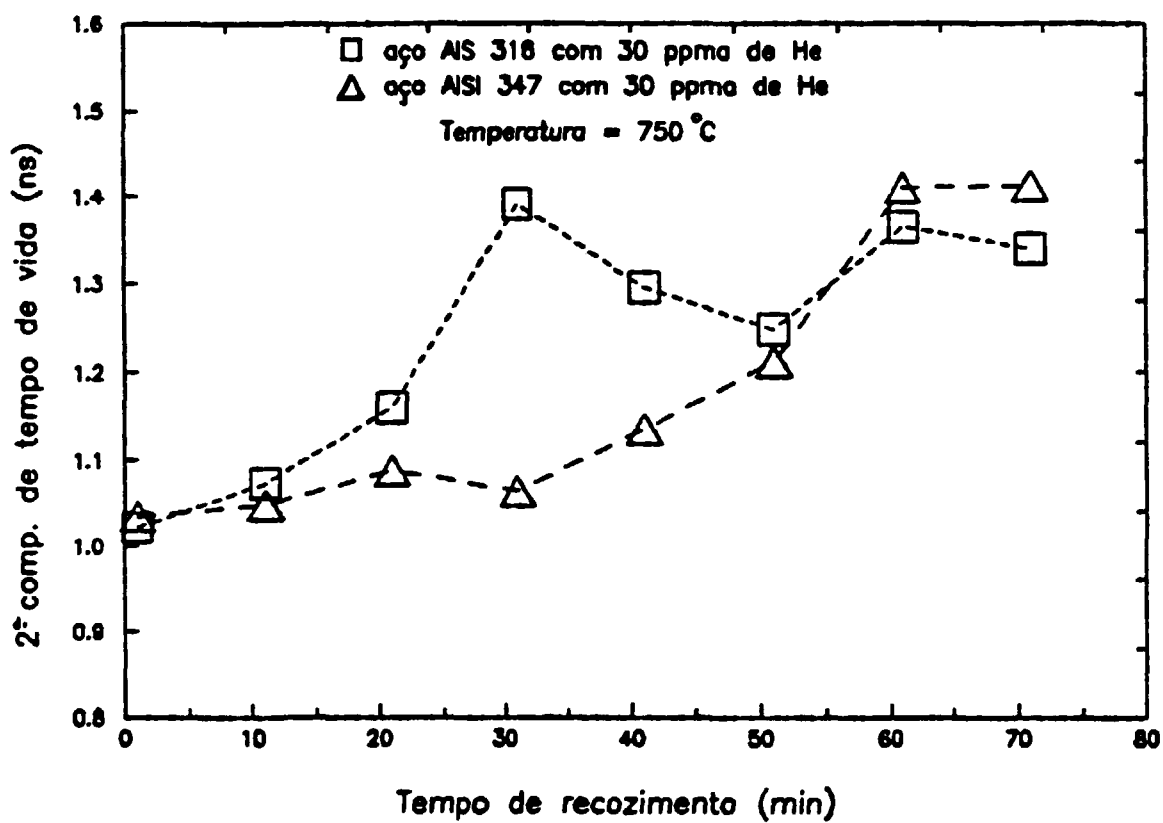


Figura 61: Medidas da 2ª componente de τ_{∞} em aços em função do tempo de recozimento

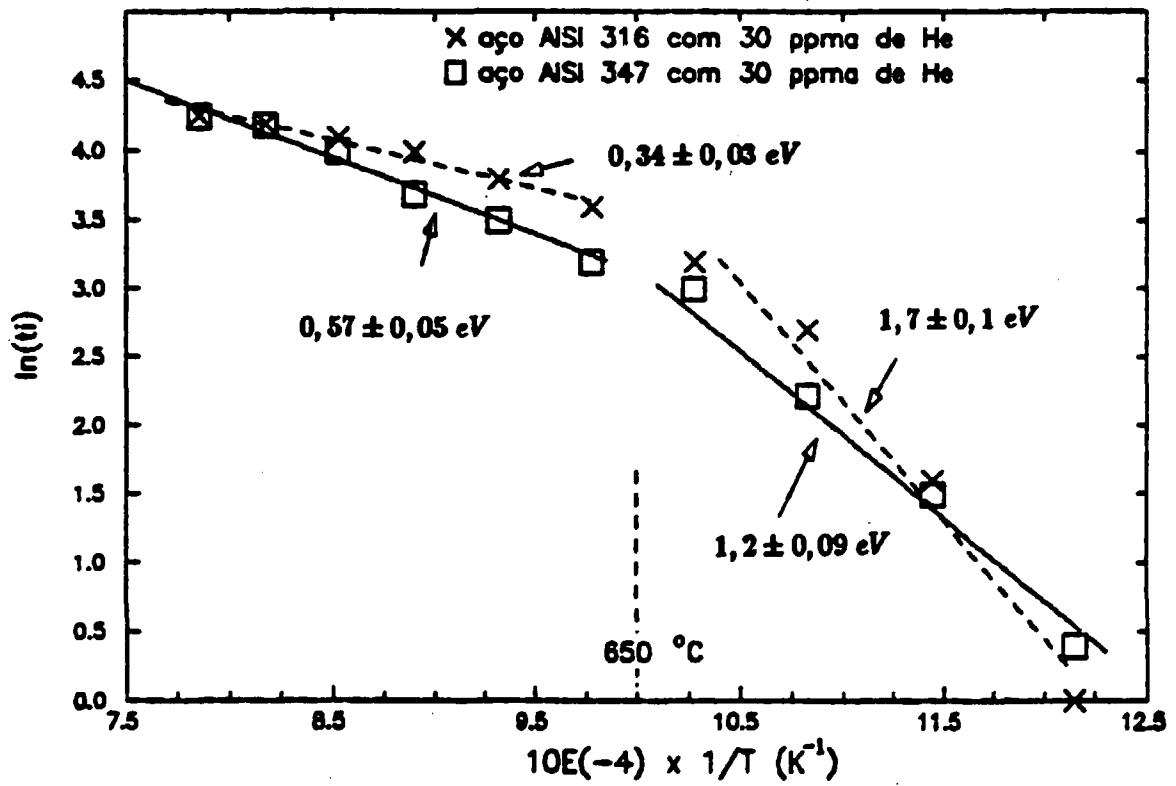


Figura 62: Valores de $\ln(t_i) \times T_i$ obtidos das figuras (58) e (59).

onde E_v^m é a energia de migração de vacâncias.

Para temperaturas maiores que $650\text{ }^\circ\text{C}$ a energia de ativação obtida foi de $0,34 \pm 0,03\text{ eV}$. Para esta faixa de temperatura o recozimento de defeitos criados pela irradiação durante a implantação, proporciona a migração do hélio pelo *mecanismo dissociativo* (ver seção (2.3.3)), com

$$E_{He}^{dif} = E_{He,v}^i + E_{He,i}^m - E_v^f, \quad (178)$$

onde E_v^f é a energia de formação de vacância.

O valor obtido para $E_{He}^{dif} = 0,34 \pm 0,03\text{ eV}$ é consistente com este mecanismo, mesmo sendo um valor menor que o disponível para o níquel^[58], $E_{He}^{dif} \approx 0,8\text{ eV}$ que serve de comparação para o aço, pois estes valores são bem menores que o valor da energia de auto-difusão^[147] ($E^{SD} \approx 2,9\text{ eV}$).

Para o aço AISI 347 os valores obtidos foram: $0,57 \pm 0,05\text{ eV}$ e $1,2 \pm 0,09\text{ eV}$, valendo as mesmas observações feitas para o aço 316.

Um fato curioso nas medidas de tempo de vida de pósitron, foi o surgimento de uma 2ª componente (no espectro de tempo) para amostras implantadas e tratadas termicamente. A princípio foi levantada a hipótese de algum procedimento incorreto nas experiências. Porém, a evolução desta 2ª componente com a temperatura, mostrada nas figuras (60) e (61), levaram à hipótese da formação de positrônio em alguma região no interior das amostras. Como a formação de positrônio não acontece em metais (ver seção (4.3.1)), foram levantadas mais duas hipóteses: amorfização de alguma região da rede cristalina por fenômenos do tipo "spike" (seção (2.3.1)), ou a formação de positrônio em aglomerados e/ou bolhas de hélio que surgem como resultado do tratamento térmico.

A hipótese da amorfização durante a implantação foi descartada pois, segundo Fichtner^[149], este fenômeno é muito improvável nas concentrações estudadas. Assim, considerando a segunda hipótese, os pósitrons estariam demonstrando condições de registrar a formação de aglomerados e/ou bolhas de hélio em temperaturas em torno de 650°C ou seja, antes que possam ser observadas por microscopia eletrônica de transmissão.

amostra aço AISI	C_{He} (ppma)	$\Delta S/S$ %
316	100	2
316	120	2
316	300	4
347	60	2
347	100	5

Tabela 11: Resultados do teste de alargamento "Doppler".

4.3.4 Medidas de Alargamento "Doppler" em Função de C_{He}

Com o sistema descrito na seção (3.2.2), e usando um amplificador especial (ORTEC 408 "BIASED AMP"), para região de energia de 511 keV, e um detector $Ge(Li)$ com resolução de $\approx 1,98$ eV (em torno da região de energia estudada), foram feitas medidas do parâmetro S para amostras de aço 316 e 347.

Como a resolução do detector não foi apropriada para estas medidas, só foi possível obter alguma variação da largura do pico gama de 511 keV, entre amostras recozidas e implantadas com concentrações acima de 100 ppma de hélio.

A figura (63), mostra a diferença dos espectros obtidos para concentração de 100 ppma e 300 ppma. A tabela (11) mostra alguns resultados mais significativos

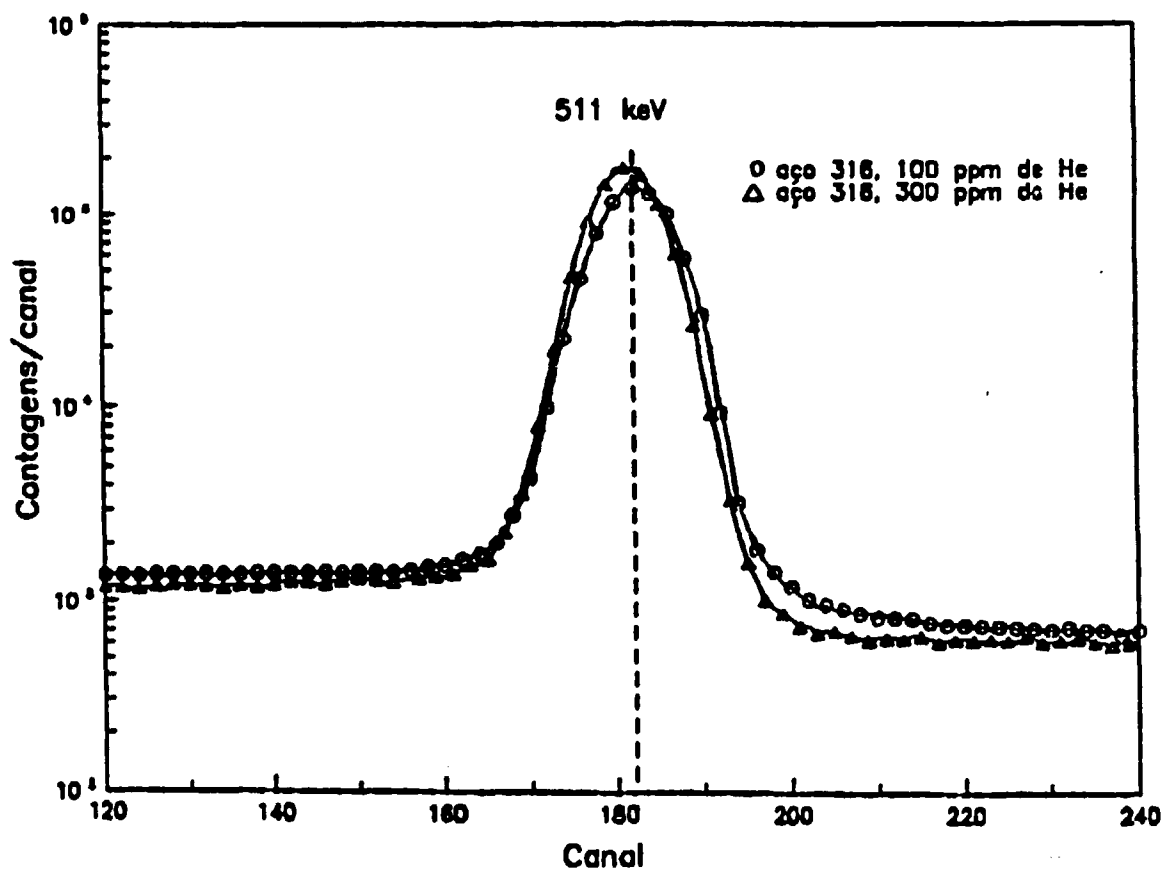


Figura 63: Comparação de espectros para medida do parâmetro S relativo ao alargamento "Doppler" devido a presença de He, 100 e 300 ppm, em amostras de aço AISI 316.

4.4 Resultados de Testes Destrutivos

4.4.1 Resultados de Tração

As amostras de aço irradiadas e não irradiadas foram submetidas a testes de tração em uma máquina de tração da marca KRATOS, com célula de carga de 100 *Kgf*. Foram utilizados também dois registradores gráficos, um para determinação direta do diagrama carga \times alongamento, e o outro para determinar o Módulo de Young^[150,151]. A taxa de deformação foi da ordem de 10^{-4} s^{-1} .

As folhas de aço laminadas (100 μm de espessura), foram submetidas a um recozimento a vácuo de ($\approx 10^{-6} \text{ Torr}$) durante 10 minutos a uma temperatura de 1000°C , e posteriormente preparados os corpos de prova, conforme descrito na seção (3.1.3). Os resultados de tensão de escoamento, e alongamento das amostras ensaiadas são mostrados na tabela (12).

Foi observado o aumento da tensão de escoamento, do limite de resistência, e um decréscimo no alongamento das amostras, com o aumento da concentração de hélio implantado (C_{He}). Entretanto algumas amostras mostraram comportamento diferente do esperado, o que foi atribuído à possível torção do corpo de prova durante a fixação na máquina de ensaios, ou mesmo, uma possível distribuição não uniforme de hélio na região implantada, devido a heterogeneidade do feixe, considerando que o controle de qualidade por sensibilização fotográfica, só foi otimizado posteriormente.

Assim, nem todos os resultados foram considerados pois não apresentaram valor satisfatório para o módulo de Young, que deve ser constante para um mesmo material^[150]. Essa medida é indicativa da validade ou não do teste, e foi obtida através da tangente, da parte elástica-linear da curva tensão \times deformação. Estes resultados, apresentados na tabela (13), serviram como parâmetros iniciais para o teste de "creep" (ver seção (4.4.2), que fornece maior reprodutibilidade de resultados, além de ser mais adequado às dimensões e características das amostras.

A figura (64), relaciona a variação da tensão de escoamento e do alongamento com a concentração de hélio implantado, mostrando uma tendência de aumento da tensão

Amostra	C_{He} (ppma)	σ_{ys} (Kgf/mm ²)	ΔL (mm)	Amostra	C_{He} (ppma)	σ_{ys} (Kgf/mm ²)	ΔL (mm)
3,A,1	3,23	41,0	7,80	3,A,2	3,29	46,5	6,13
3,B,1	1,41	46,0	3,00	3,B,2	2,29	45,0	5,78
5,A,1	4,80	47,0	7,00	5,A,2	3,88	48,0	5,80
5,B,1	4,29	46,0	6,56	5,B,2	4,35	43,5	5,50
10,A,1	4,76	48,5	4,80	10,A,2	9,65	36,0	1,50
10,B,1	10,53	44,5	3,80	10,B,2	7,65	45,0	3,00
20,A,1	21,1	49,0	3,80	20,A,2	21,3	40,0	4,60
20,B,1	15,0	40,5	4,02	20,B,2	13,0	44,5	3,03
30,A,1	35,1	50,0	3,50	30,A,2	25,6	56,5	8,70
30,B,1	32,6	45,5	3,19	30,B,2	36,8	42,0	4,00
100,A,1	101,8	48,5	2,88	100,A,2	83,6	54,5	1,28
100,B,1	116,2	55,0	2,40	100,B,2	125,0	58,5	2,50
120,A,1	90,8	63,0	3,00	120,A,2	96,2	65,0	2,65
120,B,1	117,6	62,0	2,90	120,B,2	125,3	64,0	2,26

Tabela 12: Valores de C_{He} , tensão de escoamento e alongamento para o aço AISI 316 irradiado.

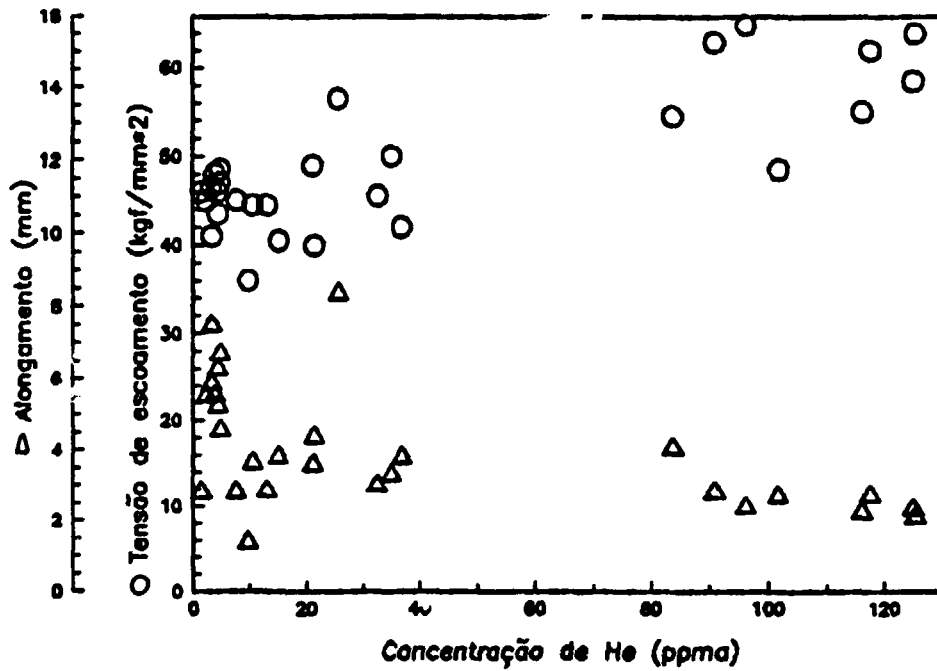


Figura 64: Variação da tensão de escoamento e alongamento com C_{He} para o aço AISI 316 irradiado.

de escoamento com a concentração de He , e uma tendência inversa para o alongamento, indicando a perda de ductilidade.

Amostra	Parâmetro da relação linear	Amostra	Parâmetro da relação linear
3,A,1	0,81	3,A,2	1,00
3,B,1	0,97	3,B,2	1,00
5,A,1	0,83	5,A,2	0,96
5,B,1	0,97	5,B,2	1,00
10,A,1	1,06	10,A,2	0,85
10,B,1	0,97	10,B,2	0,97
20,A,1	1,00	20,A,2	1,00
20,A,1	1,00	20,B,2	0,81
30,A,1	1,05	30,A,2	1,10
30,B,1	1,00	30,B,2	0,94
100,A,1	1,07	100,A,2	1,02
100,B,1	1,07	100,B,2	1,02
120,A,1	1,00	120,A,2	1,00
120,B,1	1,17	120,B,2	1,02

Tabela 13: Valores dos parâmetros da relação linear das curvas de tração.

4.4.2 Resultados de Testes de “CREEP”

Os ensaios foram realizados na coluna de “creep”, descrita na seção (3.3.2), mantida a temperatura de 750°C . Os valores das tensões aplicadas foram: 100, 120, 130, 140, 150, 160, 180 e 200 MPa . Foram feitas medidas de tempo de ruptura T_r , e porcentagem de deformação $\% \epsilon$ em função da concentração de hélio C_{He} , e da tensão aplicada σ . As concentrações de hélio das amostras ensaiadas foram: 0; 2,9; 3,2; 3,3; 18; 34; 36; 37; 38; 46; 60; 76; 90 ppma em aço 347, e 0; 33 ppma em aço 316.

A figura (65), mostra um gráfico típico da variação do comprimento l da amostra, registrada pelo LVDT (ver também a figura (45)), em função do tempo. A curva (a) representa o controle da temperatura durante o teste. A partir deste gráfico (curva (b)), pode-se determinar o tempo de ruptura T_r (h), a taxa de deformação (velocidade de fluência) ϵ ($\%h^{-1}$), e a porcentagem final da deformação e ϵ_f (%).

Para realização dos ensaios de “creep” foi adotado o seguinte procedimento; para cada tensão σ_i ($\sigma_1 = 100 \text{ MPa}$, $\sigma_2 = 130 \text{ MPa}$, $\sigma_3 = 160 \text{ MPa}$, $\sigma_4 = 140 \text{ MPa}$ e $\sigma_5 = 180 \text{ MPa}$), foi escolhido um conjunto de amostras com diferentes concentrações de hélio implantado (C_{He}). Para cada amostra foi determinado T_r , ϵ e ϵ_f . Os resultados são mostrados nas tabelas (14) a (18) e nas figuras (66) a (73).

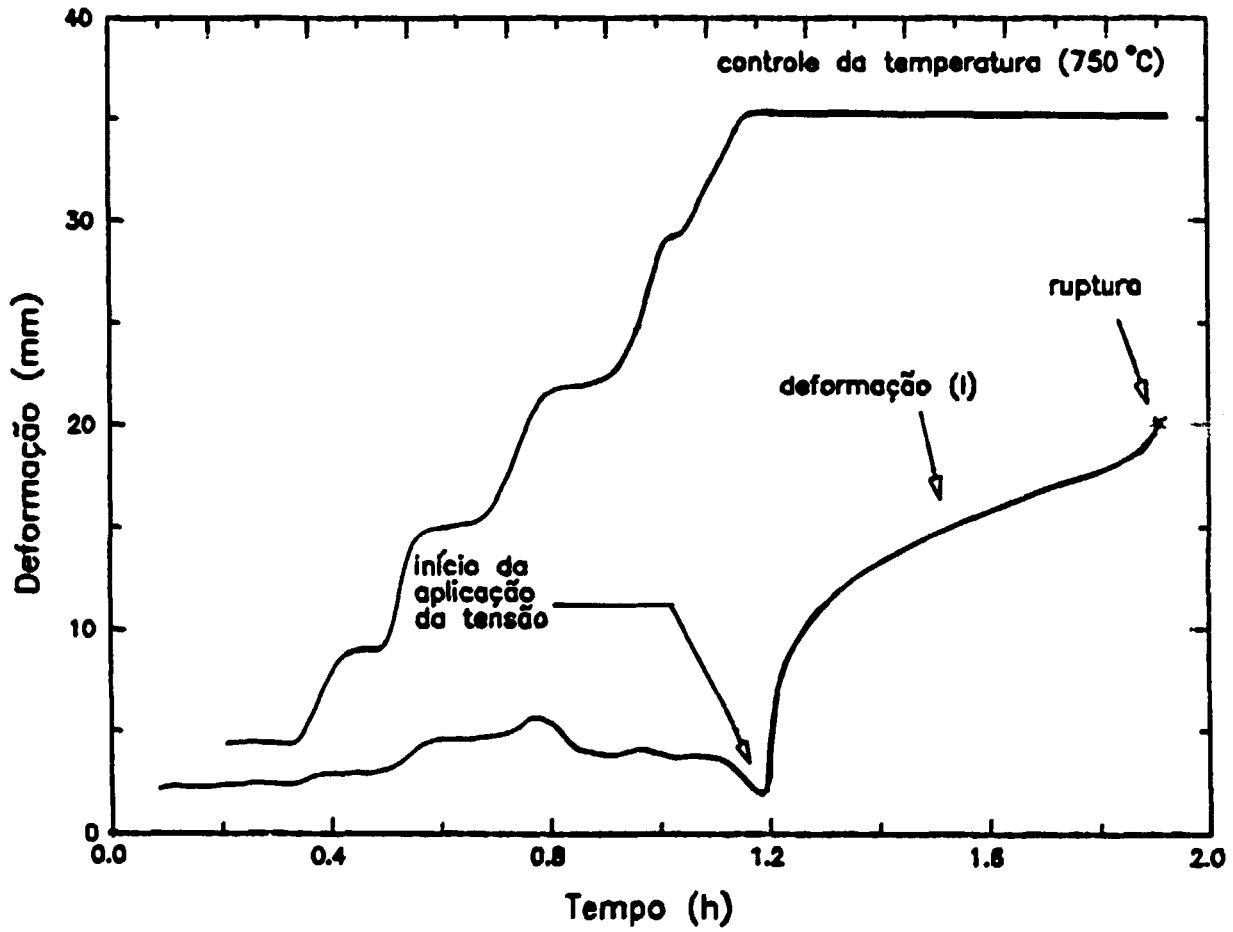


Figura 65: Variação de l no LVDT
("linear variable displacement transducer"), adaptado à coluna de "creep".

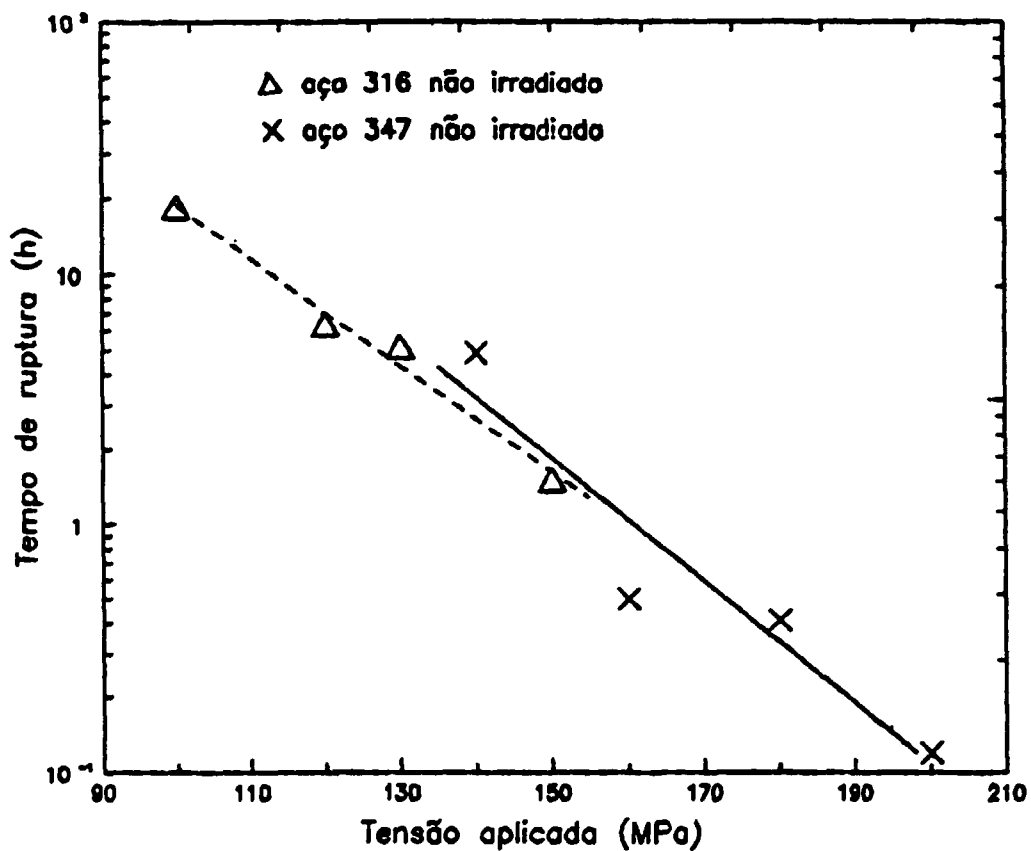


Figura 66: Tempo de ruptura em função da tensão aplicada a 750°C.

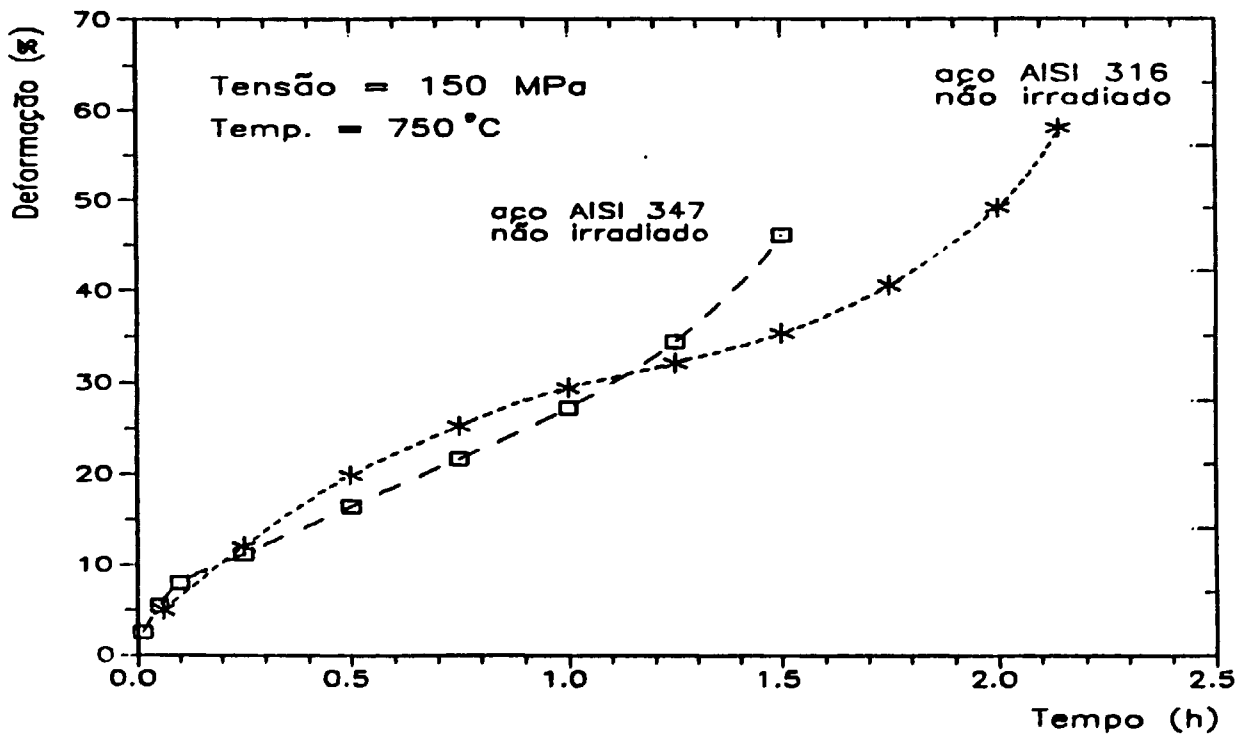


Figura 67: Deformação para os aços 316 e 347 não irradiados.

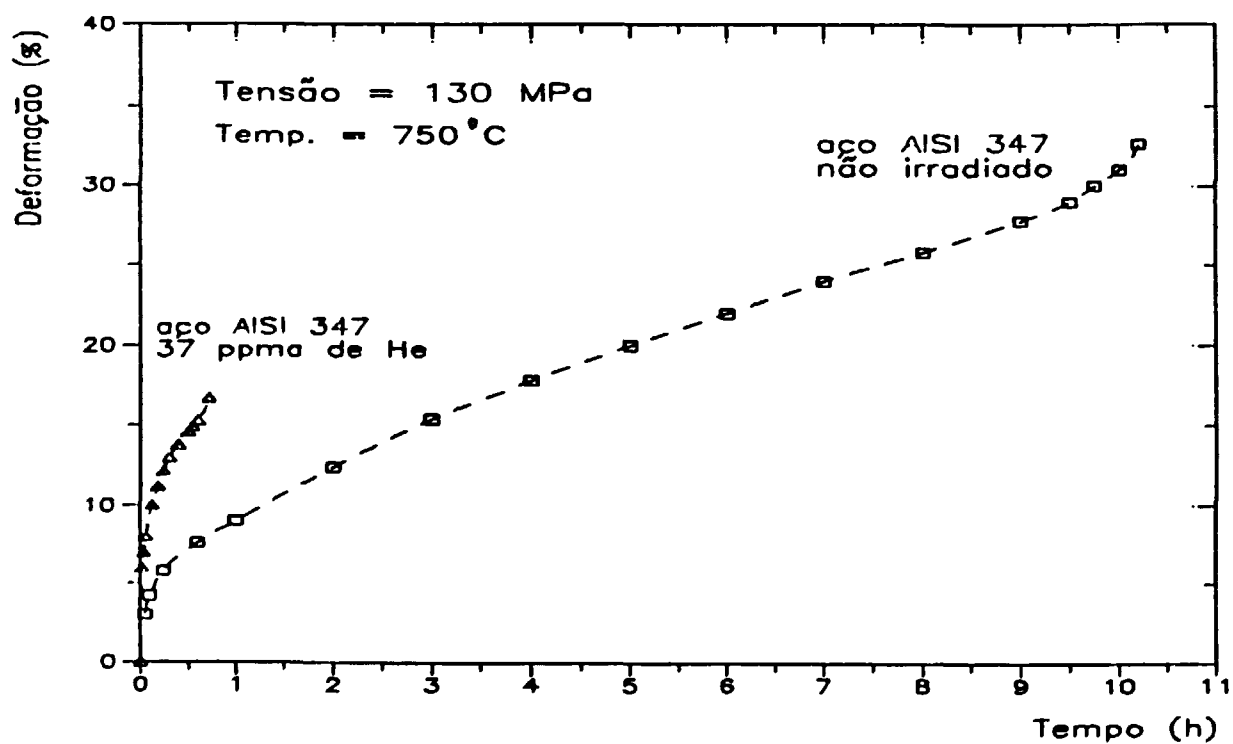


Figura 68: Deformação para o aço 347 irradiado e não irradiado.

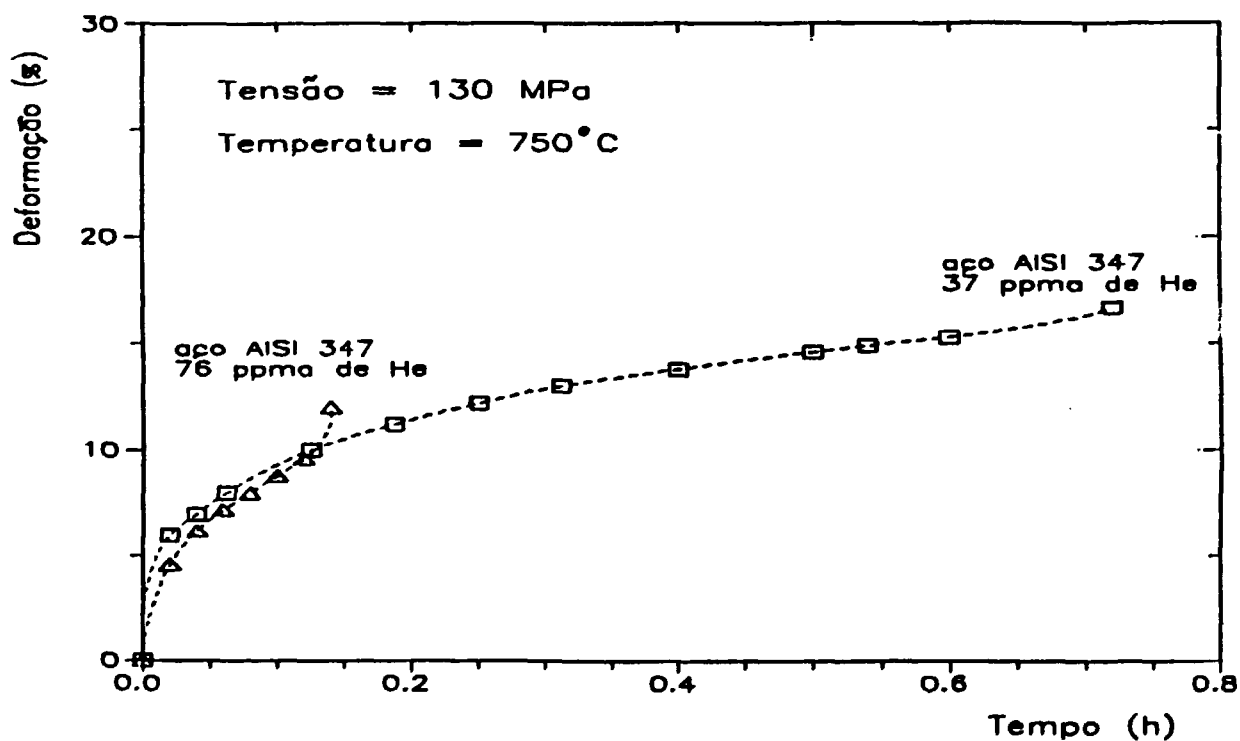


Figura 69: Deformação para diferentes concentrações de hélio implantado.

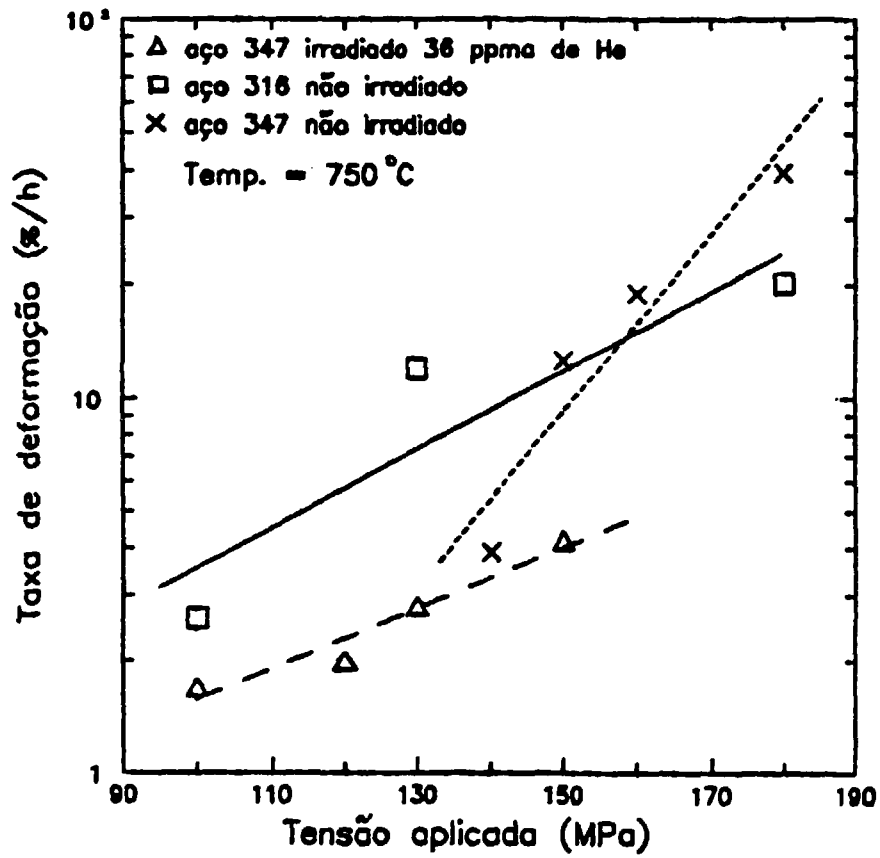
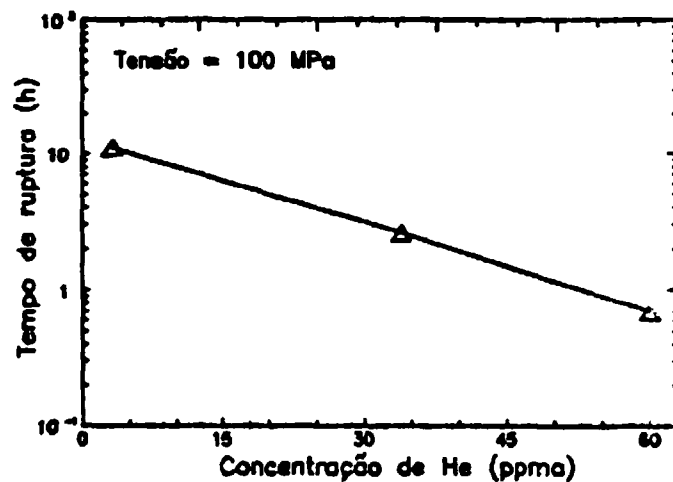


Figura 70: Taxa de deformação em função da tensão aplicada.

$C_{He}(ppma)$	$T_r(horas)$
3,2	11,1
34	2,6
60	0,75

Tabela 14: Tempo de ruptura com $\sigma_1 = 100 MPa$.Figura 71: $\ln(T_r) \times C_{He}$ com $\sigma_1 = 100 MPa$.

Os resultados experimentais para os tempos T_r , com $\sigma_1 = 100 MPa$, para algumas concentrações (C_{He}) de hélio pode ser vistos na tabela (14). Em um gráfico semi-log, tem-se uma reta (figura (71)), cujo comportamento sugere uma função do tipo

$$T_r = k_1 \exp \{-\gamma_1 C_{He}\} \quad (179)$$

onde, k_1 e γ_1 podem ser obtidos da figura (71)

$$\begin{cases} k_1 = 13,03 \\ \gamma_1 = 0,05 \\ \sigma_1 = 100 MPa \end{cases} \quad (180)$$

$C_{He}(ppma)$	$T_r(horas)$
18	1,6
37	0,66
76	0,13

Tabela 15: Tempo de ruptura com $\sigma_2 = 130 MPa$.

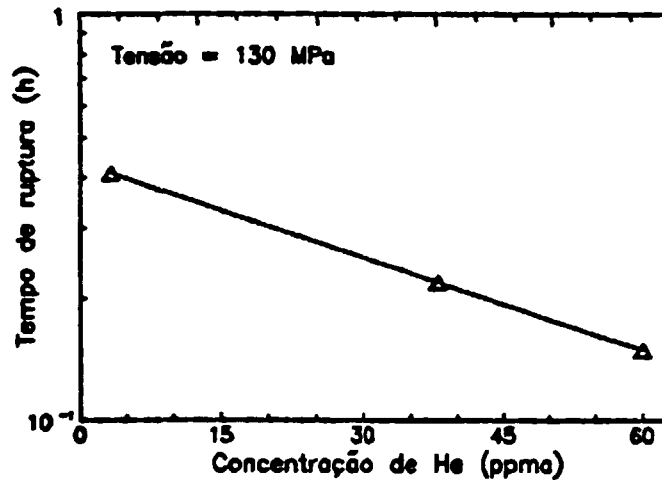


Figura 72: $\ln(T_r) \times C_{He}$ com $\sigma_2 = 130 MPa$.

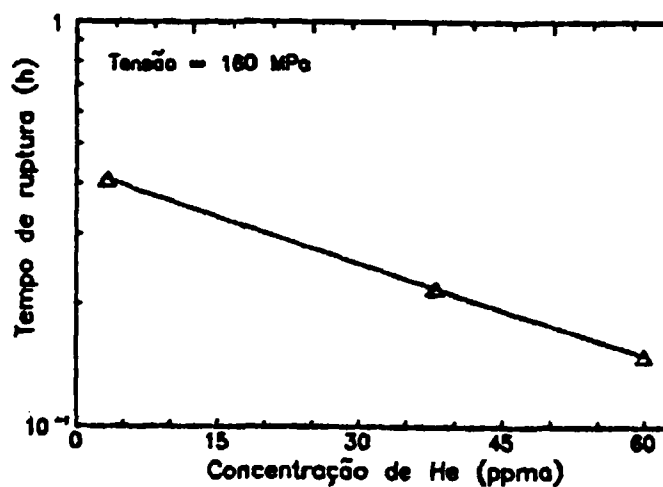
Os resultados para $\sigma_2 = 130 MPa$ são mostrados na tabela (15). Em um gráfico semi-log (figura (72)), estes resultados sugerem um comportamento do tipo

$$T_r = k_2 \exp \{-\gamma_2 C_{He}\} \tag{181}$$

com

$$\begin{cases} k_2 = 3,2 \\ \gamma_2 = 0,04 \\ \sigma_2 = 130 MPa \end{cases} \tag{182}$$

$C_{He}(ppma)$	$T_r(horas)$
3,3	0,41
38	0,22
60	0,15

Tabela 16: Tempo de ruptura com $\sigma_3 = 160 MPa$ Figura 73: $\ln(T_r) \times C_{He}$ com $\sigma_3 = 160 MPa$

Analogamente, para $\sigma_3 = 160 MPa$ (tabela (16)). Em um gráfico semi-log (figura (73)), para este caso os resultados sugerem

$$T_r = k_3 \exp \{-\gamma_3 C_{He}\} \quad (183)$$

com

$$\begin{cases} k_3 = 0,55 \\ \gamma_3 = 0,03 \\ \sigma_3 = 160 MPa \end{cases} \quad (184)$$

$C_{He}(ppma)$	$T_r(horas)$
90	0,1

Tabela 17: Tempo de ruptura com $\sigma_4 = 140 MPa$.

$C_{He}(ppma)$	$T_r(horas)$
0	0,5
36	0,07

Tabela 18: Tempo de ruptura com $\sigma_5 = 180 MPa$.

Para $\sigma_4 = 140 MPa$ e $\sigma_5 = 180 MPa$ os resultados são mostrados nas tabelas (17) e (18) respectivamente.

Resumindo,

$$\left\{ \begin{array}{l} \sigma_1 = 100 MPa \Rightarrow k_1 = 13,03 \Rightarrow \gamma_1 = 0,05 \\ \sigma_2 = 130 MPa \Rightarrow k_2 = 3,2 \Rightarrow \gamma_2 = 0,04 \\ \sigma_3 = 160 MPa \Rightarrow k_3 = 3,55 \Rightarrow \gamma_3 = 0,03 \end{array} \right. \quad (185)$$

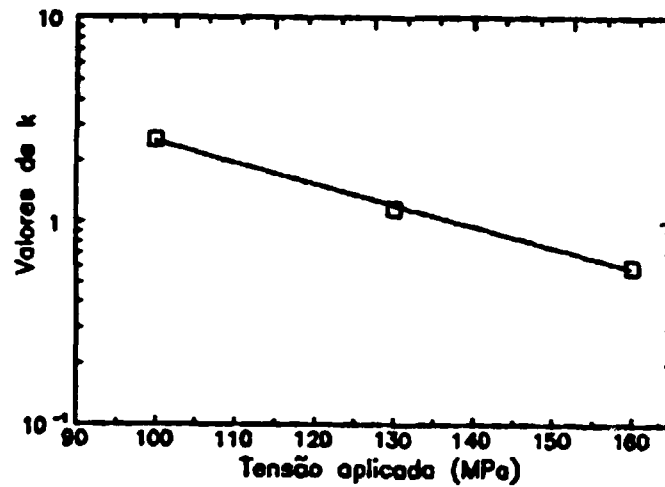
e

$$T_r = k_i \exp \{-\gamma_i C_{He}\}. \quad (186)$$

Observa-se que os k_i 's, assim como os γ_i 's variam com a tensão, ou seja $k \rightarrow k(\sigma)$ e $\gamma \rightarrow \gamma(\sigma)$. Assim, a equação (186) para T_r pode ser reescrita como

$$T_r = k_i(\sigma) \exp \{-\gamma_i(\sigma) C_{He}\}. \quad (187)$$

k	σ (MPa)	$\ln k$
13,03	100	2,565
3,2	130	1,163
0,55	160	-0,598

Tabela 19: Valores de k_i e $\ln(k_i)$ para σ_i .Figura 74: $\ln(k) \times \sigma$.

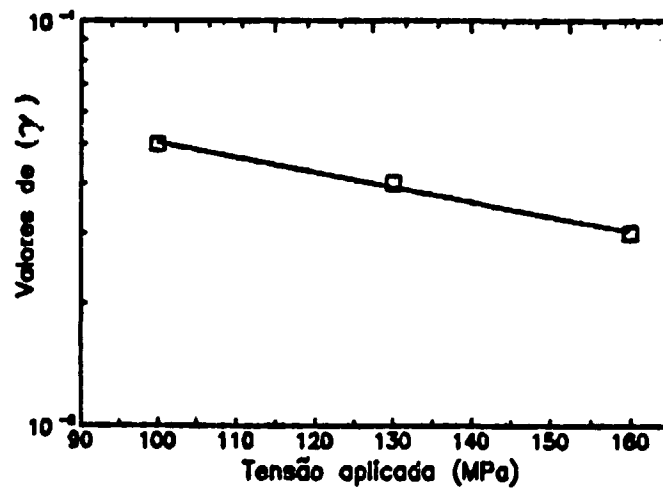
De (185), dispondo os valores de k , σ e $\ln k$ na tabela (19) e fazendo um gráfico de $\ln(k) \times \sigma$, pode-se avaliar a relação $k(\sigma)$ (figura (74)), cujo comportamento sugere uma função do tipo

$$k(\sigma) = j \exp \{-\delta \sigma\} \quad (188)$$

com

$$\begin{cases} \delta \simeq 0,05 \\ j = 1940 \end{cases} \quad (189)$$

σ (MPa)	γ
100	0,05
130	0,04
160	0,03

Tabela 20: Valores de γ para correspondentes σ_i .Figura 75: $\gamma \times \sigma$.

Ainda de (185), fazendo um gráfico de $\gamma \times \sigma$ pode-se avaliar a função $\gamma(\sigma)$, figura (75). Assim $\gamma(\sigma)$ pode ser escrito como uma reta do tipo

$$\gamma(\sigma) = -\eta(\sigma) + b \quad (190)$$

com

$$\begin{cases} \eta = 3,3 \times 10^{-4} \\ b = 0,083 \end{cases} \quad (191)$$

Logo

$$\gamma(\sigma) = -3,3 \times 10^{-4} \sigma + 0,083 . \quad (192)$$

Voltando em (187)

$$T_r = k(\sigma) \exp \{ \gamma(\sigma) C_{He} \}$$

$$T_r = j \exp \{ -\delta \sigma \} \exp \{ -\gamma(\sigma) C_{He} \}$$

$$T_r(\sigma, C_{He}) = j \exp \{ -\delta \sigma \} \exp \{ (\eta \sigma - b) C_{He} \}.$$

ou ainda

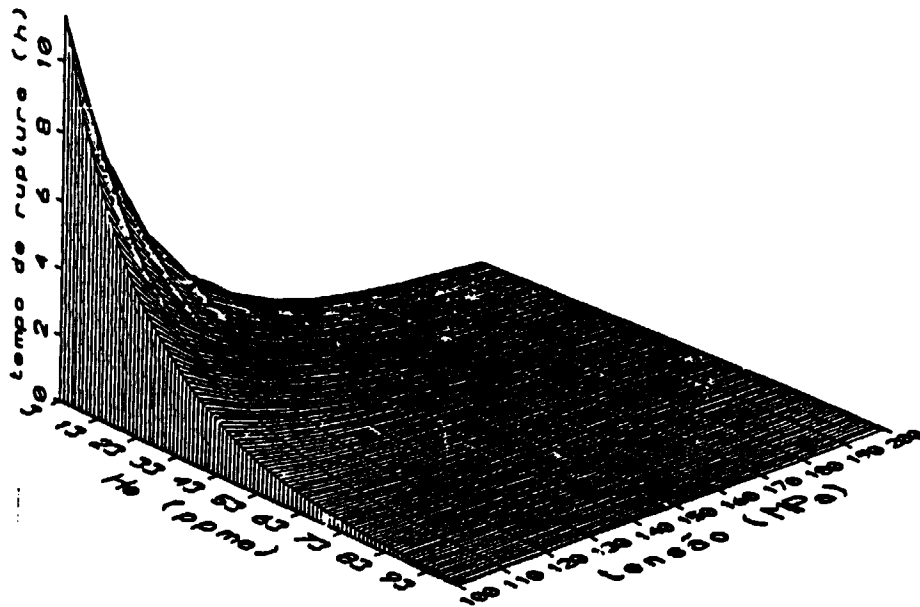
$$T_r(\sigma, C_{He}) = j \exp \{ (-\delta + \eta C_{He}) \sigma - b C_{He} \}, \quad (193)$$

com

$$\begin{cases} \eta = 3,3 \times 10^{-4} \\ b = 0,083 \\ j = 1940 \\ \delta = 0,05 \end{cases} \quad (194)$$

Fazendo um gráfico tridimensional para esta função $T_r(\sigma, C_{He})$, pode-se observar o comportamento do tempo de ruptura em função de σ e C_{He} , para uma determinada temperatura T (figura (76)).

O gráfico da figura (76) mostra que os níveis de concentração de hélio implantado tem praticamente a mesma influência que os níveis de tensão aplicada, quando as amostras são submetidas ao teste de "creep" a $750^\circ C$. A queda acentuada de T_r com a concentração de He , associada ao fato de que a quantidade de deslocamentos produzida durante as implantações é relativamente pequena (seção (4.1)), levam a supor que a fragilização observada é consequência do hélio implantado. Esta suposição é confirmada pela análise microestrutural, discutida a seguir.

"CREEP" A 750°C EM AÇO AISI 347 IMPLANTADO COM HÉLIOFigura 76: T_r em função da concentração C_{He} e tensão aplicada σ .

4.4.3 Resultados de MEV e MET

Para análise da superfície de fratura, por microscopia eletrônica de varredura, foi selecionado um conjunto de amostras dos aços AISI 316 e 347, irradiadas e submetidas a testes de tração ou “creep”. Para estas análises não foi necessário uma preparação especial das amostras, considerando que a análise no microscópio eletrônico de varredura é feita a um vácuo da ordem de 10^{-6} Torr, e a observação é feita diretamente na superfície de fratura. Os microscópios utilizados para esta análise foram o MEV Cambridge - 250 COPPE/UFRJ, e o MEV Zeiss - PUC/RJ.

Para análise microestrutural com MET, foi selecionado outro conjunto de amostras de aço AISI 316 e 347 irradiadas e não irradiadas submetidas aos diferentes testes e tratamentos térmicos. Algumas amostras analisadas por MEV também o foram por MET. Os microscópios utilizados foram os Jeol-2000 FX da COPPE/UFRJ e o Jeol IPEN/CNEN. Em algumas das observações foi utilizado a técnica de desfocalização^[152] para um melhor contraste na observação de *bolhas*.

Das amostras foram retirados pequenos discos (de 3mm de diâmetro), com um punção especial, e preparados para microscopia eletrônica de transmissão, em um aparelho TENUPOL, de jato duplo de solução especial, como descrito na seção (3.3.3). De cada amostra submetida a microscopia, foram analisadas regiões de incidência do feixe de partículas e regiões fora da incidência do feixe. Foram feitas análises da distribuição de tamanho de bolhas em função da concentração de hélio implantado e do tratamento térmico, com resultados apresentados nas figuras (77), (78) e (79).

O comportamento do raio médio das bolhas de He com o tratamento térmico, visto na figura (77), quando comparado às curvas teóricas $t^{(1/n)}$, com derivada logarítmica $n = 2$ ou $n = 3$, constitui um indício^[147] do mecanismo de “Ostwald ripening” (OR), para o crescimento de bolhas (seção (2.3.3)). A determinação do tipo de crescimento é importante, por exemplo, quando se busca um modo de impedir a migração de hélio e o conseqüente crescimento de bolhas em regiões como contorno de grão. Em alguns trabalhos^[65,54,148] sugere-se que isto seja feito através do aumento da concentração de alguns precipitados do tipo carboneto.

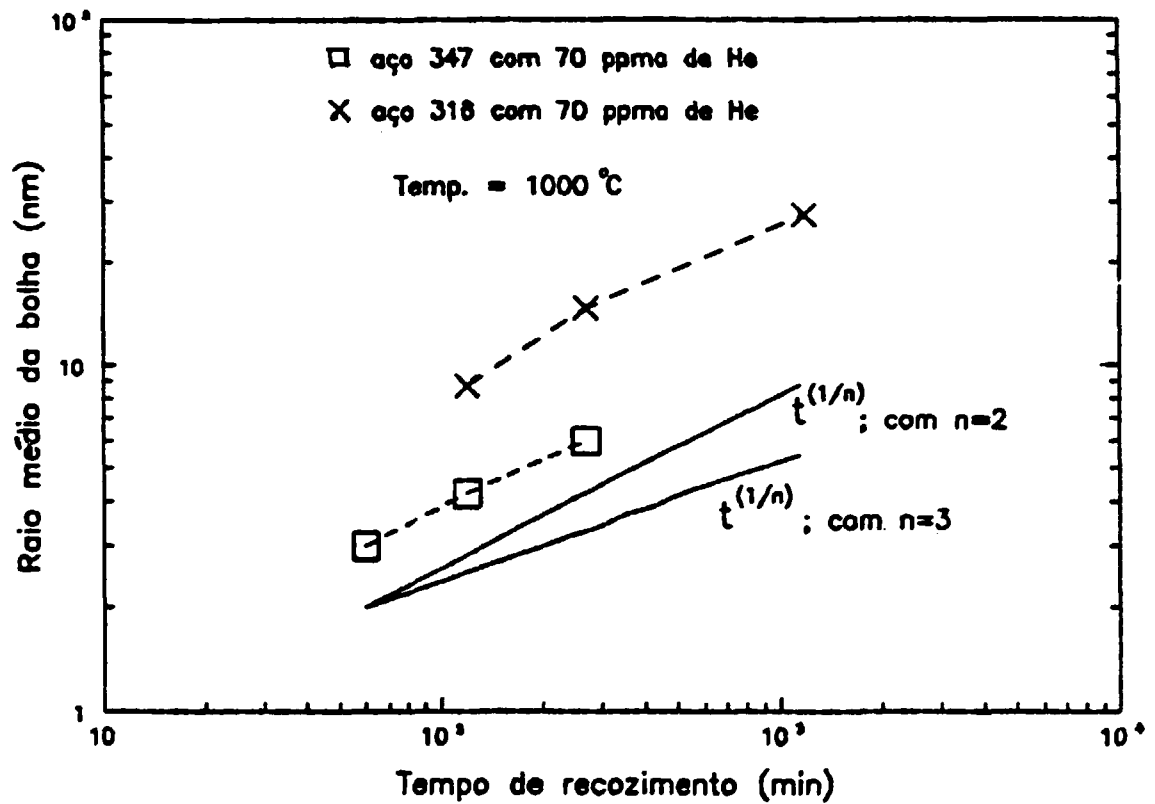


Figura 77: Raio da bolha em função do tempo de recozimento com vácuo $< 10^{-5}$ Torr. As curvas (c) e (d) são curvas teóricas para efeito de comparação das inclinações.

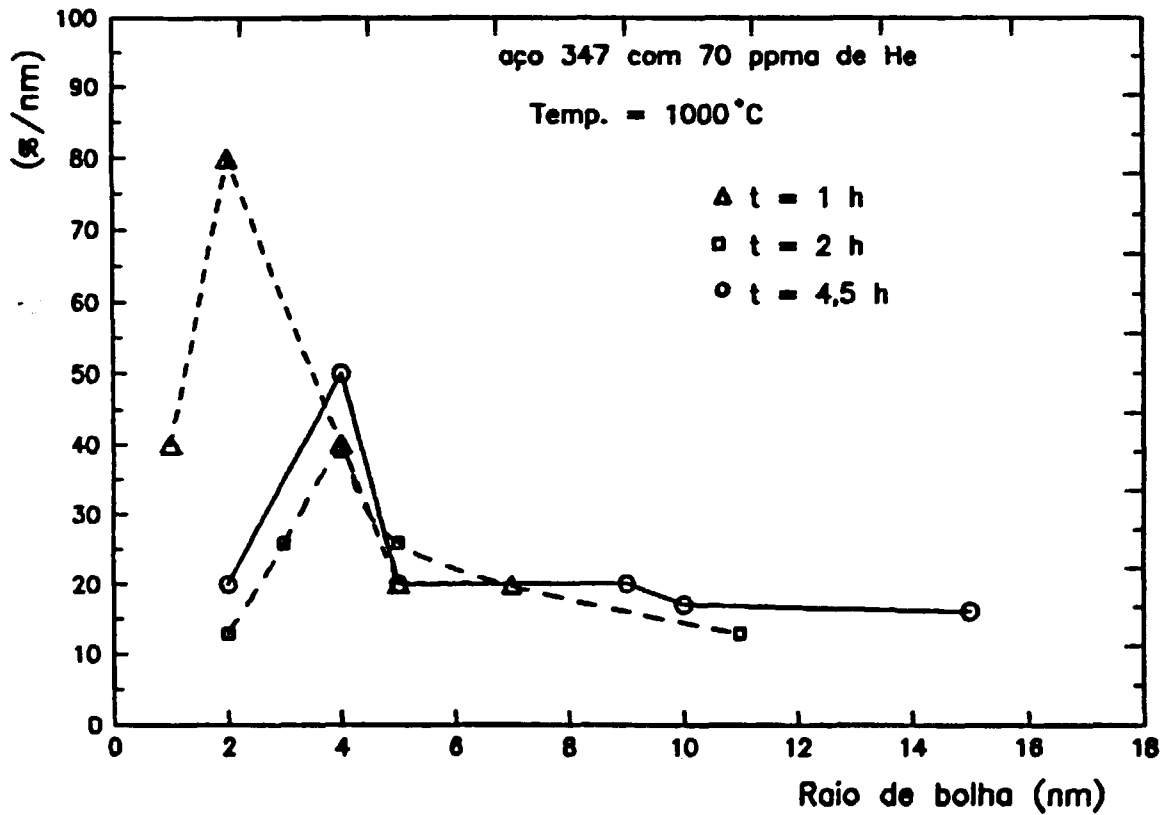


Figura 78: Distribuição de tamanho de bolha no aço 347 para diferentes tratamentos térmicos, em vácuo $< 10^{-5}$ Torr.

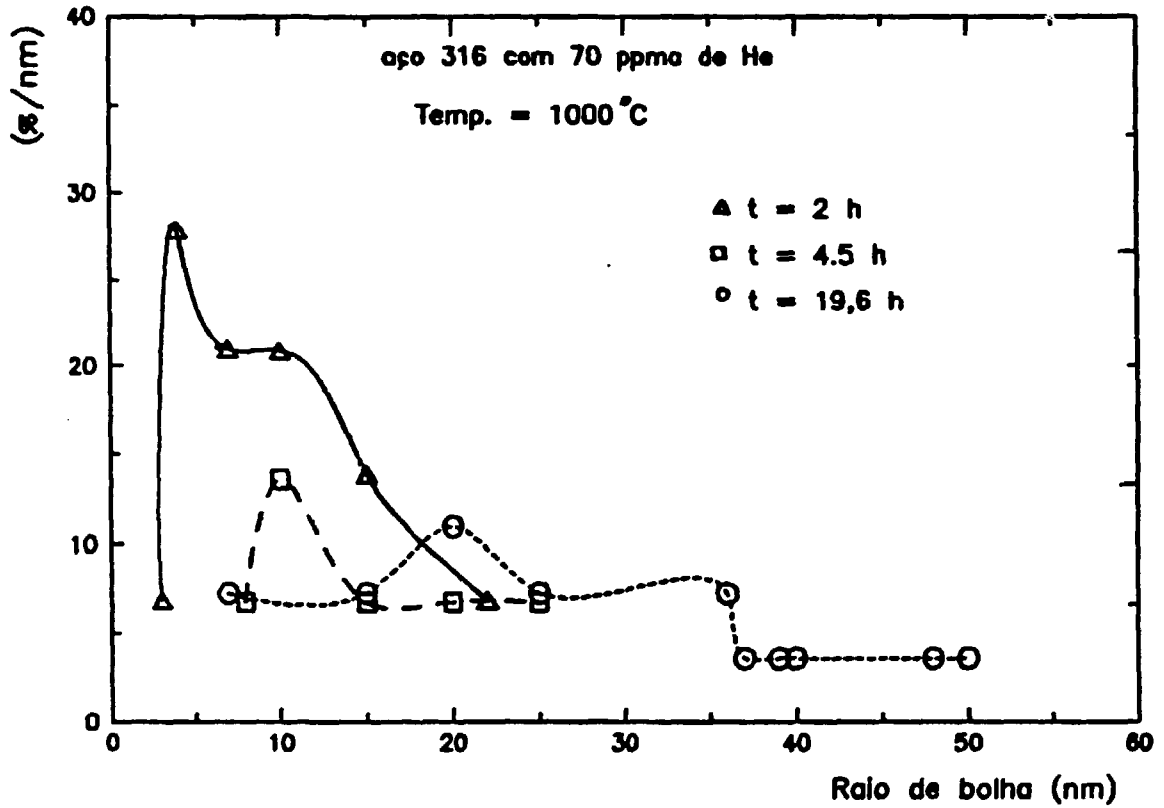
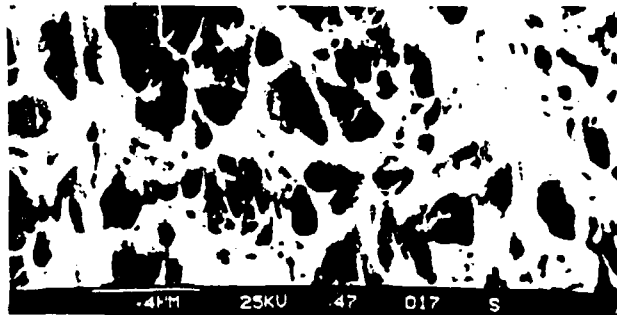


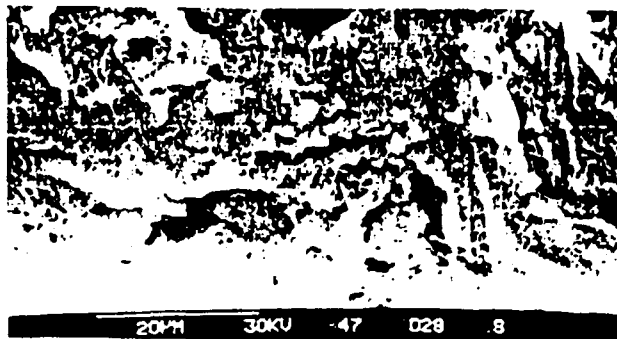
Figura 79: Distribuição de tamanho de bolha no aço 316 para diferentes tratamentos térmicos, em vácuo $< 10^{-5}$ Torr.

O tratamento térmico mostra ainda (figuras (78) e (79)), que a concentração de pequenas bolhas de *He* diminui enquanto o raio médio aumenta com o tempo de recozimento. Este fato associado ao comportamento do raio médio das bolhas descrito na figura (77), além do aparecimento da 2ª componente do tempo de vida de pósitron em amostras implantadas e tratadas termicamente, reforçam a hipótese do mecanismo de “Ostwald ripening” para o crescimento das bolhas.

As figuras (80) a (86), mostram aspectos da superfície de fratura, microestrutura e bolhas de hélio, para amostras dos aços 316 e 347 em diversas condições.

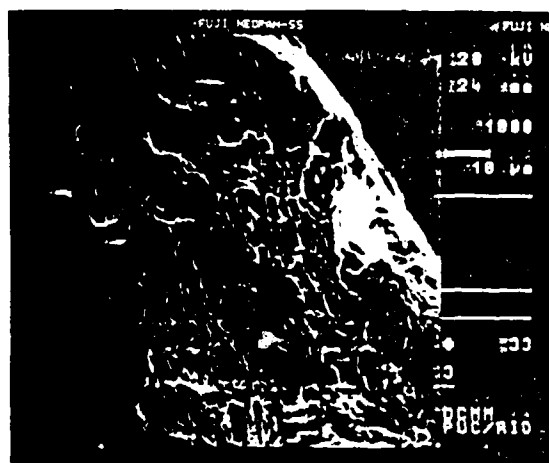


(A)

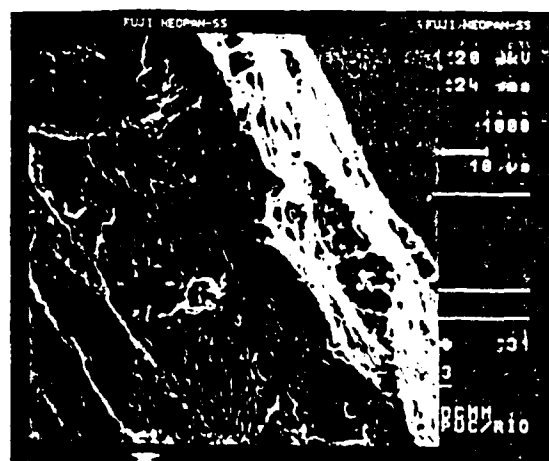


(B)

Figura 80: (A) MEV com aumento de 4900X de amostra de aço 316 com 20 ppm de He, mostrando aspecto ("chisel-like"), típico de fratura dúctil ou transgranular. (B) MEV com aumento de 3000X de amostra de aço 316 com 120 ppm de He mostrando aspecto ("cup-cone"), típico de fratura frágil ou intergranular.



(A)



(B)

Figura 81: (A) MEV com aumento de 1000X de amostra de aço 347 com 10 ppm de Ni, mostrando aspecto típico de fratura dúctil ou transgranular. (B) MEV com aumento de 1000X de amostra de aço 347 com 90 ppm de Ni mostrando aspecto típico de fratura frágil ou intergranular.

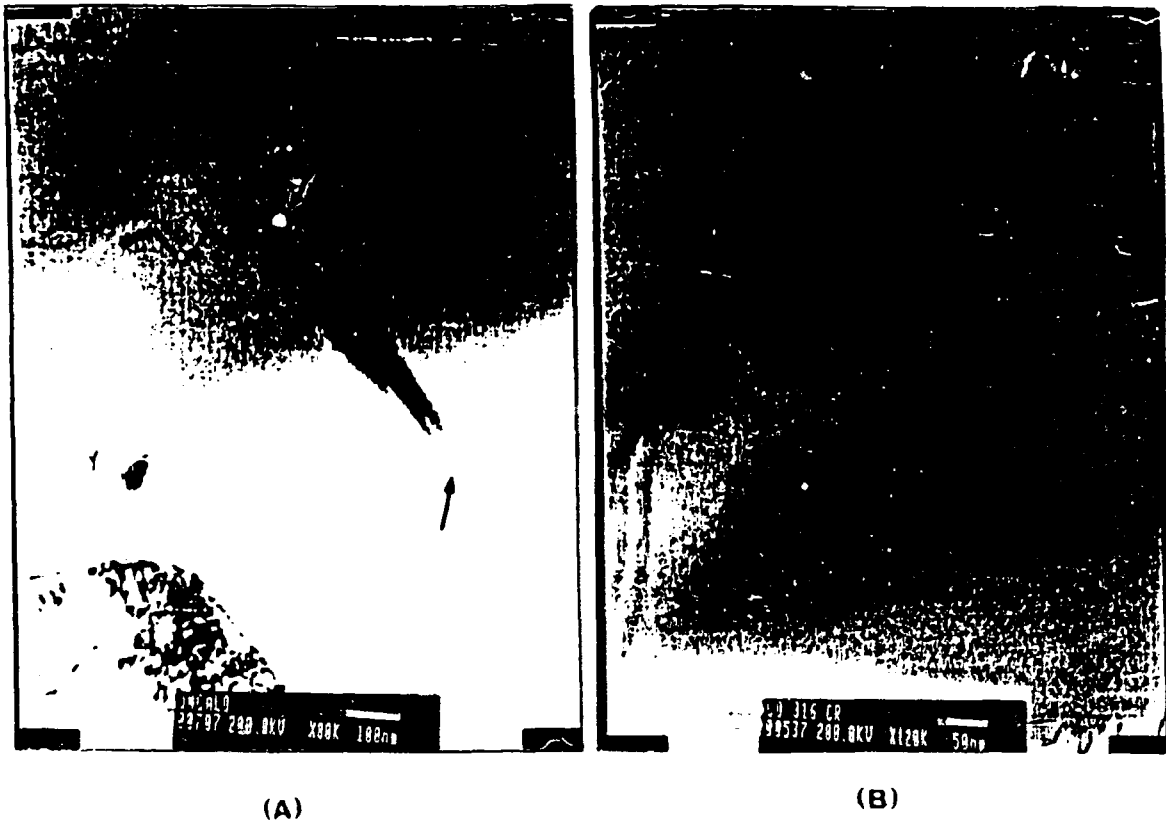
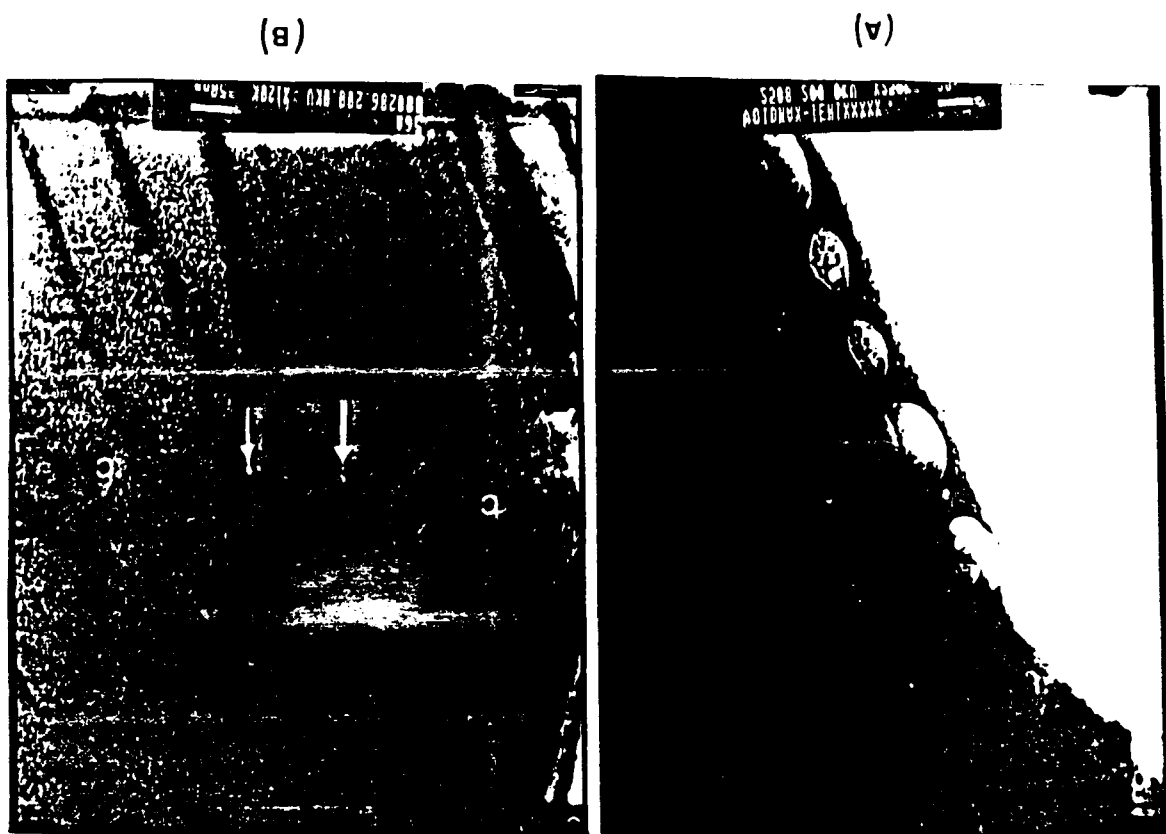


Figura 82: (A) MET do aço 347, 30 ppm de *He*, não tensionado, recozido 1000°C, 10 minutos, mostrando região de discordância (faixa diagonal escura) atuando como escoa-douro para crescimento de bolhas (setas nas extremidades). (B) MET do aço 316, 30 ppm de *He*, não tensionado, recozido 1000°C, 10 minutos mostrando segmento de discordância com crescimento de bolhas de hélio.

Figura 83: (A) MET ago 316, 300 μm de H_v , não tensionado, região central de incidência do feixe de partículas α , rotozido a 750°C, 22,5 horas, mostrando crescimento de bolhas de até 40 μm de raio; (B) MET ago 316, 30 μm de H_v , não tensionado, rotozido 1000°C, 2 horas mostrando crescimento de bolhas de hélio em contorno de grão (C).



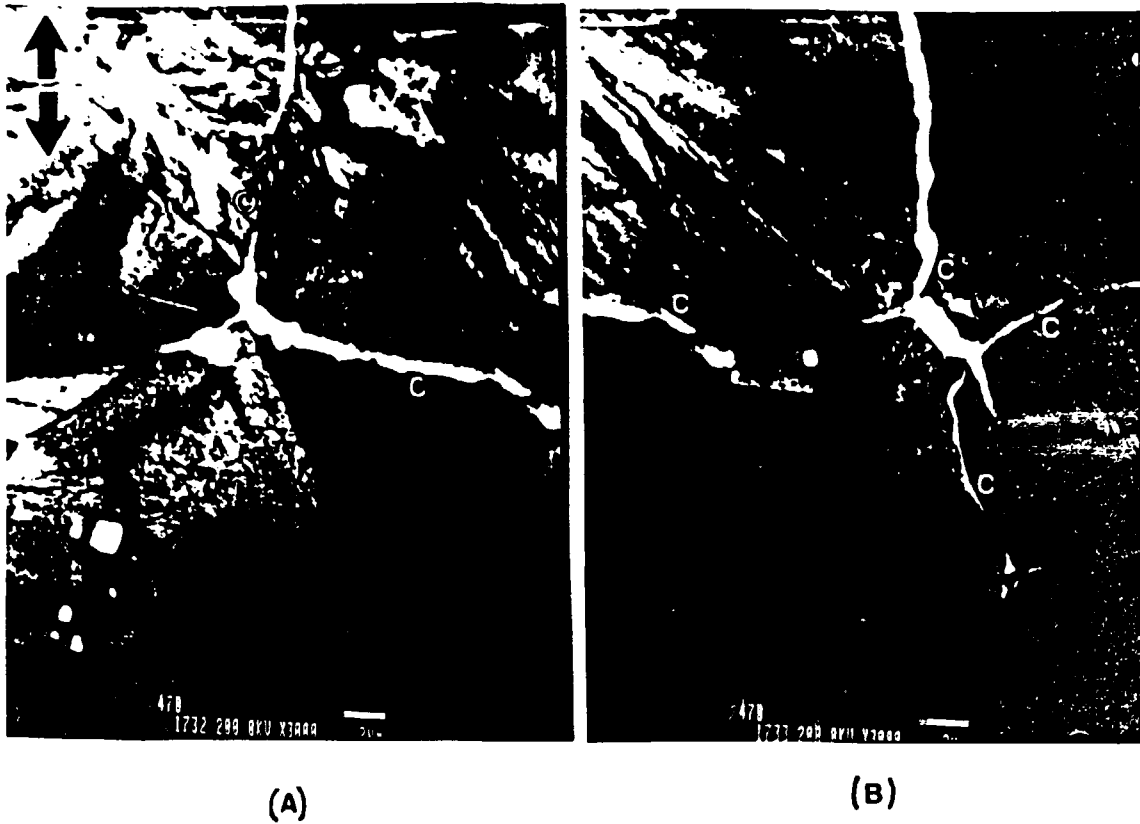


Figura 84: (A) MET aço 347, 76 ppm de He, submetido a "creep" 750°C, com tempo de ruptura de 0,4 horas, mostrando presença de bolhas de hélio em contorno de grão induzindo fratura intergranular, caracterizando a fragilização. As setas mostram o sentido da tensão aplicada. (B) MET de outra região da mesma amostra, novamente caracterizando fratura frágil.

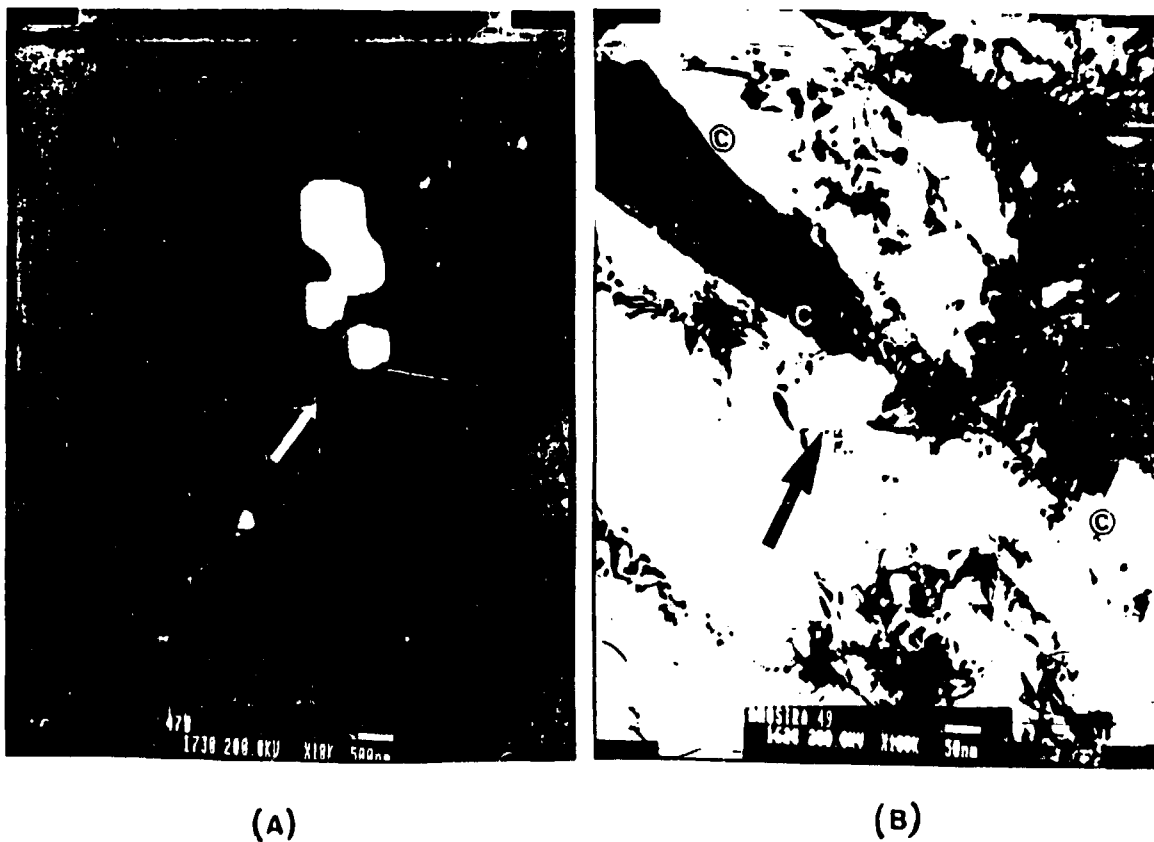


Figura 85: (A) MET de outra região da mesma amostra da figura anterior, mostrando processo de crescimento de bolhas de hélio localizadas na região diagonal (seta), que é perpendicular ao sentido de tração. (B) MET do aço 317, 65 ppm de He não tensionado mostrando crescimento de bolha (seta), junto a um grande precipitado (parte escura), ligado ao contorno de grão (C).

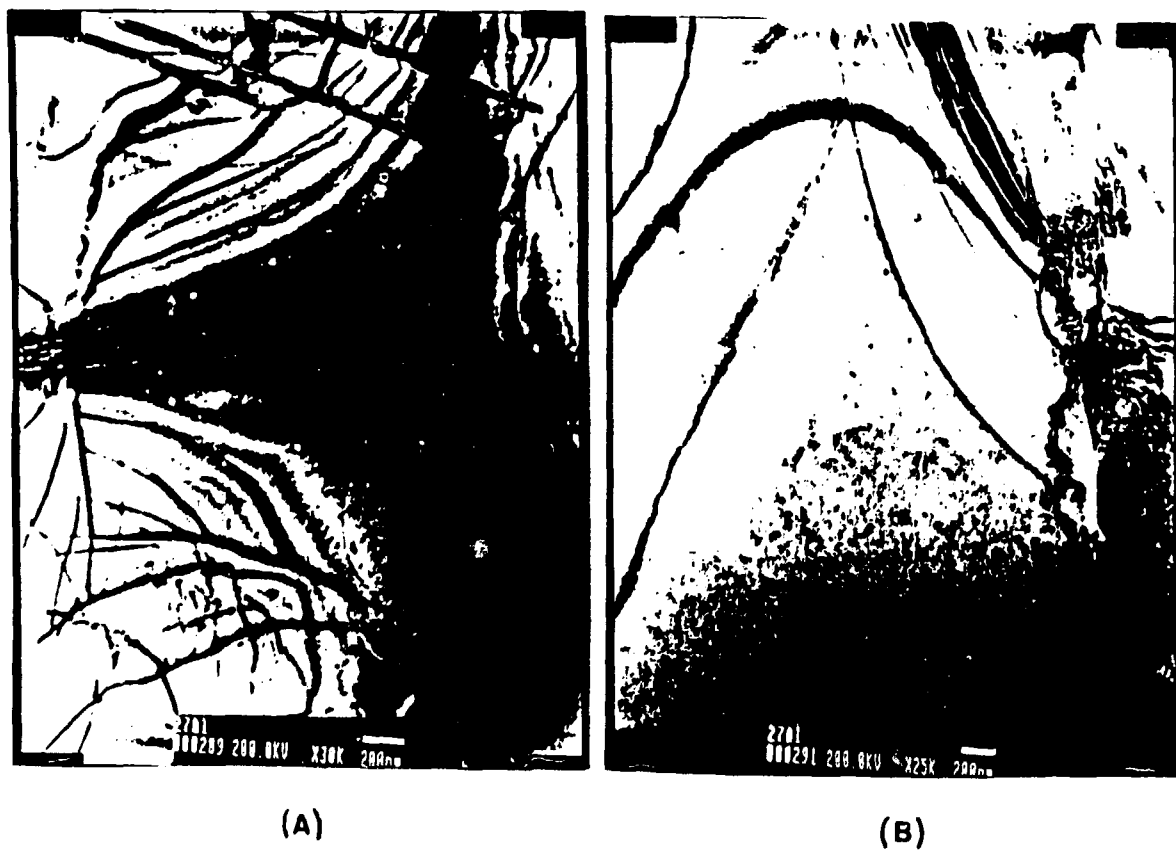


Figura 86:(A) Estrutura complexa de discordância em aço 316, com 70 ppm de He, não tensionado recozido a 1000°C 10 minutos, com presença de bolhas de hélio (círculos claros) e pequenos precipitados (círculos escuros). (B) Mesma amostra, recozida a 1000°C por 19,4 horas apresentando crescimento de bolhas e diminuição da densidade de discordância.

Capítulo 5

Conclusões

Foi desenvolvida no Laboratório de Física do IEN a infra-estrutura necessária para estudos de danos por irradiação através da técnica de simulação com o ciclotron CV-28/IEN. A técnica foi usada no estudo da influência da radiação em aços AISI 316 e 347. Com a utilização de dispositivos especiais, foram obtidas implantações homogêneas de hélio, de modo representativo para fins de simulação dos efeitos da irradiação neutrônica (seção (4.2)). Os cálculos da seção (4.1) mostraram também, que estes dispositivos proporcionaram a homogeneidade na produção de deslocamentos durante a implantação de He, simulando de modo econômico, rápido e muito próximo, as condições a que estão sujeitos os materiais de reatores.

A técnica de aniquilação de pósitrons foi empregada para o cálculo da energia de ativação de processos que ocorrem após a implantação de hélio. Os resultados mostraram que os pósitrons são sensíveis à evolução do hélio com a temperatura, ressaltando a importância da interação hélio-vacância na formação de bolhas, responsáveis pelo “*swelling*” e *fragilização*. A aglomeração do hélio foi detectada após tratamento térmico com temperaturas acima de 650 °C, ou seja, antes que pudessem ser observadas por microscopia eletrônica de transmissão.

Dos valores obtidos para E_a , acima de 650 °C ($0,34 \pm 0,03$ para o aço 316 e $0,57 \pm 0,05$ para o 347 (seção (4.3.3)) e de acordo com resultados obtidos por Gaber^[58], ficou caracterizado o mecanismo *dissociativo* para migração de hélio ligado à vacância.

O comportamento do raio médio das bolhas em função do tempo de recozimento, através da derivada logarítmica^[78,153] ($\frac{\partial \ln(\langle r \rangle)}{\partial \ln(t)}$), figura (77), indica o mecanismo de “Ostwald ripening” (OR)^[73] para o crescimento das bolhas de hélio. Embora Schroeder, Fichtner e Trinkaus^[153] tenham mostrado que o valor desta derivada entre 1/2 e 1/3 não é suficiente para distinguir o tipo de mecanismo, os resultados obtidos pela técnica de aniquilação de pósitrons, que apresentam uma *perda* de sensibilidade às bolhas com o aumento do raio médio, e com a diminuição da densidade de bolhas menores, sugere também que o mecanismo de crescimento dominante, nas condições estudadas, é o OR.

Esta *perda* de sensibilidade dos pósitrons foi relacionada apenas com a componente principal do tempo de vida de pósitron. A segunda componente do tempo de vida de pósitron ficou mais evidente após tratamentos térmicos. Os resultados mostraram um comportamento crescente com a temperatura e o tempo de recozimento, e por conseguinte com o tamanho das bolhas de hélio, sugerindo duas possibilidades:

- amorfização provocada por fenômenos do tipo “spike”, ou mais provavelmente
- formação de *positrônio* dentro de aglomerados e/ou bolhas de hélio coalescidas.

Estas hipóteses associadas às conclusões obtidas a respeito dos mecanismos de migração e crescimento, mostram a viabilidade do estudo da evolução de bolhas, e outros efeitos do hélio na rede cristalina, pela técnica de aniquilação de pósitron com a vantagem de ser não destrutiva.

Para a determinação da variação da concentração de hélio implantado, sem um posterior tratamento térmico, os pósitrons mostraram-se pouco sensíveis às concentrações menores que 10 *ppma* de *He*. Acima desta concentração, foi observada uma relação crescente com a dose, na faixa estudada (até 300 *ppma*) (figuras (56) e (57)), mostrando também que a segunda componente do tempo de vida de pósitron não varia significativamente com a concentração de hélio, em amostras de aço sem tratamento térmico.

Pelo método de alargamento “Doppler”, foi possível verificar uma relação crescente do parâmetro *S* com a concentração de hélio implantado, e de acordo com conteúdo das seções (3.2.2) e (3.2.3), este comportamento é coerente com os resultados de tempo de vida de pósitron.

Os testes destrutivos de tração e “creep” mostraram a perda progressiva de ductilidade para os dois tipos de aço. Para temperatura de 750°C , foi observada a fragilização mais acentuada do aço 347 nas concentrações de hélio estudadas. Ainda com o teste de “creep” a 750°C do aço 347, foi obtida uma relação entre o tempo de ruptura T_r , a tensão aplicada σ , e a concentração de hélio implantada C_{He} (equação (193)).

A micromorfologia de fratura, analisadas por (MEV), comprova os resultados obtidos por “creep”. Nas micrografias de amostras com 20 e 120 *ppma* de He , há uma clara evidência de fratura frágil para amostra com maior concentração (figura (80)).

A análise microestrutural por MET, em amostras implantadas e não implantadas mostrou substancial diferença na estrutura dos grãos e na densidade de discordâncias (figuras (85) e (86)). Para amostras implantadas e submetidas a testes de “creep”, foi possível observar a influência da presença de bolhas de hélio em contornos de grãos, provocando fratura frágil (figura (84)).

Considerando as diferenças de resultados entre os aços 316 e 347, e a diferença de composição, pode-se supor que a presença dos elementos C e Mo , em menor proporção no aço 347, formando precipitados em diferentes proporções e tamanhos^[154], é responsável pela diferença na evolução das bolhas de hélio, na rede, com conseqüente alteração da ductilidade (figuras (80) a (86)).

A seqüência deste trabalho será o estudo aprofundado da evolução do hélio nestes materiais, em semicondutores e supercondutores de alta temperatura crítica, onde as técnicas aqui descritas já foram utilizadas com sucesso^[155,156,157], assim como estudo da influência combinada^[158] da presença de *hidrogênio e hélio* em aços, aplicando os mesmos testes, e outros complementares como, RBS, ERDA^[159] e análise com detectores de traço^[160], para as amostras com diferentes concentrações de hélio e hidrogênio implantado, simulando as diversas condições de aplicação destes materiais, na área nuclear e industrial.

Bibliografia

- [1] Kern R. F. and Suess M. E., "Steel Selection - A Guide for Improving Performance and Profits", *Ed. J. Wiley*, NY, (1979).
- [2] Cooper H. G., Marx J. W. and Handerson J. W., "Radiation Damage and Recovery in *Cu*, *Ag*, *Au*, *Ni* and *Ta*", *Phys. Rev.*, 88: p. 106, (1952).
- [3] Fulton E. J. and Cawthorne C., "Voids in Irradiated Stainless Steel", *Nature*, 216: p. 575, (1967).
- [4] Mazey D. J., Nelson R. S. and Hudson J. A., "The Use of Ion Accelerators to Simulate Fast Neutron-Induced Voidage in Metals", *J. Nucl. Mater.*, 37: pp. 1-12, (1978).
- [5] Doran D.G., Kulcinski G. L. and Abdon M. A., "Properties of Reactor Structural Alloys after Neutron or Particle Irradiation", *ASTM STP*, 570: p. 329, (1975).
- [6] Keefer D. W., Pard A. C. and Kramer D., "Swelling as a Function of Displacement Damage in Proton-Irradiated 316 Stainless Steel", *J. Nucl. Mater.*, 45: p. 55, (1973).
- [7] Laidler J. J. and Mastel B., "Radiation Damage Studies with HVEM", *Proc. Electron Mic. Soc. of America*: pp. 680-681, (1972).
- [8] Meechan C. J. and Brinkman J. A., "Electrical Resistivity Study of Lattice Defects Introduced in Copper by 1.25 MeV Electron Irradiation at 80 K", *Phys. Rev.*, 103, 5: p. 1193, (1956).

- [9] Schroeder H., "High Temperature Embrittlement of Metals by Helium", *Radiat. Eff.*, 78: pp. 297-314, (1983).
- [10] Santos G. R. Abreu A. S. e Gonçalves Z. C., "Determinação das Propriedades Mecânicas de Tração de Aço Inox AISI 316 Implantados com Diferentes Concentrações de Hélio", *Rel. Téc. Anual IEN*: 4.1.3.3 p. 51, (1986).
- [11] Chu C. W., Hor P. H., Meng R. L., Gao L., Huang Z. J., Wang Y. Q., Bechtold J., Campbell M., Wu M. K., Ashburn J., and Huang C. Y., *Phys. Rev. Lett.* 58 (1987) p. 405.
- [12] Hasigut R. R., "Radiation in Metallic Materials", *Transactions of the Japan Institute of Metals*, 22(12): pp. 831-840, (1981).
- [13] Clark D. R., "Recent High- T_c Superconductivity Research at IBM Thomas J. Watson Research Center", *Int. J. Mod. Phys. B* Vol. 1, N° 2 (1987) p. 169.
- [14] Maish W. G., Summers G. P., Campbell A. B., Dale C. J., Ritter J. C., Knudson A. R., Elam W. T., Herman H., Kirkland J. P., Neiser R. A., Osofsky M. S., *IEEE Transaction on Nuclear Science* Vol.NS-34, N°6 dec. (1987) p. 1782.
- [15] Wlapham A. D., Makin M. J. and Mintor F. J., *Phil. Mag.*, 7: p. 285, (1962).
- [16] Reed D. J., "A Review of Recent Theoretical Developments in the Understanding of Migration of Helium in Metals and its Interaction with Lattice Defects", *Radiat. Eff.*, 31: pp. 129-147, (1977).
- [17] Bond G. M. and Mazey D. J., "Helium-Bubble Formation and Void Swelling in Nimonic PE16 Alloy Under Dual-Ion He^+ , Ni^+ Irradiation", *Nuclear Instruments and Methods*, 209 & 210: pp. 381-386, (1983).
- [18] Cottrell A. H., *Dislocation and Plastic Flow in Crystals*. Volume 1, Oxford Ed., (1952).
- [19] Torrens I. M. and Robinson M. T., "Computer Simulation of Atomic Displacement Cascades in Metals", *U.S. AEC conf. 710601*: pp. 735-754, (1972).

- [20] Wedepohl P. T., "The Atomic Interaction Potential", *Radiat. Eff.*, 1: pp. 77-83, (1969).
- [21] Thompson. M. W., Nelson R. S. and Montgomery H., *Phil. Mag.*, 7: pp. 1385, (1962).
- [22] Leibfried G., *J. Appl. Phys.*, 30: p. 1388, (1959).
- [23] Bajaj R., Wechsler M. S., Alexander D.G. and Carlson O. N., "Defects and Defect Clusters in bcc Metals and their Alloys, Nuclear Metallurgy", *National Bureau of Standards, Gaithersburg, MD USA.*, 18: p. 127, (1973).
- [24] Brinkman R. A., *Radiation Damage nei Solidi*, Società Italiana Di Fisica, XVIII Corso, Academic Press, (1962)
- [25] Iwata T., Takamura S., Maeta H. and Argura T., "Displacement Cross Section in Neutron-Irradiated Metals", *Meeting on Nuclear Data for Radiation Damage Assessment and Reactor Safety Aspects.*, Vienna, (1981).
- [26] Symon K. R., *Mechanics*, cap. 4, p. 189, Addison-Wesley Inc., (1960).
- [27] Sandes J. B., *PhD Thesis, University of Leiden*, (1967).
- [28] Nelson R. S., "Recommended Iron Atomic Displacement Cross Sections and Displacement Rates for Use in Fast Reactors", *TRG report (2152 d)*, (1972).
- [29] Gasiorowicz S., *Quantum Physics*. John Wiley and Sons, Inc., p. 379 (1974).
- [30] Lindhard J. and Scharff M., "Energy Dissipation by Ions in the keV Region", *Phys. Rev.*, 124: p. 128, (1961).
- [31] Lindhard J., Scharff M. and Schiott H. E., "Range Concepts and Heavy Ions Ranges", *Kgl. Dan. Vidensk. Selsk., Mat.-Fys. Medd.*, Vol. 33, N. 14 (1963).
- [32] Nelson R. S. "The Observation of Atomic Collision in Crystalline Solids" *North Holland Publishing Company, Amsterdam* (1968)

- [33] Gasiorowicz S., *Quantum Physics*. John Wiley and Sons, Inc., p. 350 (1974).
- [34] Billington D. S. and Crawford J. H., *Radiation Damage in Solids*. Princeton University Press, (1961).
- [35] Dienes G. J. and Vineyard G. H., *Energy Series V Metallurgy and Fuels*. Volume 1, Editors Finniston and Howe, (1956).
- [36] Huntington H. B., "Creation of Displacements in Radiation Damage", *Phys. Rev.*, 93: p. 1414, (1954).
- [37] B.T. Kelly., *Irradiation Damage to solids*. Pergamon Press, Inc., N. Y., (1966).
- [38] Kinchin G. H. and Pease R. S., "The Displacements of Atoms in Solids by Radiation", *Rept. Prog. in Physics*, 18: p. 1, (1955).
- [39] Hughes A. E., "La Aniquilacion de Positrones en el Examen de Materiales", *Energia nuclear España*, 25: p. 132, (1981).
- [40] Harries D. R., "Neutron Irradiation-Induced Embrittlement in Type 316 and Other Austenitic Steels and Alloys", *J. Nucl. Mater.*, 82: pp. 2-21, (1979).
- [41] Marwick A. D., "The Primary Recoil Spectrum in the Simulation of Fast Reactor Radiation Damage by Charged Particle Bombardment", *J. Nucl. Mater.*, 55: pp. 259-266, (1975).
- [42] Doran D. G., "Displacement Cross Sections for Stainless Steels and Tantalum Based on a Lindhard Model", *USAEC Rep. HEDL - TME 71-42 WADCO Corp.* Hanford Eng. Lab. (1971).
- [43] Eisberg R. and Resnick R., *Quantum Physics of Atoms, Molecules, Nuclei, and Particles*, John Wiley and Sons, Inc., chap. 4 : p. 99, (1974).
- [44] Johnston W. G. and J. H. Rosolowisk., "Ion Beam in the Study of Void Formation", *Inst. Phys. Conf.*: p. 435, (1976).

- [45] Johnson W. S. and Gibbons J. F. "Projected Range Statistics in Semiconductors", *dist. by Stanford University*, (1969).
- [46] Brinkman J. A., *J. Appl. Phys.*, 25: p. 961, (1954).
- [47] Mayer R. M., Brown L. M. and Gösele U., "Nucleation and Growth of Voids by Radiation", *J. Nucl. Mater.*, 95: pp. 44-45, (1980).
- [48] Ullmaier H., "Helium in Metals (Introductory Remarks)", *Radiat. Eff.*, 781: pp. 1-10, (1983).
- [49] Seitz F. and Harrison W. A., "Source of Disordering of Alloys during Irradiation", *Phys. Rev.*, 98: p. 1530, (1955).
- [50] Blewitt T. H., Thompson D. O. and Holmes D. K., *J. Appl. Phys.*, 28: p. 742, (1956).
- [51] Seeger A., *Radiation Damage in Solids Reactor Materials*, 1: p. 101, IAEA Vienna, (1962).
- [52] Titchmarch A., Williams T. M. and Arkel D. R., "Void-Swelling and Precipitation in a Neutron Irradiated Niobium-Stabilized Austenitic Stainless Steel", *J. Nucl. Mater.*, 107: pp. 222-244, (1962).
- [53] Weertman J. and Parking D. N., "Suppression of Irradiation Swelling Through and Impurity-Point Defect Trapping Mechanism Involving Reduction of the Dislocation Bias Factor", *J. Nucl. Mater.*, 99: pp. 66-74, (1981).
- [54] Foreman A. J. E. and Singh B. N., "Helium Flux to Grain Boundaries", *J. Nucl. Mater.*, 149: pp. 266-268, (1987).
- [55] Lucki G. e Sciani V., "Efeitos da Irradiação na Formação de Gases em Metais e Ligas", *Publicação IPEN ISSN 0101-3084*, (1988).
- [56] Schilling W., "Diffusion of Helium in Metals", *Yamada conf. V on "Point Defects and Defect Interact Ions in Metals"*: pp. 303-308, (1981).

- [57] Wilson W. D., Bisson C. L. and Baskes A., "Trapping of Helium in Metals", *Phys. Rev.*, B24: pp. 5616-5624, (1981).
- [58] Gaber A., "Investigation of Copper and Nickel After High Energy Implantation of Helium Atoms", *Jülich rept. Jül. 160 ISSN 0366-0885*, (1983).
- [59] Jung P., "Diffusion and Clustering of Helium in Noble Metals", *Fundamental Aspects of Inert Gases in Solids* Edited by Donnelly S.E and Evans J. H., Plenum Press, NY, p. 59, (1981).
- [60] Schroeder H., Rothaut J. and Ullmaier H., "The Growth of Helium in Stainless Steel at High Temperature", *Phil. Mag. A*, 47: pp. 781-795, (1983).
- [61] Schilling W., "Diffusion of Helium in Metals", *Yamada conf. V on "Point Defects and Defect Interactions in Metals"*: pp. 303-308, (1981).
- [62] Maier K., Peo M., Saile B., Schaefer E. and Seeger A., "High-Temperature Annihilation and Vacancy Formation in Refractory Metals", *Phil. Mag.*, 40, 5: pp. 701-728, (1979).
- [63] Philipps V. and Sonnenberg S., "Interstitial Diffusion of Helium in Nickel", *J. Nucl. Mater.*, 114: pp. 95-97, (1983).
- [64] Sciani V., "Estudo da Difusão do Hélio, Implantado em Cíclotron, nos Metais de Estrutura Cúbica de Face Centrada: Au, Ag e Al", *Tese de Doutorado IPEN/CNEN*, (1985).
- [65] Lewis M. B. and Farrell K., "Migration Behavior of Helium under Displacive Irradiation in Stainless Steel, Nickel Iron and Zirconium", *Nuc. inst. Meth. in Phys. Research*, B16: pp. 163-170, (1986).
- [66] Stamm U. and Schroeder H., "The Influence of Helium on the High Temperature Mechanical Properties of DIN 1.4914 Martensitic Steel", *J. Nucl. Mater.*, 155-157: pp. 1059-1063, (1988).

- [67] Foreman A. J. E. and Singh B. N., "Gas Diffusion and Temperature Dependence of Bubble Nucleation during Irradiation", *J. Nucl. Mater.*, 141: pp. 672-676, (1986).
- [68] Luklinskoy Z. H., von Bradsky G. and Goodhew P. J., *J. Nucl. Mater.* 135: p. 206, (1985).
- [69] Fichtner P. F. P., Schroeder H. and Trinkaus H., "A Simulation Study of Ostwald Ripening of Gas Bubble in Metals Accounting for Real Gas Behaviour", *Acta Metall. Mater.*, 39 N°8: pp. 1845-1852, (1991).
- [70] Fichtner P. F. P., Schroeder H. and Trinkaus H., "Influence of Real Gas Behaviour on the Ostwald Ripening of Inert Gas Bubbles in Bulk Materials", *Fundamental Aspects of Inert Gases in Solids* Edited by Donnelly S. E. and Evans J. H., Plenum Press, NY.: pp. 299-306, (1991).
- [71] Nichols F. A., "Radiation Damage in Non-Fissile Metallic Alloys", *Progress in Nuclear Energy*, 7: pp. 11-45, (1981).
- [72] Olander D. R., "Interaction of Stresses with Inclusions in Solids - a Review", *J. Nucl. Mater.*, 92: pp. 163-183, (1980).
- [73] Schroeder H. and Fichtner P. F. P., "On the Coarsening Mechanisms of Helium Bubbles - Ostwald Ripening versus Migration and Coalescence", *J. Nucl. Mater.*, 179-181: pp. 1007-1010, (1991).
- [74] Markworth A. J., "On the Coarsening of Gas-Filled Pores in Solids", *Met. Trans.* 4: p. 2651, (1973).
- [75] Greenwood G. W. and Boltax. A., "The role of Gas Re-Solution during Post-Irradiated Heat Treatment", *J. Nucl. Mater.*, 5: p. 234, (1972).
- [76] Segura E. e Lucki G., "Comportamento em Fluência em Aço Inoxidável Tipo AISI 316 Irradiado com Partículas Alfas de 28 MeV", *I CGEN*, (1986).
- [77] Trinkaus H., "Modeling of Helium Effects in Metals: High Temperature Embrittlement", *J. Nucl. Mater.*, 133, 134: pp. 105-112, (1985).

- [78] Ullmaier H., "Helium in Fusion Materials: High Temperature Embrittlement", *J. Nucl. Mater.*, 133 & 134: pp. 100-104, (1985).
- [79] Das D., Mukhopadhyay D., Saha M. and Seu P., "Defect Studied in Alpha-Irradiated Cobalt by Positron Annihilation", *Rad. Eff. Express* 1: pp. 89-93, (1987).
- [80] Triftshäuser W., Viswanathan B. and Koegel G., "Investigation of Helium and Deuteron Irradiated Stainless Steel (and Nickel) by Positron Annihilation", *Radiat. Eff.*, 78: pp. 237-243, (1983).
- [81] Laidler J. J., Garner F. A. and Thomas L. E., "Simulation Experiments with High Voltage Electron Microscope", *Radiation Damage in Metals, American Soc. for Metals*: pp. 194-226, (1976).
- [82] Frost B. R. T., "Radiation Damage in Fast-Breeder and Fusion Reactors", *Argonne Publication*: 32, (1974).
- [83] Santos G. R. Abreu A. S. e Gonçalves Z. C. "Sistema de Transporte de Feixe para Estudo de Danos por Irradiação", *Rel. Téc. Anual do IEN*: 4.6.2. p. 91, (1985).
- [84] Giroux J., Thomas J. P., Tran M. D. and Tousset J. "Influence of Energy Distribution in Charged Particle Activation Analysis", *Uses of Cyclotron in Chemistry Metallurgy and Biology*: Ed. Amphlett C. B., London pp. 319-327, (1970).
- [85] Krasnov N. N. et al., "Experimental data on the Yields of Isotopes Used for the Detection of C, N, F and Neighbouring Elements by Activation Analysis with Charged Particles", *Uses of Cyclotron in Chemistry Metallurgy and Biology*: Ed. Amphlett C. B., London pp. 341-353, (1970).
- [86] da Silva A. G., Auler L. T., "Possíveis Aplicações do Cíclotron do IEN" *Publicação IEN*, 1, (1972)
- [87] Schatz G., "Industrial and Environmental Application of Cyclotrons", *Jül. Publication*, (1972).

- [88] Harkness S. D., Yaggee F. L. and Nolfi F. V. "Simulation of in-Reactor Creep of Type 304 Stainless Steel". *ANL publication 38*, Argonne National Laboratory, IL., (1977).
- [89] King R. T., "The Uses of Cyclotrons in Chemistry, Metallurgy and Biology", *Proceedings of a Conference held at St. Catherine's College, Oxford*: pp. 294-315, (1969).
- [90] Nelson R. S., "Application of Cyclotron in Materials Science", *Metallurgy Division, AERE, Harwell, Berks.*: p. 273, (1972).
- [91] Abreu A. S., Santos G. R., Gonçalves Z. C., Martha Z. C., Marques L. A., "Aperfeiçoamento do Sistema de Transporte de Feixe para Estudo de Danos por Irradiação", *Rel. Tec. Anual IEN*: 4.1.3.1, p. 78,(1985).
- [92] Sagüés A. A., Kesternich W., Schroeder H. and Ullmaier H., "The Influence of Helium on the High Temperature Mechanical Properties of a Austenitic Stainless Steel", *J. Nucl. Mater.*, 78: pp. 289-298, (1978).
- [93] Abreu A. S., Santos G. R., Gonçalves Z. C., Martha Z. C., Marques L. A., "Preparo de Amostras Finas para Estudo de Danos por Irradiação", *Rel. Tec. Anual IEN*: 4.1, p. 43,(1985).
- [94] Abreu A. S., Santos G. R., Gonçalves Z. C., Martha Z. C. e Marques L. V. "Padronização de Amostras de Aço Inox para Estudo de Danos por Irradiação", *Rel. téc. Anual do IEN*: 4.1.3: p. 63, (1986).
- [95] Schaffer J. P., Jones P. L. and Cocks F. H., "A Comparison of the Doppler-Broadened Positron Annihilation Spectra of Neutron Irradiated Al_2O_3 $MgAl_2O_4$ ". *J. Nucl. Mater.*, 133: p. 221, (1985).
- [96] Lindberg V. W. and Mc. Gervy J. D., *Phil. Mag.*, 36: p. 117, (1977).
- [97] Madanski L. and Rasetti F., "An Attempt to Thermal Energy Positrons", *Phys. Rev. Lett.*, 1: p. 397, (1950).

- [98] West R. N., "Positrons in Solids", *Advances in Physics*: p. 1, (1980).
- [99] Seeger A., "The Study of Defects in Crystals by Positron Annihilation", *Appl. Phys.*, 4: pp. 183-199, (1974).
- [100] Hansen H. E., Rajainmäki H., Talja R., Bentzon M. D., Nieminen R. M. and Petersen K., "Helium Bubbles in Alpha-Irradiated Aluminium: Positron Lifetime Studies", *J. Phys. F. Met. Phys.*, 15: pp. 1-10, (1985).
- [101] Berko S. and Erskine J. C., "Angular Distribution of Radiation from Plastically Deformed Aluminum", *Phys. Rev. Lett.*, 19, 6: p. 123, (1967).
- [102] Peter J. S., Vehamen A., Thomilson W., Lynn K. G. and MacKenzie I. K., "Positron Annihilation in Al Single Crystals from 85 mK to 300 K", *J. Phys. F: Metal Phys.*, 13: pp. L265-L268, (1983).
- [103] Cheng L. J. and Sen P., "Correlation Between Swelling and Annihilation Lineshape Parameter in Neutron-Irradiated Molybdenum", *Physics Letters*, 53A, 5: p. 328, (1975).
- [104] Stewart A. T. and Roellig L. O., "Positron Annihilation", *Proc. of Conference at Wayne State Univ.*, Academic Press, (1967).
- [105] Dekhtyar Y. I., "The Use of Positrons for the Study of Solids", *Phys. Lett. C*: Vol. 9C, N. 5, (1974)
- [106] Santos G. R. e Gonçalves Z. C., "Otimização do espectrômetro de tempo Utilizando Na^{22} ", *Rel. Téc. Anual IEN*: 4.1.3 p. 39, (1987).
- [107] Santos G. R. e Gonçalves Z. C., "Produção de Fonte de Pósitrons para Estudo de Danos por Irradiação", *Rel. Téc. Anual IEN*: 4.13, p. 61, (1984).
- [108] Santos G. R. e Gonçalves Z. C., "Espectrometria de Tempo para medida de para Estudos de Danos por Irradiação", *Rel. Téc. Anual IEN*: 4.6.3, (1984).

- [109] de Britto J. L. Q., Bastos M. A. V., da Silva R. F. e da Silva A. G., "Production of no Carrier Added Residue Free ^{22}Na ", *J. Radioanal. Chem., Letters*, 127, 1: pp. 31-36, (1988).
- [110] Kirkegaard P. and Eldrup M., "Positronfit: A Versatile Program for Analyzing Positron Lifetime Spectra", *Computer Physics Communication*: pp. 240-255, (1972).
- [111] Santos G. R. e Gonçalves Z. C., "Espectrometria Gama e Espectrometria de Tempo de amostras de aço inox AISI 316 Implantadas com Hélio", *Rel. Téc. Anual IEN*: 4.1.3.1 p. 43, (1986).
- [112] Barton P. J., "Some Observation on the Structure and Tensile Properties of AISI Type 316 Stainless Steel as a Function of Fluency at Reactor Irradiation Temperature", *AERE-R6435*, (1970).
- [113] Hayns M. R., Gallagher, J., and Bullough R., "The Derivation of a Simple Void-Swelling Equation for Cold-Worked 315 Austenitic Steel", *J. Nucl. Mater.*, 78: pp. 236-253, (1978).
- [114] Bullough R. and Hayns M. R., "The Temperature Dependence of Irradiation Creep", *J. Nucl. Mater.*, 65: pp. 184-191, (1977).
- [115] Corrêa D. A. C., "Estudo de Fluência do Aço AISI 316 Irradiado com Nêutrons Rápidos e Partículas Alfa", *Tese de Mestrado IPEN/CNEN*, (1985).
- [116] Andrade E. N. da C., *Nature*, 156: p. 113, (1945).
- [117] Thomas L. E. and Beeston J. N., "The Microestruture of Neutron Irradiated Type 348 Stainless Steel and its Relation to Creep and Hardening", *J. Nucl. Mater.*, 107: pp. 159-167, (1982).
- [118] Andrade E. N. da C., "Modern Physics Metallurgy", Butterworths, London: p. 353, (1976).
- [119] Wyatt J. "Modern Physics Metallurgy", Butterworths, London: p. 355, (1976).

- [120] Dorn A. "Modern Physics Metallurgy", Butterworths, London: p. 357, (1976).
- [121] Hansen H. E., Nielsen B. and Petersen K., "Annealing of High Energy Nitrogen and Oxygen Radiation Damage in Molybdenum Studied by Positrons", *Radiat. Eff.*, 77: pp. 1-10, (1983).
- [122] Titchmarsh J. M., Williams T. M. and Arkell D. R., "Void-Swelling and Precipitation in a Neutron-Irradiated Niobium - Stabilized Austenitic Stainless Steel", *J. Nucl. Mater.*, 107: pp. 222-244, (1982).
- [123] Rothaut J., Schroeder H. and Ullmaier H., "The Growth of Helium Bubbles in Stainless Steel at High Temperature", *Phil. Mag. A*, 47 5: pp. 781-795, (1983).
- [124] Garofalo F., *Fundamentals of Creep and Creep-Rupture in Metals*. Macmillan, NY., (1965).
- [125] Santos G. R. e Gonçalves Z. C., "Resultados preliminares de Teste de "Creep" em Amostras de Aço AISI 316 e 347 Implantadas com Hélio", *XII RTFNB.*, Caxambú - MG, set. (1990).
- [126] Santos G. R. e Gonçalves Z. C., "Teste de Fluência em Aço AISI 347 Implantado com Hélio", *XIV RTFNB*, Lindoya -SP, set. (1991).
- [127] Santos G. R. Abreu A. S. e Gonçalves Z. C., "Estudo da Fragilização do Aço Inoxidável AISI 316 Implantado com Hélio", *Anais do XII Colóquio da Sociedade Brasileira de Microscopia Eletrônica* p. 251, Caxambú - MG set. (1988).
- [128] Santos G. R. Abreu A. S. e Gonçalves Z. C., "Análise por Microscopia Eletrônica de Transmissão de Amostras de Aço Implantadas com Hélio", *Anais do XI Colóquio da Sociedade Brasileira de Microscopia Eletrônica* p. 249, Caxambú - MG set. (1987).
- [129] Templier C., "Inert Gas Bubble in Metals: A Review *Fundamental Aspects of Inert Gases in Solids*, Ed. Donnelly S. E., and Evans J. H., Plenum Press, NY, pp. 117-132, 1991.

- [130] Abreu A. S., Santos G. R. e Gonçalves Z. C., "Preparo de Amostras de Aço para Microscopia Eletrônica de Transmissão" *Rel. Tec. Anual do IEN*: 4.1.3.2, (1985)
- [131] Fink J. "Advances in Electronics and Electron Physics". 75: p. 121, 1989.
- [132] Ziegler J. F., Biersack J. P. and Littmark U., "The Stopping and Range of Ions in Solids", Ziegler J. F., Pergamon Press, (1985).
- [133] Ullmaier H., "Proc. Symp. on Fundamental Aspects of Helium in Metals", *Radiat. Eff.*, 78: p. 1426, (1983).
- [134] Brimhall D. and Charlot L. A., "Effect of Helium on Void Swelling in Molybdenum", *J. Nucl. Mater.*, 99: pp. 16-24, (1981).
- [135] Santos G. R., "Desenvolvimento de *Software* para Estudo de Danos por Irradiação", a ser publicado, (1993).
- [136] Santos G. R. e Gonçalves Z. C., "Resultados Preliminares de Medida de Tempo de Vida de Pósitron para Estudos de Danos por Irradiação", *Rel. Téc. Anual IEN*: 4.6.4, (1984).
- [137] Ache H. J., "Exotische Atome: Die Chemie des Positroniums", *KfK-Nachr. Jahrg.* 13, 4: pp. 168-175, (1989).
- [138] Lesieck H. "Spekt Spektrum Analyse Program", *PTB publication*, 18, (1984).
- [139] Santos G. R. e Gonçalves Z. C., "Montagem de um Espectrômetro de Tempo para Medida de Tempo de Vida de Pósitron Para Estudo de Danos por Irradiação", *I CGEN, R. J.*, p. 101, (1986).
- [140] Santos G. R. Abreu A. S. e Gonçalves Z. C., "Medida de Tempo de Vida de Pósitron em Amostras de Aço Implantadas com Hélio", *Rel. Téc. Anual IEN*: 4.1.3.3, p. 72, (1985).
- [141] Belaidi A., *Conf. Positron Annihilation and Phase Transformation in Alloys, Norwich U. K.*, (1980).

- [142] Soares M. "Analisador Multicanal IEN11011". *Rel. Téc. Anual IEN*: 5.3 p. 41, (1985).
- [143] Dorikens - Vampraet, Segers D. and Dorikens M., "The Influence of Geometry on the Resolution of a Positron Annihilation Lifetime Spectrometer", *Appl. Phys.*, 23: pp. 149-152, (1980).
- [144] Kirkegaard P. and Eldrup A. "The Least Squares Fitting Program POSITRONFIT: Principles and Formulas". *Riso-M - 1400*, (1971).
- [145] Santos G. R. e Gonçalves Z. C., "Utilização do Programa PFPOSFIT para Medida de Tempo de Vida de Pósitron em amostras de Aço Implantadas com Hélio", *Rel. Téc. Anual IEN*: 2.16 p. 31, (1988).
- [146] Santos G. R. e Gonçalves Z. C., "Aniquilação de Pósitron para Medida da Energia de Ativação para migração de He em aço AISI 316 irradiado", *XV RTFNB*, Caxambú MG, set. (1992).
- [147] Schroeder H. and Braski D. N., "The Effect of Implanted Helium on the High Temperature Mechanical Properties of a Model Austenitic Fe - 17% Cr - 17% - Ni Alloy", *J. nucl. Mater.*, 115: pp. 297-306, (1983).
- [148] Rowcliff A. F. and Lee E. H., "High Temperature Radiation Damage Phenomena in Complex Alloys", *J. nucl. Mater.*, 108 & 109: pp. 306-318, (1982).
- [149] Fichtner P. F. P., *IF - UFRGS* Comunicação privada, (1993)
- [150] Charlesby A., Hancock N. H., and Sansom H. C. *J. Nucl. Eng.*, 1: p. 264, (1955).
- [151] Santos G. R. Abreu A. S. e Gonçalves Z. C., "Estudos preliminares de Danos por Irradiação em Cobre", *Rel. Téc. Anual IEN*: 4.15, p. 64, (1984).
- [152] Bentley J. "A Review of the Application of Analytical Electron Microscopy to Ion-Implanted Materials". *Nuc. Inst. Meth. in Phys. Research*, B16: pp. 111-125, (1986).

- [153] Schroeder H. and Fichtner P. F. P., "Inert Gas Bubble Coarsening Mechanisms", *Fundamental Aspects of Inert Gases in Solids* Edited by Donnelly S. E. and Evans J. H., Plenum Press, NY.: pp. 289-297, (1991).
- [154] Kesternich W. and Rothaut J., "Reduction of Helium Embrittlement in Stainless Steel by Finely Dispersed TiC Precipitates", *J. Nucl. Mater.* 103-104: pp. 842-852, (1981).
- [155] Santos G. R., Gonçalves Z. C., Barreto J., Silveira M. F., Pereira R. "Charged Particle Damage Studies of $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ", *Journal of Materials Science Letters* 81, p. 669 (1989).
- [156] Santos G. R. Abreu A. S. e Gonçalves Z. C., "Aplicação da Técnica de Aniquilação de Pósitrons no Estudo da Influência da Irradiação em Supercondutores", *Rel. Téc. Anual IEN*: 2.15 p. 29, (1988).
- [157] Santos G. R., Gonçalves Z. C., Barreto J. e Pereira R., "Effects of He^{++} Implantation on Superconductivity of $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ Ceramics", *a ser publicado 1993*.
- [158] Santos G. R., Bott A. H., Miranda P. E. V., Gonçalves Z. C. e Cabral S. C. "Estudo do Efeito do Hidrogênio e Hélio em Metais e Ligas", *Projeto FAPERJ 204*, (1992).
- [159] da Silva A. G., Suita J. C., Bott A. H., de Miranda P. E. V., "Determination of Hydrogen Concentration Profiles in Metals and Metallic Alloys by Elastic Recoil Detection Technics", *European Conf. on Appl. of Surface and Interface Analysis*, Budapeste Hungria out. (1991).
- [160] Charvat J. and Spurny H., "Optimization of Etching Characteristics for Cellulose Nitrate and CR-39 Track Detectors", *Nucl. Track Radiat. Meas.*, 14 (4): pp. 447-449, (1988).
- [161] Voronova I. V., Mihallov N. N., Sotnikov G. V. and Zaikin V. Ju., *J. Nucl. Mater.* 72 p. 129 (1978).

- [162] Chrisey D. B., Summers G. P., Maish W. G., Burke E. A., Elam W. T., Herman H., Kirkland J. P. and Netser R. A., *Appl. Phys. Lett.*, 53 (11), (1988).
- [163] Agura T., Takamura S., Hoshiya T., and Kobiyama M., *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 28, N. 6, june p. 964 (1989).
- [164] Bourgault D., Bouffard S., and Toulemonde M., Groult D., Provost J., Studer F., Nguyen N., and Raveau B., *Phys. Rev. B* vol. 39 N. 10 p. 6549 (1989).
- [165] Mattievich E., et al., *Hyp. Interact.* 42 p. 1254 (1987).
- [166] Pereira R, Meyer E., and Silveira M. F., "Simple Technique for Measuring the Superconducting Critical Temperature of Small Samples", *Rev. Sci. Instrum.* 54 (7), july (1983).
- [167] Schyer D. J., "Program SPARK, (Rangetab)", *Publication BNL*, N° 143 dec. (1985).
- [168] Cava R. J., Batlogg B. et al. *Phys. Rev. Lett.* 58 (16), p. 1676 (1987).
- [169] Barbour J. C., Doyle B. L., and Myers S. M., "Measurement of the Oxygen Content in High T_c Superconductor: Enhanced Resonant Ion-Scattering Analysis". *Phys. Rev. B* Vol. B 10 p. 7005 (1981).
- [170] Batlogg B., Cava R. J., Chen C. H., Kourouklis G., Weber W., Jayaraman A., White A. E., Short K. T., Reitman E. A., Rupp L. W., Werder D., and Zahurak S. M., "Bulk Superconductivity at 60 K in Oxygen Deficient $BaYCuO$ and Oxygen Isotope Effect in $LaSrCuO$ " *A T & T Bell Laboratories*, Murray Hill, NJ 07974 (1988).
- [171] Richert B. A. and Allen R. E., "Theoretical Studies of Oxygen Vacancies in $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ", *Symp. High Temperature Superconductors*, p. 463 Boston, MA 30 nov. - 5 dec. (1987).

Apêndice

Efeito da implantação de íons He^{++} em supercondutores do tipo $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

Foi feito um estudo do comportamento da permeabilidade magnética em função da temperatura de cerâmicas supercondutoras de alta temperatura, $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, implantadas com partículas alfa, no ciclotron CV-28 do IEN.

Através do dispositivo especial (implantador) descrito na seção (3.1.3), foi possível a implantação homogênea de He em amostras de $350 \mu m$, com fluências de 1,2; 2,4; 3,6; 4,8 e $6,0 \times 10^{16} \alpha.cm^{-2}$. Os resultados mostraram uma diminuição da $T_c(onset)$ e $T(offset)$ com o aumento da fluência.

As curvas de permeabilidade magnética apresentaram *corcovas* com formato e posição relativa a $T_c(onset)$ variando com a fluência, sugerindo uma transformação de fase como consequência da concentração de He . O tratamento térmico em atmosfera de oxigênio evidenciou a possibilidade de restaurar as propriedades de supercondutividade, modificadas pela irradiação.

Foi mostrado que, com medidas de tempo de vida de pósitron em função da temperatura é possível determinar a temperatura crítica de transição (T_c) destas cerâmicas.

A.1. Introdução

Na literatura especializada em efeitos da radiação em materiais são encontrados resultados com aparentes contradições em alguns supercondutores:

- Voronova et al^[161], irradiando o supercondutor Nb_3Sn com partículas α obtiveram uma diminuição monotônica de $T_c(onset)$ com o aumento de fluência,
- Chrisey et al^[162], irradiando filmes de $YBaCuO$ com partículas α de 65 MeV e fluências menores que $10^{14}\alpha.cm^{-2}$, mostraram que $T_c(onset)$ não variou com a fluência,
- Maish et al^[14], irradiando $YBaCuO$ com prótons, fluência $10^{14}p.cm^{-2}$, afirmam não ter observado mudança de fase, embora tenham constatado a diminuição de $T_c(onset)$ com aumento da fluência.
- Agura et al^[163], irradiaram o composto do tipo $BiSrCaCuO$ com íons He^{++} de 400 keV e fluência de $1,1 \times 10^{19}\alpha.cm^{-2}$, e não observaram variação da $T_c(onset)$ com a fluência.

O trabalho apresentado neste apêndice utiliza as técnicas descritas nesta tese, aplicadas agora às cerâmicas supercondutoras de alta T_c . Alguns resultados deste estudo (influência da implantação de partículas α) em compostos de $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, também divergem de alguns autores acima citados. Entretanto, está de acordo com outros como por exemplo: Bourgault et al^[164], que investigando os efeitos da radiação em amostras de $YBaCuO$, utilizaram íons Xe de 3,5 GeV com fluências da ordem de $10^{12}\alpha.cm^{-2}$, verificando a diminuição do $T_c(onset)$ com a fluência e, além disso, uma diminuição ainda mais acentuada da $T(offset)$ o que também está de acordo com este trabalho.

A.2. Preparação das Amostras e Caracterização

As amostras foram preparadas a partir dos compostos Y_2O_3 , $Ba(NO_3)_2$ e CuO , usando-se o procedimento convencional^[165]. A mistura na proporção 1:2:3 de Y , Ba , e Cu foi aquecida em cadinho de alumina a seco e fluxo de oxigênio de $5,6 ml.s^{-1}$ a 1223 K

durante 20 horas. Após a prensagem, foram obtidas pastilhas com espessura em torno de $350 \mu\text{m}$ e densidade em torno de $5,8 \text{ g.cm}^{-3}$.

A sinterização foi feita nas mesmas condições da preparação por 18 horas, quando a temperatura foi lentamente reduzida, a taxa de $1,7 \text{ K.min}^{-1}$ até 673 K onde as amostras permanecem por duas horas antes de levadas a temperatura ambiente. Nesta fase do procedimento foi retirada da pastilha, uma amostra denominada 1S, de $\text{massa} = 5,86 \text{ mg}$, e tamanho compatível com as limitações impostas pelas dimensões da sonda^[166] de medida da permeabilidade magnética ($2 \times 1 \times 1 \text{ mm}$).

C : estante da pastilha, foi novamente triturado a seco em gral de ágata, novamente prensado e sinterizado nas mesmas condições anteriores por mais 18 horas, de onde foi retirada uma segunda amostra de $\text{massa} = 8,26 \text{ mg}$ que recebeu a denominação 1DS (duplamente sinterizada).

A.3. Procedimento das Irradiações

As amostras foram *coladas* em porta-alvos de cobre refrigerado a água, com auxílio de índio metálico. O índio foi utilizado para facilitar a dissipação de calor e também como indicador de que a temperatura durante a irradiação não atinge o ponto de fusão deste metal, 429 K . Na verdade a amostra fica moldada no índio quando este se solidifica (ver também seção (3.1.3)).

Em trabalhos anteriores^[155], foram feitas análises por difração de raios X e medidas da permeabilidade magnética em outras amostras da mesma cerâmica, que foram repetidamente *coladas* no e *descoladas* do porta-alvos. Não foi observado alteração nas medidas e tão pouco uma adsorção e/ou absorção de índio que inviabilizasse este procedimento.

As irradiações foram realizadas no ciclotron CV-28 do IEN, de tal forma que um feixe de partículas α , com energia máxima de 28 MeV é degradado periodicamente por um disco girante, onde são dispostas várias folhas de alumínio de diferentes espessuras. Este dispositivo permitiu uma implantação homogênea dos íons em todo o volume irradiado da amostra (ver também seção (4.2)).

O alcance da partícula α com energia de 28 MeV, calculado pelo programa "Rangetab"^[167] para estas cerâmicas, foi de $\simeq 183 \mu\text{m}$. Por isso as amostras ($\simeq 350 \mu\text{m}$ de espessura) foram irradiadas nas duas faces.

A corrente utilizada nas irradiações foi de aproximadamente 500 nA, o que corresponde a um fluxo de $1,64 \times 10^{12} \alpha \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$.

Todas as irradiações tiveram o controle de carga integrada no alvo, de tal modo que as amostras 1S e 1DS receberam fluências correspondentes a: 1.2; 2.4; 3.6; 4.8; e $6.0 \times 10^{16} \alpha \cdot \text{cm}^{-2}$.

Após cada irradiação as amostras foram submetidas a pesagem para controle de perda de material, e medidas de permeabilidade magnética em função da temperatura.

A.4. Resultados

As medidas de permeabilidade magnética em função da temperatura, foram obtidas através de um sistema convencional^[166] de detecção de "zero" ("Lock-in amplifier" 124 PAR), na faixa de temperatura entre 66 e 94 K. Para as duas amostras antes das irradiações, os valores obtidos para $T_c(\text{onset})$, $T(\text{offset})$ e $\Delta T_c(10-90\%)$ foram os mesmos, comprovando a padronização das amostras.

Estas amostras foram também submetidas à técnica de aniquilação de pósitron, onde as medidas de tempo de vida em função da temperatura, mostraram T_c próximo de 93K com erro da ordem de 6% (figs. (A1), (A2) e (A3)) confirmando os resultados obtidos com o "Lock-in amplifier".

Para as amostras irradiadas foi observada a presença de estruturas semelhantes a *corcovas*, nas curvas de permeabilidade magnética (figs. (A4) e (A5)).

Analizando inicialmente a fig. (A4) curva (b), fluência de $1,2 \times 10^{16} \alpha \cdot \text{cm}^{-2}$, verifica-se um valor de $T_c(\text{onset})$ muito próximo ao da amostra não irradiada, verifica-se também a presença de uma *corcova* com um "máximo" em torno de 89 K. Esta mesma amostra submetida a uma fluência duas vezes maior, curva (c), apresenta um "deslocamento" da *corcova* anterior, e o aparecimento de uma segunda *corcova* em torno de 84 K.

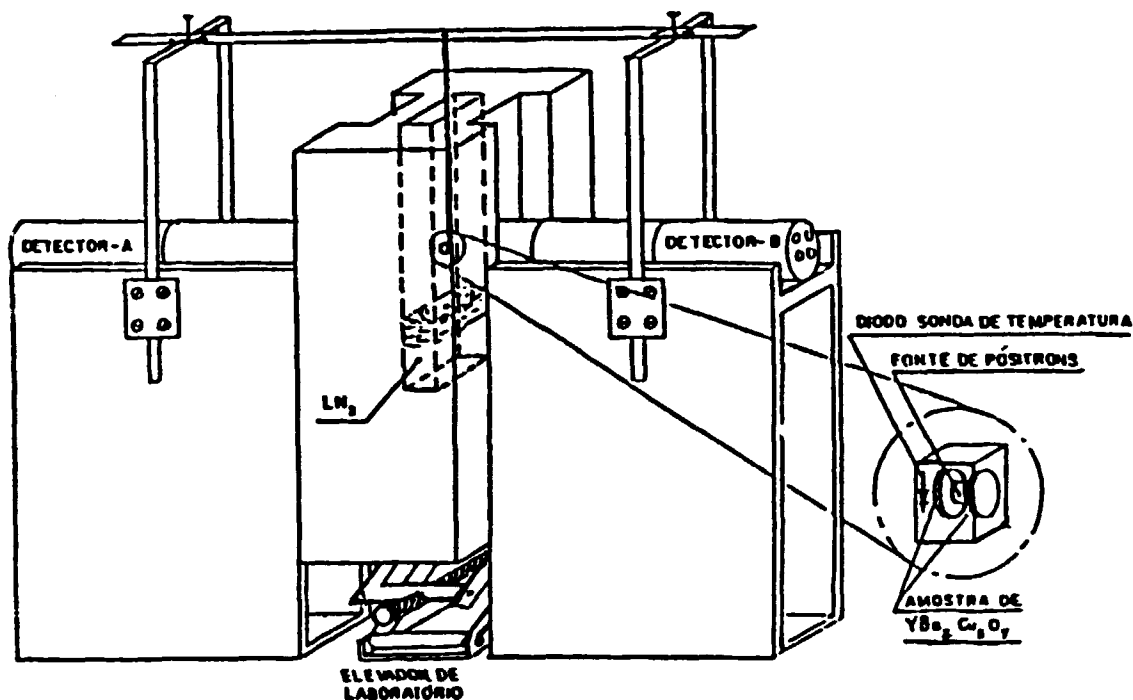


Figura A1: Esquema do dispositivo para medida de τ_v em supercondutores

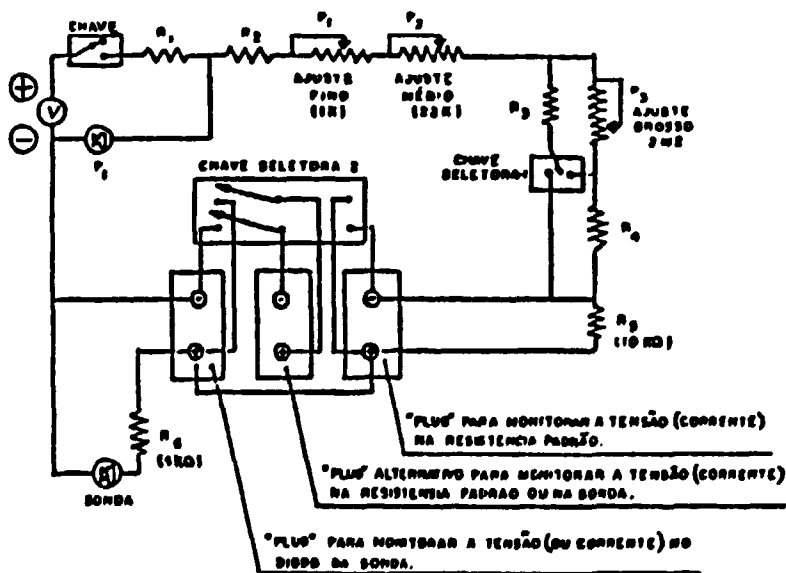


Figura A2: Esquema do circuito eletrônico para medida da temperatura durante as medidas τ_v

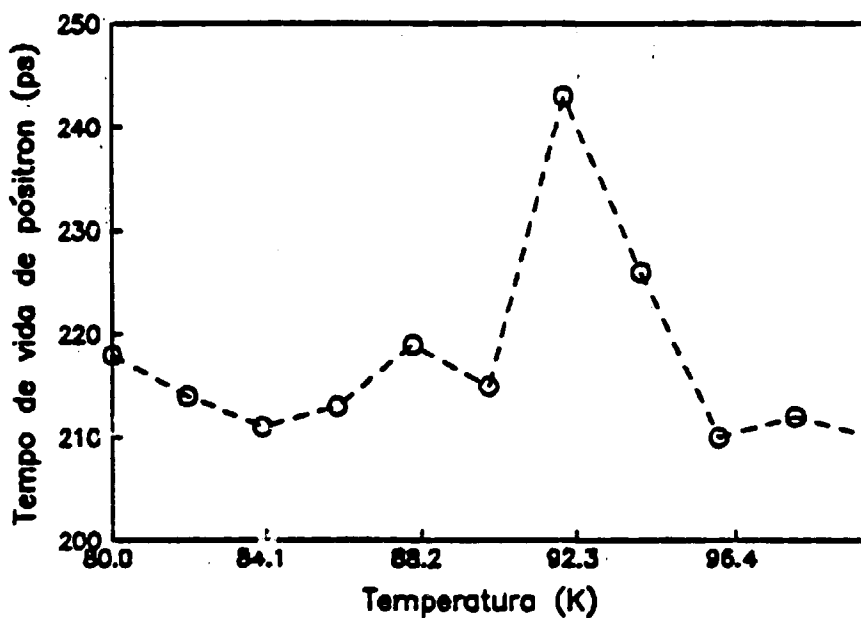


Figura A3: Tempo de vida de pósitrons em função da temperatura

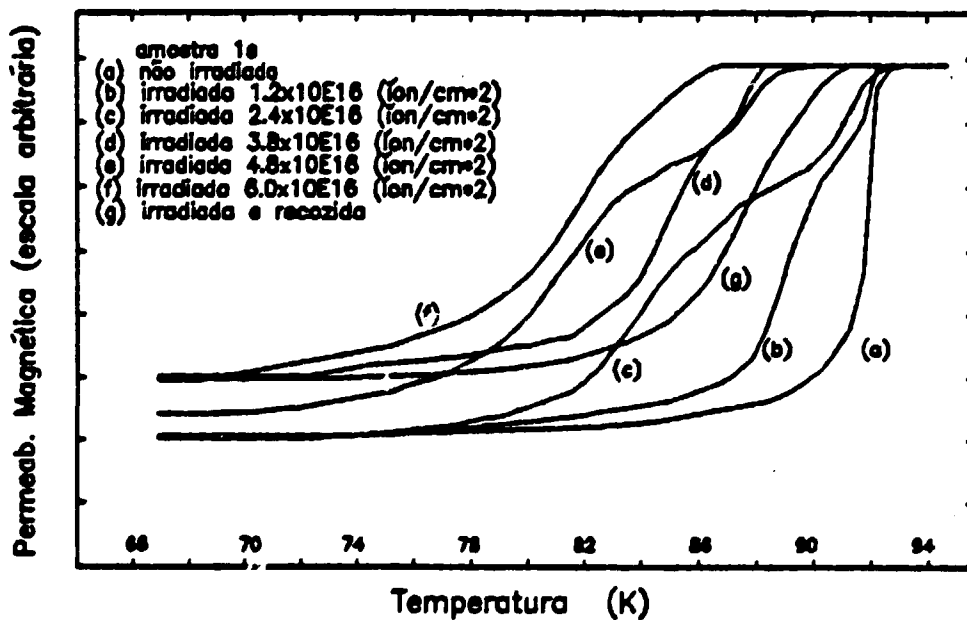


Figura A4: Permeabilidade magnética x temperatura (amostra 1S).

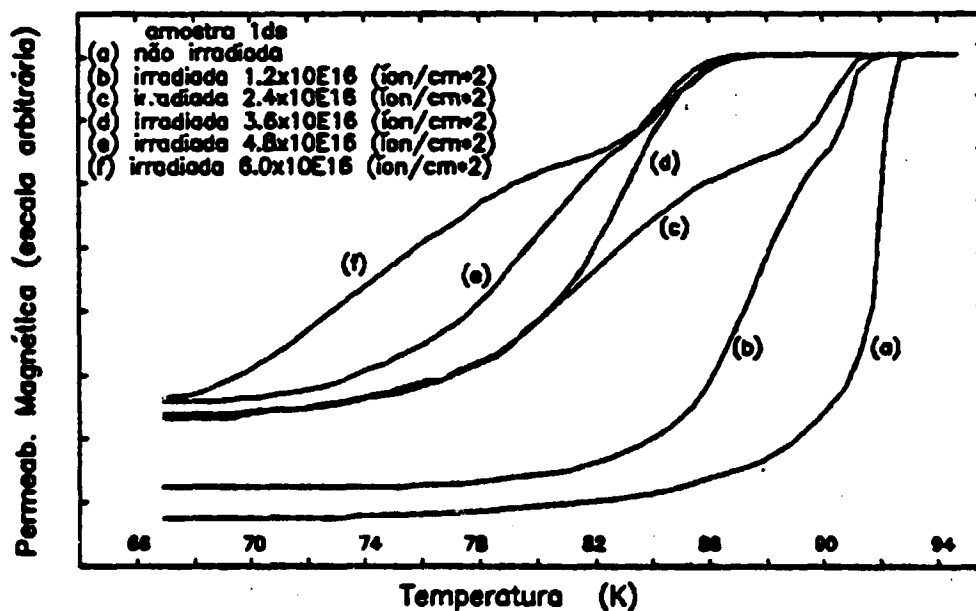


Figura A5: Permeabilidade magnética x temperatura (amostra 1DS).

Após sucessivas irradiações, sempre com acréscimos iguais de fluência, curvas (d) (e) e (f), nota-se uma “evolução” destas *corcovas* e uma alteração nos valores de $T_c(\text{onset})$, que numa primeira análise não variam monotonicamente com a fluência, em desacordo com observações feitas por Voronova et al^[161] e Chrisey et al^[162]. Entretanto, nesta divergência deve se considerar que as condições e parâmetros deste trabalho são diferentes, e ainda que os referidos autores não estão de acordo entre si.

Analisando agora a fig. (A5), que representa a amostra duplamente sinterizada, percebe-se um comportamento geral semelhante com pequenas diferenças: não fica bem caracterizada a presença da segunda *corcova* para fluência $F = 2,4 \times 10^{16} \text{ íon.cm}^{-2}$ na fig. (A5) curva (c), as duas irradiações subsequentes curvas (d) e (e) apresentam valores de $T_c(\text{onset})$ praticamente iguais aos da curva (f).

Para se obter uma relação entre os resultados, foram dispostos em gráficos valores obtidos para $T_c(\text{onset})$, $T(\text{offset})$, $T(\text{corcova1})$ e $T(\text{corcova2})$ em função da fluência recebida pelas amostras 1S e 1DS, figs. (A6) e (A7) respectivamente.

Da fig. (A6), pode-se observar que:

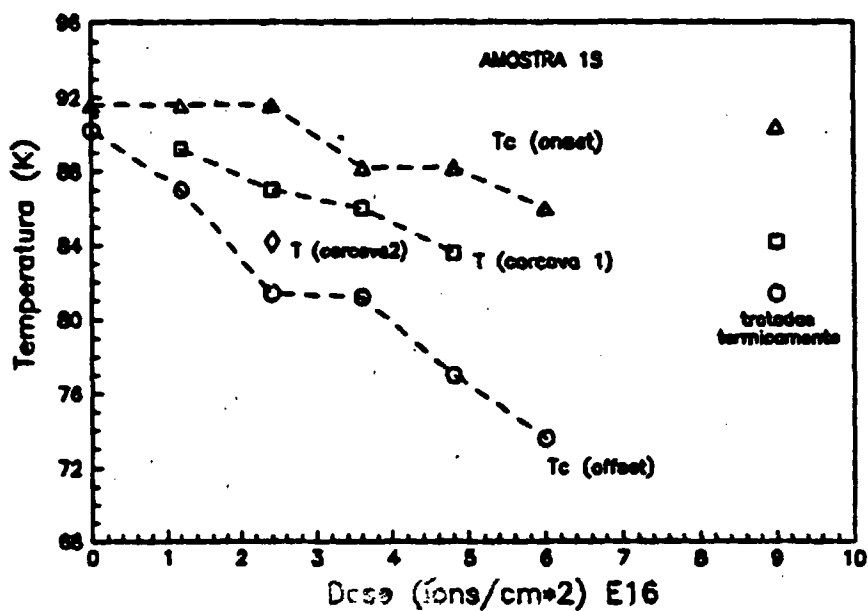


Figura A6: T_c x dose (amostra 1S).

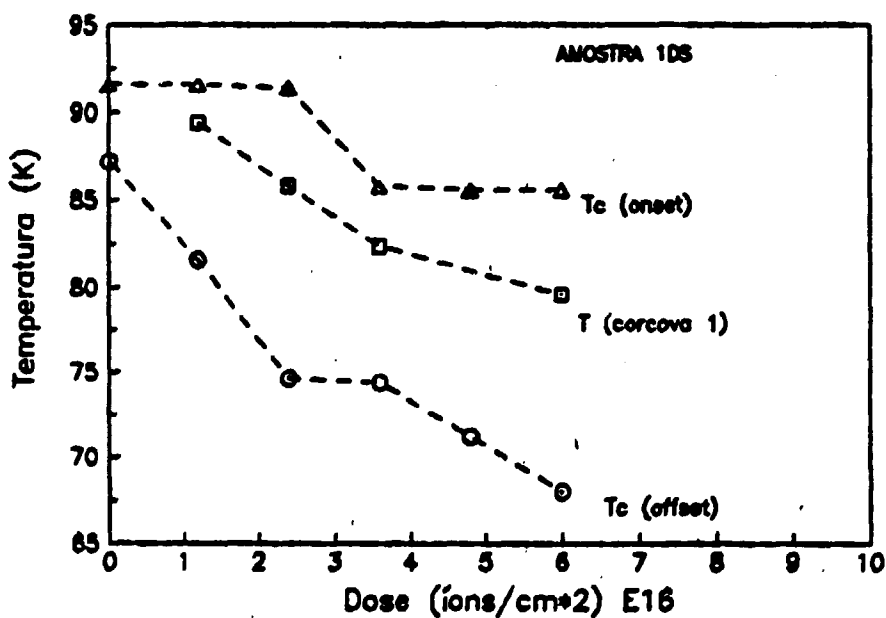


Figura A7: T_c x dose (amostra 1DS).

- A $T_c(\textit{onset})$ permanece constante no intervalo de fluência $\Delta F'$ (0 a $F = 2,4 \times 10^{16} \alpha.cm^{-2}$)
- A $T(\textit{corcova1})$ para fluência $F = 2,4 \times 10^{16} \alpha.cm^{-2}$, tem o mesmo valor que a $T_c(\textit{onset})$ para fluência $F = 3,6 \times 10^{16} \alpha.cm^{-2}$, que por sua vez volta a ficar constante para um quantidade adicional de $2,4 \times 10^{16} \alpha.cm^{-2}$, enquanto $T(\textit{corcova1})$ continua a diminuir.
- Para uma variação de fluência $\Delta F' = 3,6 \times 10^{16} \alpha.cm^{-2}$, acontece uma variação de aproximadamente 6 K para $T_c(\textit{onset})$.
- Para a mesma variação de fluência $\Delta F'$, acontece uma variação de $T(\textit{corcova1})$ também em torno de 6 K.

Estas observações sugerem que a variação da $T_c(\textit{onset})$ com a fluência seja atribuída a uma quantidade definida de íons implantados, ou seja, tudo se passa como se fosse necessário o acúmulo de uma certa concentração de *He*, para que haja variação significativa de $T_c(\textit{onset})$.

Esta hipótese poderia ser justificada supondo que cada *corcova* esteja registrando o início de uma transformação de fase como consequência da concentração de hélio implantada.

Considerando esta justificativa, quando uma quantidade definida de material supercondutor de uma fase se transforma em outra, ocorre uma variação definida no valor de $T_c(\textit{onset})$.

Embora Maish et al^[14], tenham também observado uma estrutura semelhante (*corcovas*) em medidas de resistividade em função da temperatura, em *YBaCuO* irradiado com prótons de 63 MeV e fluência de $10^{14} p.cm^{-2}$, foi descartada por estudos com difração de raio X, a presença de alguma outra fase, pois os parâmetros de rede não foram significativamente alterados. Entretanto, considerando as diferentes situações experimentais, não fica, aqui, excluída a possibilidade de alterações na estrutura cristalina devida à presença de *He*, provocando uma desordem nos íons oxigênio e proporcionando uma mudança de fase.

Como Maish et al.^[14] afirmam em seu trabalho, “uma caracterização completa exige a determinação do local e a identidade dos íons deslocados pela irradiação”, esta caracterização será objeto de futuras experiências com aplicação de técnicas como microscopia eletrônica de transmissão (seção (3.3.3)), difração de raios X^[168] aniquilação de pósitrons (seção (3.2.3)) e “Rutherford Backscattering” (RBS)^[169].

Poder-se-ia ainda questionar o comportamento das amostras 1S e 1DS, que embora semelhantes em termos gerais, não se comportaram “exatamente” da mesma forma. Estas diferenças poderiam ser atribuídas a uma eventual distribuição não homogênea de íons no feixe; com isso os valores reais de fluência não corresponderiam exatamente aos valores nominais, e não somente a preparação das amostras.

Com o objetivo de avaliar a semelhança, foram dispostos no gráfico da fig. (A8), os valores de $\Delta T_c(10 - 90\%)$ para as amostras 1S (\square) e 1DS (\circ) em função da fluência f , onde observa-se a presença de um pico de máximo em $F = 2,4 \times 10^{16} \alpha.cm^{-2}$ que tende a se repetir em $F = 6 \times 10^{16} \alpha.cm^{-2}$, e um mínimo em $F = 0$ e $F = 3,6 \times 10^{16} \alpha.cm^{-2}$.

Para o pico de máximo ($F = 2,4$), pode-se supor que as *corcovas* estão no “ápice” de sua primeira evolução (ver também curva (c) figs. A2 e A3), enquanto que para o mínimo ($F = 3,6$), observa-se a ausência das *corcovas*, dando lugar a um novo valor de $T_c(\text{onset})$.

A amostra 1S, após todas as irradiações, foi submetida a um tratamento térmico a $400^\circ C$ durante 2,5 horas e $1,5 atm$ de O_2 . Os resultados de medidas de permeabilidade magnética após este tratamento podem ser vistos na fig. (A6) curva (g), fig. (A7) (pontos vazios) e na fig. (A8) (ponto vazio), mostrando claramente a tendência de retorno ao estado inicial (antes das irradiações).

Outro fenômeno que também poderia ser considerado no estudo do comportamento da $T_c(\text{onset})$ em função da dose, mesmo em uma escala muito menor que outros tipos de danos por irradiação (como pares de Frenkel, discordâncias e distorções da rede cristalina), é o efeito da transmutação nuclear (ver seção (2.3)), mais especificamente no caso do oxigênio. Como relato por B. Logg et al.^[170], o efeito da substituição parcial do ^{16}O no composto $La_{1.85}Sr_{0.15}CuO_4$, e o aumento de δ ^[171] no composto $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$,

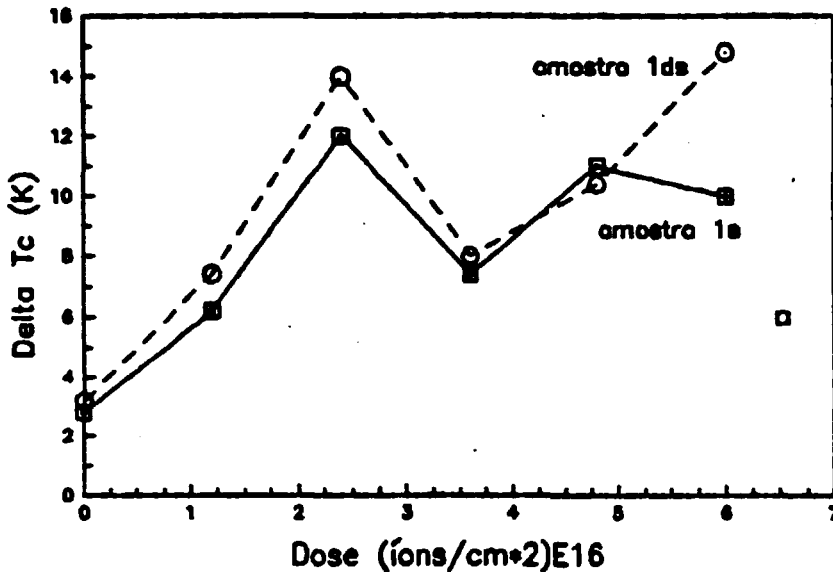


Figura AB: Comparação de ΔT_c para as amostras 1s e 1ds

tem como consequência a diminuição da $T_c(\text{onset})$.

A produção de ^{18}O é proveniente das reações $^{16}\text{O}(\alpha, 2n)^{18}\text{Ne}$ e $^{16}\text{O}(\alpha, np)^{18}\text{F}$. O ^{18}Ne que tem meia vida de 1,75 s emite pósitron e decai para ^{18}F ($t_{1/2} = 110 \text{ min}$) que também emite pósitron decaindo para ^{18}O que é estável. A diminuição da quantidade de oxigênio, pode vir como decorrência da reação $^{18}\text{O}(\alpha, n)^{19}\text{Ne} \xrightarrow{\beta^+} ^{19}\text{F}$. Contudo, a substituição parcial do ^{16}O pelo ^{18}O é sensível apenas com altíssimas doses.

A.5. Conclusão

Apesar de algumas divergências e da diversidade de situações experimentais entre os trabalhos mencionados, todos têm em comum o estudo do comportamento de supercondutores sob efeito da radiação. Neste contexto, uma comparação tem procedência, e não tem o sentido de crítica, mas de um estímulo à busca de mais informação.

Alguns resultados poderiam ser questionados do ponto de vista de valores absolutos porém, alguns fatos aqui relatados são inquestionáveis tais como; a possibilidade

de se determinar a T_c pela técnica de aniquilação de pósitron, o aparecimento das *corcovas* nas curvas de permeabilidade magnética, as modificações nos valores de $T_c(\textit{onset})$ e $T(\textit{offset})$, e a similaridade destas variações com a fluência recebida estimulando a hipótese de criação e/ou transformação de novas fases.

A partir da observação destes fatos, podem ser formuladas algumas questões para futuros trabalhos:

- Como seria o comportamento de $T_c(\textit{onset}, \textit{offset})$, ΔT_c e das *corcovas* com uma variação na fluência menor que $1,2 \times 10^{16} \alpha.cm^{-2}$?
- Como seria também a evolução de todos estes parâmetros, quando amostras irradiadas com diferentes doses fossem submetidas a tratamentos térmicos em diferentes condições de temperatura, pressão e fluxo de oxigênio?
- Que informações seriam obtidas por microscopia eletrônica de transmissão, com relação à presença de bolhas de hélio e seus efeitos na rede cristalina de cerâmicas supercondutoras?
- Qual a extensão dos danos produzidos por um feixe de partículas alfa (espectro de 0 a 28 MeV), simulando a implantação de He?
- Quais seriam os efeitos se estas cerâmicas fossem submetidas a irradiações com prótons e, posteriormente, com alfas (produção de deslocamentos + implantação de hélio)?
- Que nível de dose traria modificações nas propriedades supercondutoras devido ao efeito da transmutação nuclear?
- Seria a técnica de RBS^[169] sensível para discriminar e quantizar a presença de ^{18}O em cerâmicas irradiadas?

Estas e outras questões ainda estão sendo estudadas. Porém, com os resultados atuais, além do comportamento descrito para $T_c(\textit{onset})$, $T(\textit{offset})$, *corcovas* e ΔT_c , verificou-se ainda, a possibilidade de se restabelecer, através de técnicas de recozimento, as propriedades supercondutoras alteradas pela radiação.