

KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH
GESELLSCHAFT MIT BESCHRÄNKTER HAFTUNG
Institut für Festkörperforschung

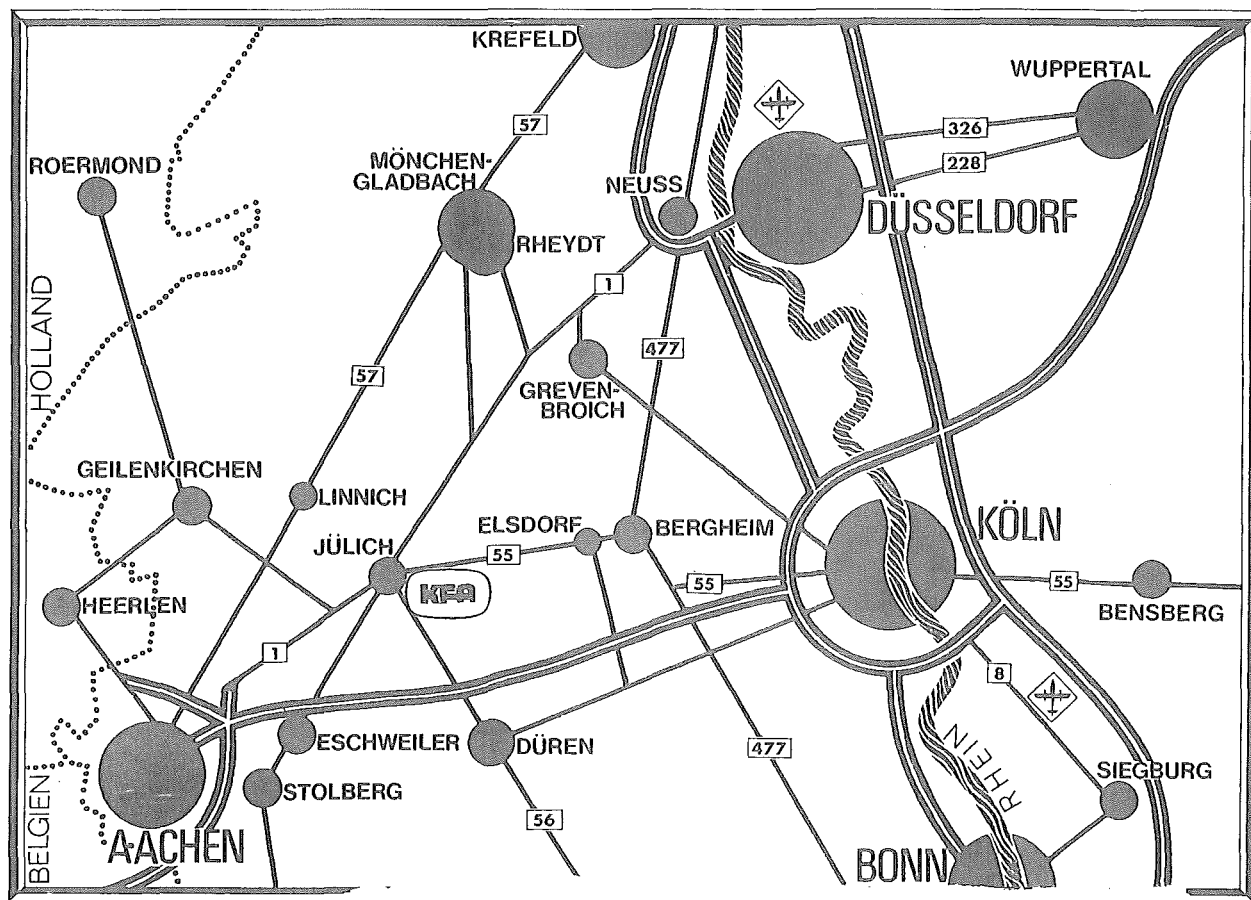
**Strukturbestimmung
von Zwischengitteratomen in Aluminium
mit Hilfe der diffusen Röntgenstreuung
im Zwischenreflexgebiet**

von

H.-G. Haubold

Jül - 1090 - FF
Juli 1974

Als Manuskript gedruckt



Berichte der Kernforschungsanlage Jülich - Nr. 1090

Institut für Festkörperforschung Jülich - 1090 - FF

Dok.: Diffuse X Ray Scattering
 Lattice Defect - X Ray Scattering, Structure
 Interstitial - Displacement Field
 Radiation Damage - Aluminium
 Aluminium - Point Defect, X Ray Scattering

Im Tausch zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH,
 Jülich, Bundesrepublik Deutschland

**Strukturbestimmung
von Zwischengitteratomen in Aluminium
mit Hilfe der diffusen Röntgenstreuung
im Zwischenreflexgebiet**

von

H.-G. Haubold

D 82 (Diss. T. H. Aachen)

Abstract

For interstitials the scattering cross section between the Bragg reflections is very sensitive to the position of the defect atom and the displacements of the neighbouring lattice atoms. In contrast to this the scattering near the Bragg reflections (Huang-scattering) is mainly governed by the displacement field at large distances from the defect and gives information about defect symmetry and strength. For determining structures of point defects a measurement of scattering far from reciprocal lattice points is therefore the best suited and most direct method.

This is demonstrated by numerical cross section calculations for some possible interstitial configurations which are based on Kanzaki-force defect models in a lattice statics approach.

X-ray measurements of point defect scattering in this region far from reciprocal lattice points have not been done before: With conventional X-ray set-ups it was not possible to separate the defect scattering from the thermal diffuse and Compton background scattering which is up to 2 orders in magnitude larger in case of typical defect concentrations of some 10^{-4} . Such measurements, however, become possible if large samples and X-ray sources of high luminous density are used in connection with multidetector arrangements.

Therefore a special experimental arrangement was developed which consists of a 100 kW X-ray tube with rotating anode, a focusing mirror and a multidetector system, consisting of 100 Si(Li)-detectors. With this set-up the configuration of intrinsic interstitials in irradiated aluminum was determined as the 100-split configuration. The measurement was done in samples which contained an atomic density of Frenkel defects up to $5 \cdot 10^{-4}$.

1. Einleitung.	
2. Wirkungsquerschnitt für diffuse Röntgenstreuung an einem Kristall mit Punktdefekten.	3
2.1. Defektinduzierte Streuung.	3
2.2. Untergrund-Streuung.	7
3. Optimierung von Anordnungen zur Messung der diffusen Röntgenstreuung im Zwischenreflexgebiet.	9
3.1. Meßverfahren.	9
3.2. Gestreute Intensität.	10
3.2.1. Optimale Probendicke.	12
3.2.2. Optimale Wellenlänge.	12
3.2.3. Optimale Streugeometrie.	14
3.3. Minimale Meßzeit.	17
4. Beschreibung der Meßanlage.	21
4.1. Prinzipielle Gesichtspunkte.	21
4.2. Ausführung.	22
4.3. Experimentelle Einzelheiten.	
4.3.1. 100 kW-Hochleistungs-Drehanodenröntgenröhre.	25
4.3.2. Spiegel.	25
4.3.3. Kryostat.	26
4.3.4. Meßkammer.	29
4.3.5. Elektronik.	33
4.4. Prüfung der Anlage.	34
4.5. Meß- und Auswertungsverfahren.	39
5. Zwischenreflexstreuung von Aluminium nach Bestrahlung mit 3 MeV-Elektronen bei 4.7 K.	45
5.1. Messung.	45
5.2. Berechnung der Zwischenreflexstreuung für verschiedene Zwischengitteratomlagen.	56
5.3. Bestimmung der Struktur des Zwischengitteratoms in Aluminium.	70

5.3.1. Einzeldefekte.	70
5.3.2. Defektagglomerate.	82
6. Zusammenfassung.	87
7. Literaturverzeichnis	89

1. Einleitung

Aufgrund ihrer großen technischen Bedeutung werden seit vielen Jahren Strahlenschäden in Metallen untersucht. In allen Fällen werden Zwischengitteratome als primäre Defekte erzeugt. Zur Bestimmung ihrer Struktur, d.h. ihrer Lage im Gitter und der durch sie erzeugten Gitterverschiebungen, sind schon viele Anstrengungen unternommen worden.

Von der Vielzahl der bisher zu diesem Zweck durchgeführten Experimente haben Röntgen-Streuexperimente /10,30,31/ die direktesten Informationen geliefert. In diesen Experimenten konnte das langreichweitige Verschiebungsfeld von Zwischengitteratomen in Aluminium und Kupfer ausgemessen werden. Seine Symmetrie wurde in beiden Fällen zu kubisch oder schwach tetragonal bestimmt. Zwischengitteratomlagen mit anderer Fernfeldsymmetrie (Crowdionlage, Hantellagen in 110- oder 111-Richtung) konnten auf diese Weise als mögliche Lagen ausgeschlossen werden.

Die Streuexperimente wurden aus Intensitätsgründen in der Nähe der Braggreflexe durchgeführt (Huangstreuung). In diesem Gebiet ist die Streuung sehr unempfindlich auf die Verschiebungsfeldstruktur in der Nahzone des Zwischengitteratoms. Daher konnte aufgrund dieser Experimente keine weitere eindeutige Entscheidung zwischen den übrigen möglichen Zwischengitteratomlagen (Oktaeder-, Tetraeder- und 100-Hantellage) getroffen werden.

Das Ziel der vorliegenden Arbeit war es, das Verschiebungsfeld auch in der unmittelbaren Umgebung des Zwischengitteratoms auszumessen. Auf diese Weise sollte eine eindeutige Lagebestimmung des Zwischengitteratoms auch in solchen Fällen ermöglicht werden, wo mehrere Lagen mit gleicher Symmetrie des langreichweitigen Verschiebungsfeldes möglich sind.

Die Verschiebungen in der Nahzone des Zwischengitteratoms können ebenfalls in einem Streuexperiment gemessen werden. Wie in Kapitel 2 gezeigt wird, ist es zu diesem Zweck allerdings erforderlich, die Streuintensitäten zwischen den Braggreflexen zu messen; denn in diesem Zwischenreflexgebiet ist die Defektstreuung vor-

wiegend durch die Nahfeldstreuung des Verschiebungsfeldes gegeben.

Röntgenstreuexperimente an Zwischengitteratomen wurden im Zwischenreflexgebiet bisher nicht durchgeführt. Mit konventionellen Röntgenanlagen war es nicht möglich, die Defektstreuung von der Compton- und thermisch-diffusen Streuung abzutrennen. In Aluminium ist diese Untergrundstreuung etwa zwei Größenordnungen stärker als der Streubeitrag von Zwischengitteratomen in typischen Konzentrationen von einigen 10^{-4} .

In Kapitel 3 wird gezeigt, daß es möglich ist, die Defektstreuung als Differenz der Zählraten von defekthaltiger und ausgeglichener, defektfreier Probe zu bestimmen, wenn diese Zählraten mit der nötigen Genauigkeit gemessen werden können. Innerhalb von realisierbaren Meßzeiten ist dies nur in Anlagen der Fall, die hinsichtlich kurzer Meßzeiten optimiert werden.

Eine auf diese Weise optimierte Meßanlage ist in Kapitel 4 beschrieben. Mit dieser Anlage wurde die Zwischenreflexstreuung von Zwischengitteratomen in Aluminium gemessen. Diese wurden in einer Konzentration von etwa $5 \cdot 10^{-4}$ durch Tieftemperaturbestrahlung mit 3 MeV-Elektronen erzeugt. Die Meßergebnisse für Einzel- und Doppelzwischengitteratome werden in Kapitel 5 mit Streuwirkungsquerschnitten verglichen, die für verschiedene Lagen des Zwischengitteratoms numerisch berechnet wurden. Es wird gezeigt, daß es durch solche Vergleiche möglich ist, eindeutige Lagebestimmungen des Zwischengitteratoms durchzuführen.

2. Wirkungsquerschnitt für diffuse Röntgenstreuung an einem Kristall mit Punktdefekten.

2.1. Defektinduzierte Streuung.

Für einen ungestörten Kristall ergibt die phasenrichtige Addition der Streubeiträge aller Gitteratome, daß elastische Streuung nur in den Braggreflexen erfolgt. Der Einbau von Punktdefekten führt jedoch auch zwischen den Reflexen zum Auftreten einer elastisch gestreuten Strahlung.

Diese diffuse Streuung setzt sich aus zwei Anteilen zusammen: der Eigenstreuung der Defekte (Laue-Streuung) und der Unordnungsstreuung des durch Defekteinbau gestörten Kristallgitters.

Die Intensität der Streuung ist bei statistisch verteilten Punktdefekten kleiner Konzentration in Einzeldefektnäherung gegeben durch /1/:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\vec{x}) = c \cdot e^{-2M} \left| (f_D - f) + f \left(\sum_n e^{i\vec{x}(\vec{r}_n + \vec{S}_n)} - \sum_n e^{i\vec{x}\vec{r}_n} \right) \right|^2 \quad (1)$$

$\frac{d\sigma}{d\Omega}$ = Streuwirkungsquerschnitt

c = Konzentration der Defekte

e^{-2M} = Debye-Waller-Faktor

$f_D - f$ = Laue-Streuung des Defektes

f = Streuamplitude des Wirtsgitters

f_D = Streuamplitude des Defektes

$\vec{r}_n$ = Gittervektor im neuen, durch die Gitterverzerrungen entstandenen, mittleren Gitter, d.h. in einem Gitter, welches durch alle anderen Defekte homogen verformt ist.

$\vec{r}_n = \vec{r}_n - \vec{R}_D$

$\vec{R}_D$ = Lagevektor des Defektes

$\vec{S}_n$ = statische Verschiebung des Atoms n durch den Defekt, bezogen auf das mittlere Gitter

$\vec{x} = \vec{k} - \vec{k}_0 = \left(\frac{2\pi}{\lambda}\right) \cdot \frac{4\pi}{\lambda} \sin \epsilon/2$ = Streuvektor, Differenz der Wellenvektoren von einfallendem und gestreutem Strahl.

Der Wirkungsquerschnitt kann umgeschrieben werden zu /2/:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\vec{x}) = c \cdot e^{-2M} \left| (f_0 - f) + i f \vec{x} \underbrace{\sum_n \vec{S}^n}_{\vec{S}(\vec{x}) \cdot e^{-i \vec{x} \cdot \vec{R}_D}} e^{i \vec{x} \cdot \vec{r}^n} + f \sum_n^{(nn)} \left(e^{i \vec{x} \cdot \vec{S}^n} - 1 - i \vec{x} \cdot \vec{S}^n \right) e^{i \vec{x} \cdot \vec{r}^n} \right|^2 \quad (2)$$

Bei kleinen Verschiebungen $\vec{x} \cdot \vec{S}^n \ll 1$ wird der Streubeitrag der Wirtsgitter-Atome durch die Projektion des Streuvektors $\vec{x}$ auf die Fouriertransformierte $\vec{S}(\vec{x})$ des Verschiebungsfeldes gegeben.

Zwischengitteratome sind Defekte, welche große Verschiebungen in ihrer Nachbarschaft hervorrufen. In diesem Fall trägt auch der dritte Term zur Streuung bei. In diesen gehen wesentlich nur die Verschiebungen der nächsten Nachbarn ein.

$\vec{S}(\vec{x})$ wird für kleine $\vec{x}$ -Werte durch das Verschiebungsfeld $\vec{S}(\vec{r})$ in großem Abstand vom Defekt bestimmt. Dies gilt auch für $\vec{x}$ -Werte in der Umgebung der Braggreflexe, da $\vec{S}(\vec{x})$ die Periodizität des reziproken Gitters aufweist ($\vec{q} = \vec{x} - \vec{c} =$ Abstand vom Braggreflex):

$$\vec{S}(\vec{x}) = \vec{S}(\vec{x} - \vec{c}) = \vec{S}(\vec{q}) \quad (3)$$

Im Zwischenreflexgebiet wird $\vec{S}(\vec{x})$ überwiegend durch die Gitterverschiebungen in der Nahzone des Defektes gebildet. Entsprechend liefern Messungen des Wirkungsquerschnittes in verschiedenen $\vec{x}$ -Bereichen auch verschiedenartige Aussagen über die Defektstruktur.

Gebiet $x \rightarrow 0$:

Für $x \rightarrow 0$ wird der dritte Term in Glg. (2) Null. Aus Glg. (2) folgt dann:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\vec{x} \rightarrow 0) = c \cdot e^{-2M} \left| f_0 - f + i f \vec{x} \vec{S}(\vec{x} \rightarrow 0) \right|^2 \quad (4)$$

Die Fouriertransformierte $\vec{S}(\vec{x} \rightarrow 0)$ trägt nur durch diejenige Vektorkomponente zur Streuung bei, die in der Richtung des Streuvektors $\vec{x}$ liegt. Dabei streut bei kleinen Streuvektoren $x \rightarrow 0$ nur der Fernfeldanteil des Verschiebungsfeldes.

Bei Isotropie (isotrope Defekte in isotroper Matrix) kann der Verschiebungsfeldanteil in Glg. (4) durch die durch den Defekteinbau hervorgerufene Änderung des Gitterparameters $\frac{\Delta a}{a}$ bzw. durch die entsprechende Volumenänderung $\frac{\Delta V}{\Omega}$ ausgedrückt werden zu /4/ (Ω = Atomvolumen):

$$i\vec{x} \tilde{S}(\vec{x} \rightarrow 0) = -\frac{3}{\gamma} \frac{\Delta a}{a} = -\frac{1}{\gamma} \frac{\Delta V}{\Omega} \quad (5)$$

Hierbei beschreibt die Eshelby-Konstante γ den Einfluß der Oberflächenkräfte auf die Volumenänderung: (ΔV_{∞} = Volumenänderung im unendlich ausgedehnten Medium, ν = Poissonzahl)

$$\gamma = \frac{\Delta V}{\Delta V_{\infty}} = 3 \frac{1-\nu}{1+\nu} \quad (6)$$

Je nach Stärke und Vorzeichen von Verschiebungsfeld- und Laue-Streuung hat die Streuamplitude von Einzeldefekten bei $\vec{x} \rightarrow 0$ Werte zwischen 0 und wenigen Atomformfaktoren f . Beispielsweise streuen Leerstellen vorzugsweise durch ihren Laue-Anteil, da ihr Einbau ins Gitter nur eine kleine Gitterrelaxation hervorruft. Für $\vec{x} \rightarrow 0$ liegt der Streuwirkungsquerschnitt einer Leerstelle daher bei f^2 . Anders ist es bei Eigenzwischengitteratomen, wo Laue- und Verschiebungsfeldanteile etwa gleich stark, aber mit verschiedenem Vorzeichen streuen. Die Gesamtstreuamplitude kann in diesem Fall sehr klein oder sogar Null werden. Letzteres tritt im isotropen Fall bei Volumenaufweitungen von $\frac{\Delta V}{\gamma \Omega} = 1$ auf, wo sich die Amplitude der Laue-Streuung $A_L = f_D - f = \frac{f}{2}$ und die des Verschiebungsfeldes $A_V = -\frac{f}{2}$ gegenseitig genau kompensieren.

Huang-Gebiet $\vec{q} = \vec{x} - \vec{c} \rightarrow 0$:

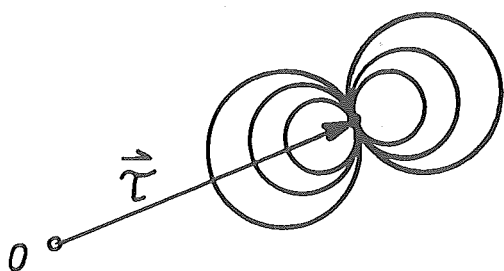
Die Streuung in der Umgebung der Braggreflexe ($\vec{q} = \vec{x} - \vec{c} \rightarrow 0$) zeichnet sich dadurch aus, daß dort der Streuwirkungsquerschnitt

sehr stark ansteigt. Ursache ist die mit abnehmendem Abstand vom Reflex schnell zunehmende Streuung durch den Fernfeldanteil des Verschiebungsfeldes. Beispielsweise haben Defekte mit Verschiebungsfeldern, die in der Fernzone isotrop mit $1/r^2$ abfallen, einen Verschiebungsfeldbeitrag /1/:

$$i\vec{x}\vec{S}(\vec{x}-\vec{c}) = -\frac{\Delta V}{4\pi\Omega} \frac{\vec{x}(\vec{x}-\vec{c})}{|\vec{x}-\vec{c}|^2} \approx -\frac{\Delta V}{4\pi\Omega} \frac{\vec{c}\cdot\vec{q}}{q^2} \quad (7)$$

Der Wirkungsquerschnitt steigt in Richtungen $\vec{q} \parallel \vec{c}$ mit $(\frac{c}{q})^2$ an und ist bei isotropen Defekten proportional zum Volumenänderung pro Defekt. Für $\vec{q}$ -Vektoren senkrecht zu $\vec{c}$ ^{Quadrat der} verschwindet in diesem Fall des isotropen Defektes die Verschiebungsfeldstreuung.

Die Isointensitätsflächen in der Umgebung der Braggreflexe sind daher für isotrope Defekte jeweils zwei "Huang"-Kugeln, die sich im Braggreflex berühren.



Im allgemeinen Fall beliebiger Defekte können in der Nähe geeigneter Braggreflexe neben den verschiedenen longitudinalen zusätzlich auch transversale Komponenten von $\vec{S}(\vec{x})$ gemessen werden. Hieraus kann die Symmetrie des Verschiebungsfeldes in gro-

ßer Entfernung vom Defekt ermittelt werden. Es ist daher durch eine solche Messung möglich, eine Entscheidung zwischen verschiedenen Defektlagen zu treffen, falls diese sich durch die Symmetrie ihrer langreichweitigen Verschiebungsfelder unterscheiden /3,10/.

Zwischenreflexgebiet:

Messungen im Zwischenreflexgebiet sind zur Bestimmung der atomistischen Struktur von Punktdefekten am geeignetsten. Der Wirkungsquerschnitt hängt hier nur vom Formfaktor des Defektes und den Gitterverschiebungen in seiner unmittelbaren Umgebung ab. Deshalb kann im Zwischenreflexgebiet die Nahfeldstruk-

tur ausgemessen werden. Das bedeutet, daß auch Entscheidungen zwischen solchen Defektlagen getroffen werden können, die sich nicht in ihrer Fernfeldsymmetrie unterscheiden. Beispielsweise kann zwischen Oktaeder- und Tetraederlagen von Zwischengitteratomen in fcc- und bcc-Gittern unterschieden werden, da sich die Verschiebungsfelder beider Lagen - trotz gemeinsamer kubischer Fernfeldsymmetrie - in ihrer Nahzone unterscheiden.

2.2. Untergrundstreuung.

Röntgenstrahlen werden in einem gestörten Kristall nicht nur elastisch gestreut. Die Eigenschwingungen des Kristallgitters verursachen kollektive Lageverschmierungen der einzelnen Atome. Sie führen zum Auftreten einer inelastischen diffusen Streuung zwischen den Reflexen (Thermisch-diffuse Streuung = TDS), deren Intensität mit steigender Temperatur zunimmt /5/:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega_{TDS}}(\vec{x}) = f^2 e^{-2M} \frac{1}{m} \sum_{i=1}^3 \hbar \omega_{\vec{q},i} \cdot n_{\vec{q},i} \frac{(\vec{e} \cdot \vec{x})^2}{\omega_{\vec{q},i}^2} \quad (8)$$

Hierbei ist:

m = Atommasse

$\vec{e}_{\vec{q},i}$ = Polarisationsvektor des Phonons $(\vec{q}, i)$

$\omega_{\vec{q},i}$ = Frequenz des Phonons $(\vec{q}, i)$

$n_{\vec{q},i} = (e^{\hbar \omega_{\vec{q},i}/kT} - 1)^{-1} + \frac{1}{2}$ = Besetzungszahl für das Phonon $(\vec{q}, i)$.

Die Energieverschiebung der TDS liegt bei etwa 0.025 eV. Verglichen mit der Energie der Röntgenstrahlen im keV-Bereich ist sie sehr klein. Die TDS kann daher meßtechnisch vom elastischen Streuanteil nicht abgetrennt werden und wird als Untergrundstreuung mitgemessen.

Ein Röntgenquant kann auch Impuls auf ein einzelnes Elektron übertragen und von diesem inelastisch gestreut werden (Compton-Streuung). Der Compton-Wirkungsquerschnitt ist Null bei $\mathcal{E} \rightarrow 0$ und wächst mit wachsendem Impulsübertrag $\mathcal{E}$ stark an. Er nimmt linear mit wachsender Elektronenzahl zu und ist daher proportional zur Kernladungszahl Z der Kristallatome /5/. Im Gegen-

satz dazu nimmt die Streuung durch Gitter-Defekte und Phononen mit Z^2 zu, da dort alle Atomelektronen kohärent streuen. Für Messungen an leichten Atomen im Zwischenreflexgebiet stellt die Compton-Streuung daher ein großes Untergrundproblem dar, wenn sie nicht mit großem Aufwand meßtechnisch vom elastischen Streuanteil abgetrennt wird.

Abbildung 1 zeigt für Aluminium die Größenordnung von defekt-induzierter Streuung von Frenkeldefekten mit einer atomaren Dichte $c = 5 \cdot 10^{-4}$ und Untergrund für eine 100 -Richtung im reziproken Gitter.

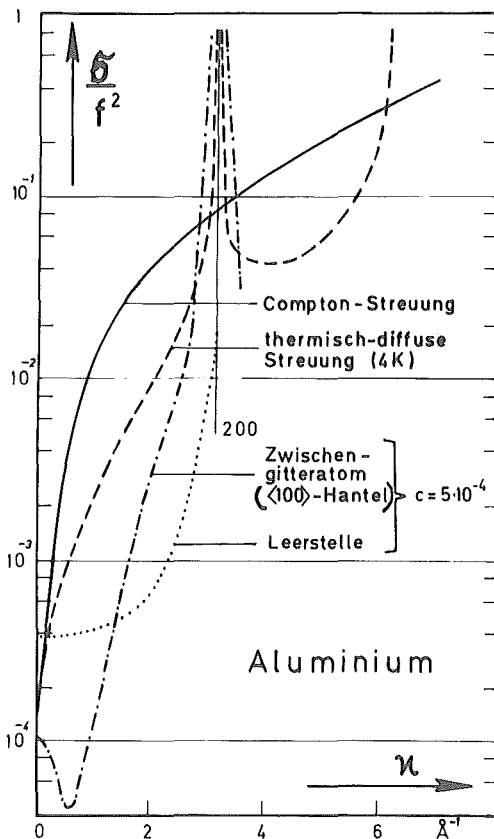


Abb. 1: Größenverhältnisse für Untergrund- und Defektstreuung.

Die Defektstreuung von Leerstellen und Zwischengitteratomen mit realistischer Konzentration von $5 \cdot 10^{-4}$ ist nur im Huang-Gebiet wesentlich stärker als TDS und Compton-Streuung. Dagegen ist im für die Defektstruktur aussagekräftigsten Zwischenreflexgebiet die Untergrundsituation sehr ungünstig: Das Untergrund/Effekt-Verhältnis hat dort trotz der relativ großen Frenkeldefektkonzentration den sehr hohen Wert von etwa 30:1. Eine Messung der Defektstreuung mit ausreichender Genauigkeit erfordert daher sehr lange Meßzeiten. Um diese in praktisch realisierbaren Grenzen zu halten, muß eine Optimierung der Meßanordnung hinsichtlich kurzer Meßzeiten durchgeführt werden.

3. Optimierung von Anordnungen zur Messung der diffusen Röntgenstreuung im Zwischenreflexgebiet.

3.1. Meßverfahren.

Falls der Meßeffect (= Wirkungsquerschnitt σ_E) von einem Untergrund (= Wirkungsquerschnitt σ_U) überdeckt ist, muß der erstere aus einer Differenzmessung (Probe mit $\sigma_U + \sigma_E$ gegen Probe mit σ_U) bestimmt werden. Sind N_E und N_U die Zählungen im Detektor infolge Effect und Untergrund, so erhält man N_E aus den zwei Messungen

$$N_E = (N_E + N_U) - N_U \quad (9)$$

Für den relativen mittleren statistischen Fehler gilt in der Näherung $\sigma_D \ll \sigma_U$

$$\frac{\Delta N_E}{N_E} = \frac{\Delta \sigma_E}{\sigma_E} \approx \frac{\sqrt{N_U + N_E} + \sqrt{N_U}}{N_E} = 2 \frac{\sqrt{N_U}}{N_E} \quad (10)$$

Setzt man:

$$N_E = t \cdot w \cdot dI_E \quad (11)$$

$$N_U = t \cdot w \cdot dI_U \quad (12)$$

mit

w = Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors,

$w \cdot dI$ = Detektorzählrate,

und nimmt für die Messung mit und ohne Meßeffect gleiche Zählzeiten t an, so erhält man für die gesamte erforderliche Zählzeit:

$$2t = 8 \frac{\sigma_U}{\sigma_E} \frac{1}{w \cdot dI_E} \frac{1}{(\Delta \sigma_E / \sigma_E)^2} \quad (13)$$

Die Meßzeit wächst quadratisch mit kleiner werdendem statistischen Fehler des gesuchten Meßeffectes und nimmt linear mit dem Verhältnis Untergrund/Effect zu.

Für minimale Meßzeit bei vorgegebener Genauigkeit $\frac{\Delta \sigma_E}{\sigma_E}$ des ge-

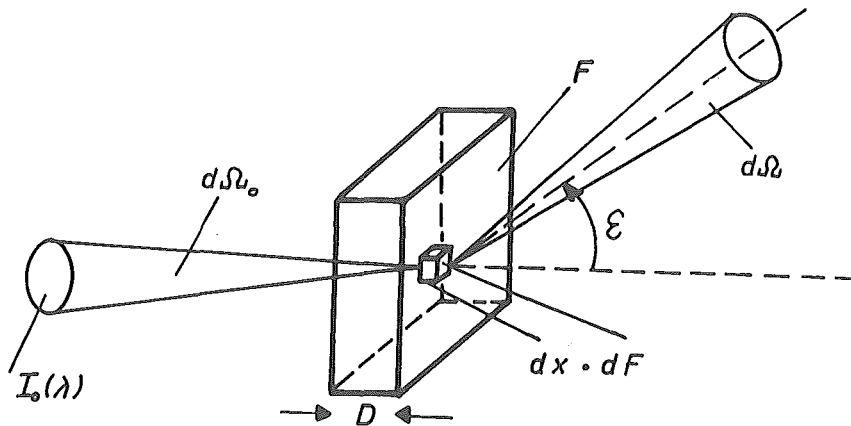
suchten Wirkungsquerschnitts muß die gestreute Intensität dI_E maximal gemacht werden.

3.2. Gestrene Intensität.

Von dem Volumenelement $dF \cdot dx$ der Probe wird die Röntgenquelle der Fläche F_0 unter dem Raumwinkelement $d\Omega_0$ gesehen. Die Flußdichte an Röntgenquanten durch die Probe wird somit

$$d\phi_0 = I_0(\lambda) d\lambda d\Omega_0 \quad (14)$$

wobei $I_0(\lambda)$ die spektrale Leuchtdichte der Röntgenquelle darstellt.



Die unter dem Streuwinkel ϵ in das Raumwinkelement $d\Omega$ gestreute Gesamtintensität dI erhält man durch Integration der Streubeiträge der einzelnen Volumenelemente $dx \cdot dF$ ($\mu(\lambda)$ = Absorptionskoeffizient; n = Zahl der Atome pro cm^3):

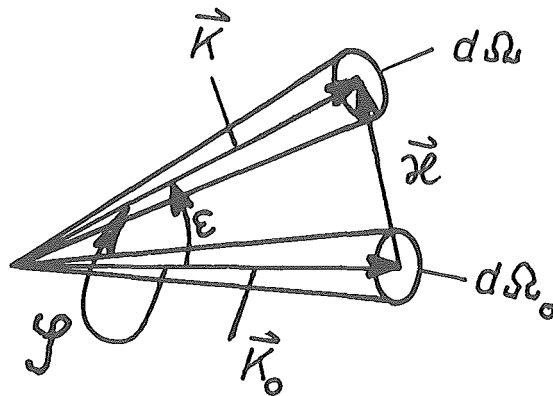
$$\frac{dI}{d\Omega} = \int_{\lambda=0}^D \int_{F=0}^F \int_{\lambda} I_0(\lambda) d\lambda d\Omega_0 dF e^{-\mu(\lambda)x} n \frac{d\sigma}{d\Omega}(\vec{x}) e^{-\frac{\mu(\lambda)(D-x)}{\cos \epsilon}} dx \quad (15)$$

Hierbei beschreibt der Faktor $e^{-\mu(\lambda)x}$ die Schwächung der einfallenden Strahlung auf dem Weg bis zum Volumenelement $dx \cdot dF$. Durch den Faktor $e^{-\frac{\mu(\lambda)(D-x)}{\cos \epsilon}}$ wird die Absorption der gestreuten Strahlung berücksichtigt.

Integration über die Dicke D der Probe ergibt (für kleine Streuwinkel ($\cos \epsilon \approx 1$)):

$$dI = \iint_{\neq \lambda} I_0(\lambda) dF n \frac{d\sigma(\vec{x})}{d\Omega} D \cdot e^{-\mu D} d\Omega_0 d\Omega d\lambda \quad (16)$$

Durch die endliche Divergenz $d\Omega_0$ des einfallenden Strahles und die begrenzte Winkelauflösung $d\Omega$ der gestreuten Strahlung liegt für jedes Flächenelement dF eine Verteilung der Vektoren $\vec{k}_0$ und $\vec{k}$ und damit auch des Streuvektors $\vec{x}$ vor:



$$\vec{x} = \vec{k} - \vec{k}_0 = \left(\frac{4\pi}{\lambda} \sin \frac{\epsilon}{2} \right) \left(\frac{\vec{x}}{x} \right) \quad (17)$$

Gestalt und Größe des aufzulösenden Phasenraumelements d^3x legen neben der Energieauflösung entsprechende Winkelauflösungen $d\epsilon, d\varphi$ der axialen und radialen Streuwinkel ϵ und φ fest. Für ein Flächenelement der Probe beträgt die Unschärfe im Betrag des Streuvektors $\vec{x}$ für elastische Streuung ($\frac{d\lambda}{\lambda} = 0$) und kleine Streuwinkel

$$dx \approx \frac{2\pi}{\lambda} d\epsilon \quad (18)$$

Zur Streuwinkelunschärfe durch die endliche Größe der beiden Raumwinkel zur Röntgenquelle und zum Detektor kommt bei endlichen Probenflächen F noch ein zusätzlicher Beitrag hinzu; denn bei ausgedehnten Proben hat der Primärstrahl verschiedene Einfallsrichtungen und wird in den Fällen, wo keine Fokussierungsgeometrie vorliegt, in den verschiedenen Probengebieten unter verschiedenen Winkeln gestreut.

Für den im folgenden angenommenen Fall $d\epsilon = d\varphi$ gilt dann allgemein für Proben endlicher Ausdehnung:

$$d\Omega_0 \cdot d\Omega = f_G \left(\frac{\lambda}{4\pi} \right)^4 d\mathcal{V} \quad (19)$$

Der Faktor f_G hängt von der genauen Geometrie der Meßanordnung ab und legt die Aufteilung der zulässigen Unschärfe in $\vec{x}$ auf die Raumwinkelemente $d\Omega_0$, $d\Omega$ und Streuung aus verschiedenen Probengebieten fest.

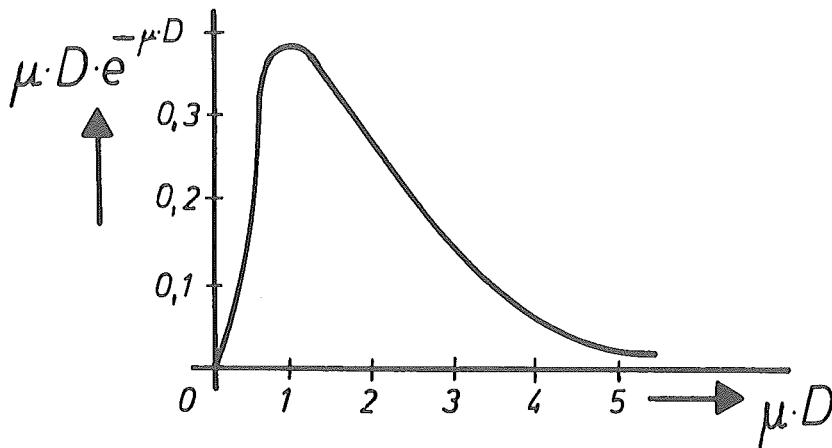
Somit erhält man für die in das Detektorelement gestreute Intensität:

$$dI = \int_{\lambda} I_0(\lambda) d\lambda F_n \frac{d\sigma}{d\Omega}(\lambda) D e^{-\mu D} \cdot f_G \frac{\lambda^4}{(4\pi)^2} d\Omega \quad (20)$$

Eine Optimierung der Meßanordnung muß durchgeführt werden hinsichtlich der Probendicke D , der Wellenlänge der Röntgenstrahlung λ und der Streugeometrie, d.h. hinsichtlich f_G .

3.2.1. Optimale Probendicke.

Die gestreute Intensität $I \sim D \cdot e^{-\mu D}$ hat bezüglich der Probendicke D Extremaleigenschaften:



Für Transmission ergibt sich daher:

$$D_{\text{opt}} = \frac{1}{\mu} \quad (21)$$

Das Intensitätsmaximum bei D_{opt} verläuft flach. Daher braucht die optimale Probendicke nicht sehr genau eingehalten zu werden, um maximale Streuintensität zu erreichen.

3.2.2. Optimale Wellenlänge.

Bei Ausmessung einer Probe optimaler Dicke hängt die Streuintensität von der Wellenlänge in folgender Weise ab:

$$dI \sim I_0(\lambda) \frac{\lambda^4}{\mu(\lambda)} \quad (22)$$

Zwischen den Absorptionskanten ist $\mu(\lambda) \sim \lambda^3$. In diesem Gebiet muß eine optimale Wellenlänge das Produkt $\lambda \cdot I_0(\lambda)$ maximal machen.

Mit hohen Leuchtdichten werden in Röntgenröhren nur charakteristische K_α , L_α , ... Strahlungen erzeugt. Die jeweiligen Wellenlängen werden durch das Anodenmaterial der Röhre bestimmt. Von diesem hängt die erreichbare Leuchtdichte über folgende Eigenschaften ab:

Elektrische Belastbarkeit

$$\left[\frac{\text{Elektrische Leistung}}{\text{Brennfleckfläche}} \right]$$

Quantenausbeute

$$\left[\frac{\text{Erzeugte Röntgenquanten}}{\text{Elektron}} \right]$$

Absorption der erzeugten Strahlung in der Anode.

Die Verwendung von CuK_α -Strahlung erweist sich in solchen Fällen als optimal, wo mit dieser Wellenlänge kein hoher Fluoreszenzuntergrund angeregt wird; denn die meisten K_α -Quanten pro Flächeneinheit werden mit einer Kupferanode erzeugt /6/.

Die maximale elektrische Belastung beträgt etwa 2 kW/mm^2 bei den besten Normalfokus-Röhren und 25 kW/mm^2 bei Drehanoden-Röhren /7/. Diese Werte sind bezogen auf die scheinbare Brennfleckfläche bei Betrachtung unter einem Winkel von 6° .

Mit Drehanodenröhren, die mit Kupferanoden arbeiten, können daher die höchsten Leuchtdichten erreicht werden. Sie betragen bei

$$\lambda_{\text{opt}} = \lambda_{\text{CuK}_\alpha} = 1,5 \text{ \AA} \quad (23)$$

im Dauerbetrieb maximal

$$I_0(1,5 \text{ \AA}) = 10^{17} \left[\frac{\text{K}_{\alpha 1,2}\text{-Quanten}}{\text{cm}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{sterad}} \right] \quad (24)$$

Durch Verwendung dieser optimalen Wellenlänge können auch folgende Forderungen erfüllt werden:

Der in Transmission gut zugängliche Streuwinkelbereich $\varepsilon \leq 60^\circ$ überdeckt den gesamten auszumessenden $\vec{q}$ -Bereich $|\vec{q}| \leq 5 \text{ \AA}^{-1}$.

Die optimalen Probendicken sind durch elektrochemische Abdünnverfahren auch bei Einkristallen herstellbar /8/.

$$\begin{aligned} D_{\text{opt}} (\text{Al}) &= 76 \text{ } \mu\text{m} \\ D_{\text{opt}} (\text{Cu}) &= 21 \text{ } \mu\text{m} \\ D_{\text{opt}} (\text{Nb}) &= 8 \text{ } \mu\text{m} \end{aligned}$$

Proben dieser Dicke können mit hoher Strahlstromdichte am 3 MeV-Elektronenbeschleuniger bei 5 K Bestrahlungstemperatur bestrahlt werden. Innerhalb kurzer Bestrahlungszeit sind Frenkeldefektkonzentrationen von einigen 10^{-4} zu erreichen.

3.2.3. Optimale Streugeometrie.

Die Streuintensität nimmt proportional mit der Probenfläche zu. Eine Meßanordnung ist daher auch hinsichtlich der Meßzeit optimal ausgelegt, wenn sie bei vorgegebener Streuwinkelauflösung die Ausleuchtung möglichst großer Proben gestattet.

Für ein kleines Flächenelement der Probe zeigt eine genauere Rechnung für den betrachteten Fall $d\varepsilon = d\varphi$, daß maximale Streuintensität im Detektor nur dann auftritt, falls die Winkelunschärfen $d\varepsilon_0$ und $d\varepsilon_D$ in den beiden Raumwinkeln $d\Omega_0$ und $d\Omega$ zur Quelle und zum Detektor gleich groß sind. Die Winkelauflösung ergibt sich dann für das Flächenelement zu:

$$\frac{d\varepsilon_{\text{opt}}}{\lambda} = d\varepsilon_0 = d\varepsilon_D \quad (25)$$

Hieraus ergibt sich für den Streugeometriefaktor f_G :

$$f_{G_{\text{opt}}} = 1 \quad (26)$$

Bei endlichen Probenflächen verschlechtert die zusätzliche Streuwinkelunschärfe infolge der Streuung aus verschiedenen Probengebieten die durch die beiden Raumwinkel nach Glg. (19) gegebene Auflösung.

Um mit einer großen Probe die gleiche Auflösung wie für ein

kleines Flächenelement zu erzielen, müssen daher die Raumwinkel zur Quelle und zum Detektor kleiner gemacht werden, was einen Intensitätsverlust mit sich bringt. Dies kommt in Glg. (20) dadurch zum Ausdruck, daß $f_G < 1$ wird.

Große Proben sollten daher zum Erreichen einer möglichst hohen Streuintensität so ausgeleuchtet werden, daß $f_G \approx 1$ wird. Dies bedeutet, daß die Streuwinkelunschärfe infolge Streuung aus verschiedenen Probengebieten keinen großen Beitrag zur Auflösung geben darf. Letztere sollte vorwiegend durch die Winkelunschärfe in den beiden Raumwinkeln zur Quelle und zum Detektor verursacht werden.

Diese Forderung nach annähernder Unabhängigkeit des Streuwinkels von der Lage der streuenden Teilchen in großen Proben kann bei einfachen Blendenanordnungen durch große Abstände Quelle-Probe und Probe-Detektor erreicht werden, was im optimalen Fall sehr große Röntgenquellen erfordert oder die Benützung von Fokussierungsgeometrien.

Im letzten Fall trifft bei großen Proben der Primärstrahl zwar unter verschiedenen Einfallswinkeln auf die Probe, wird aber im Idealfall auf der gesamten Probenfläche unabhängig vom Ort des streuenden Teilchens in der Probe unter gleichem Winkel gestreut. Die verschiedenen Einfallswinkel der Primärstrahlung wirken bezüglich der Auflösung wie eine Probendrehung, d.h. wie ein Mosaikspread in der Probe. Daher werden fokussierende Geometrien vorwiegend bei der Untersuchung von polykristallinen Proben angewendet, wo der Öffnungswinkel das Auflösungsvermögen nicht verschlechtert. Bei einkristallinen Proben geht der Öffnungswinkel einer fokussierenden Anordnung in die Auflösung ein und kann daher nicht beliebig groß gemacht werden.

Bei der Ausmessung der diffusen Streuung großer Einkristallproben erfordern kleine Öffnungswinkel β bzw. große Abstände Probe-Röntgenröhre auch große Brennfleckflächen. Eine optimale Geometrie setzt daher in diesem Fall den Einsatz von Drehanodenröhren sehr hoher Leistung in auch räumlich sehr großen

Streugeometrien voraus.

Zur Verdeutlichung sind in der folgenden Abbildung zwei Streugeometrien gegenübergestellt, in denen verschieden große kreisförmige Proben ausgeleuchtet werden.

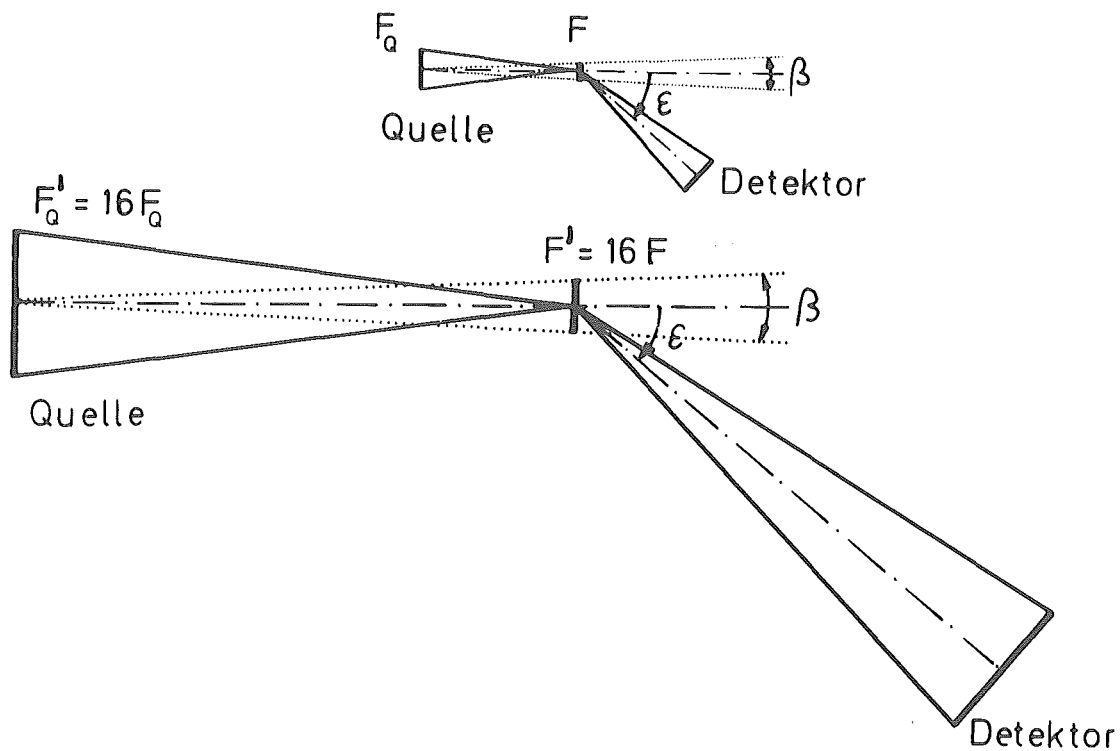


Abb. 2: Intensitätsgewinn durch Ausleuchtung größerer Proben bei unveränderter Auflösung.

Beide Anlagen unterscheiden sich auflösungsmäßig nicht, da die Öffnungswinkel β (= Streuwinkelunschärfe infolge Streuung aus verschiedenen Probengebieten) und die Streuwinkelunschärfen in den gleich großen Raumwinkeln zur Quelle und zum Detektor für beide Geometrien gleich groß sind.

Da jedoch die auf den Detektor fallende Streuintensität proportional mit der Probenfläche zunimmt und letztere sich in beiden Anlagen um den Faktor 16 unterscheidet, sind in der größeren Anlage Messungen in einer um den Faktor 16 kürzeren Zeit möglich. Voraussetzung ist allerdings, daß auch eine 16mal größere Quelle mit unveränderter Leuchtdichte zur Verfügung steht.

3.3. Minimale Meßzeit.

Durch Einsetzen der maximal im Detektor erreichbaren Streuintensität in die Meßzeitformel Glg. (12) erhält man für Lochblendenanordnungen und für punktfokussierende Geometrien die zur Bestimmung von $\frac{d\sigma}{d\Omega}(\vec{x})$ mindestens erforderliche Meßzeit:

(Transmission $\epsilon \rightarrow 0$; $d\epsilon = \frac{\lambda}{2\pi} d\kappa$; $d\vec{x} \rightarrow (d\kappa)^2$)

$$t_{\min} = 2^{11} \pi^4 \frac{\sigma_u}{\sigma_E} \frac{1}{\left(\frac{\Delta\sigma_E}{\sigma_E}\right)^2} \frac{e^{\mu(\lambda)}}{w I_0 F n \frac{d\sigma}{d\Omega}(\vec{x}) \lambda^4 d\kappa^4} \quad (27)$$

Diese Gleichung ist unabhängig von der Art der zur Messung von $\frac{d\sigma}{d\Omega}(\vec{x})$ verwendeten Strahlung.

Daher können nach Glg. (27) für Röntgen- und auch Neutronenstreuexperimente die für Messungen im Zwischenreflexgebiet erforderlichen Meßzeiten größenordnungsmäßig abgeschätzt und miteinander verglichen werden. Für diesen Vergleich wird Glg. (27) zweckmäßig umgeschrieben zu: ($c = \text{Defektkonzentration}$)

$$t_{\min} \sim \frac{1}{c^2} \cdot \frac{\sigma_{\text{UNT}}}{\sigma_{\text{coh}}} \cdot \frac{1}{\sigma_{\text{coh}}} \cdot \frac{A}{\rho/\mu} \cdot \frac{1}{I_0} \cdot \frac{1}{\lambda^4} \cdot \frac{1}{F} \quad (28)$$

Hierbei ist σ_{coh} in beiden Fällen der kohärent elastische Streuwirkungsquerschnitt pro Atom. σ_{UNT} ist bei Neutronen der inkohärent elastische Anteil infolge Isotropen- und Spin-Unordnung. Bei Röntgenstreuexperimenten kann die inelastische thermisch diffuse Streuung nicht wie bei der Messung mit Neutronen vom Meßeffect abgetrennt werden. Daher setzt sich σ_{UNT} in diesem Fall aus dem Wirkungsquerschnitt für thermisch diffuse Streuung und aus dem Wirkungsquerschnitt der nur mit großem Aufwand abtrennbaren inelastischen Compton-Streuung zusammen.

Für die Leuchtdichte I_0 kann für die Röntgenmethode als typischer Wert die $\text{CuK}\alpha$ -Leuchtdichte der in der später beschriebenen Anlage verwendeten Drehanodenröhre benützt werden. Die sich durch den Abstand der $\text{K}\alpha_1$ und $\text{K}\alpha_2$ -Linie ergebende Energieunschärfe $\Delta\lambda_{\alpha_1\alpha_2}/\lambda \approx 10^{-3}$ ist für Messungen im Zwischenreflexgebiet um mehr als eine Größenordnung besser als notwendig.

Für das Neutronenstreuexperiment kann ein Hochflußreaktor mit einem thermischen Fluß $\phi_{\text{th}} = 10^{15} \left[\frac{\text{n}}{\text{sec} \cdot \text{cm}^2} \right]$ als Quelle vorausgesetzt werden.

Die günstigste Wellenlänge ($I \sim \lambda^4$!) der Neutronen liegt für Messungen im Zwischenreflexgebiet bei etwa 4 Å. Die entsprechenden $\vec{K}_0$ -Vektoren sind dann gerade lang genug, um dieses Gebiet mit den möglichen Streuvektoren $\alpha \leq 2 K_0$ ausmessen zu können. Zur Erhöhung der Leuchtdichte kann das Energiespektrum der Reaktorneutronen in einer "kalten Quelle" verschoben werden.

Die Leuchtdichte beträgt dann, auf ein Energieintervall

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = 0,1 \text{ bezogen, etwa } 3 \cdot 10^{12} \left[\frac{\text{n}}{\text{sec} \cdot \text{cm}^2 \cdot \text{sterad}} \right] / 23/.$$

Während mit der großflächigen Neutronenquelle noch etwa 10 cm^2 große Proben mit der erforderlichen Auflösung $\Delta\alpha \approx 10^{-1} \text{ Å}^{-1}$ ausgeleuchtet werden können, ist die vergleichbar auszuleuchtende Probenfläche im Röntgenexperiment auch bei Verwendung von Hochleistungsröhren mit 100 kW Leistung auf wesentlich kleinere Werte von etwa $0,4 \text{ cm}^2$ begrenzt.

Die Meßzeit ist bei beiden Methoden von den Wirkungsquerschnitten und dem Absorptionsvermögen der untersuchten Elemente abhängig. Die mit Neutronen erforderlichen Meßzeiten unterscheiden sich von Element zu Element sehr stark, entsprechend den verschiedenen großen inkohärenten Wirkungsquerschnitten. In Silber und Gold beispielsweise ist sowohl der inkohärente Wirkungsquerschnitt als auch das Absorptionsvermögen so groß, daß Punktfekte in diesen beiden Elementen im Zwischenreflexgebiet mit Neutronen nicht ausgemessen werden können.

Im Röntgenexperiment hängt die Meßzeit in systematischer Weise von der Kernladungszahl des untersuchten Elements ab. Die Meßzeit ist näherungsweise proportional zu $\frac{\sigma_{\text{unt}}}{\sigma_{\text{coh}}}$, da die Größe

$\frac{\mu \cdot A}{\xi \cdot \sigma_{coh}}$ bei den verschiedenen Elementen annähernd konstant ist.

Für $\lambda = \lambda_{CuK\alpha}$ ergibt sich bei $\alpha = 2,5 \text{ \AA}^{-1}$ beispielsweise:

Element	$\frac{\mu A}{\xi \cdot f^2}$
Al	16,5
Cu	7,2
Nb	14,1
Ag	17,7
Au	10

Im Zwischenreflexgebiet ist die Untergrundstreuung mit Ausnahme der schweren Elemente vorwiegend durch die Compton-Streuung gegeben. Sie ist proportional zur Kernladungszahl Z und nimmt mit wachsender Kernladungszahl langsamer zu als die elastische Streuung $f^2 \sim Z^2$. Die Meßzeit nimmt daher im Röntgenexperiment entsprechend dem günstiger werdenden Untergrund/Effekt-Verhältnis:

$$\frac{\sigma_{UNT}}{\sigma_{coh}} \sim \frac{\sigma_{compt}}{f^2} \sim \frac{Z}{Z^2} \sim \frac{1}{Z} \quad (29)$$

mit steigender Kernladungszahl ab. Bei den schweren Elementen wird das Verhältnis $\frac{\sigma_{UNT}}{\sigma_{coh}}$ unabhängig von Z , da die Compton-Streuung dort kleiner als die thermisch-diffuse Streuung wird, die wie die elastische Streuung eine Z^2 -Abhängigkeit hat.

In der folgenden Tabelle 1 sind für die drei Elemente Aluminium, Niob und Blei die Zahlenwerte für die meßzeitbestimmenden Parameter in Glg. (28) sowohl für ein Neutronen- als auch ein Röntgenstreuexperiment gegenübergestellt (Messung im Zwischenreflexgebiet $\alpha \approx 2,5 \text{ \AA}^{-1}$; $\Delta\alpha \approx 0,1 \text{ \AA}^{-1}$):

Element	Neutrons			X - rays		
	Al	Nb	Pb	Al	Nb	Pb
σ_{coh} [barn]	1,5	6	11	80	1000	4500
$\frac{\sigma_{\text{coh}}}{\sigma_{\text{inc}}}$	150	1000	3000	20	80	220
$1/\mu$ [cm]	8	4	16	$8 \cdot 10^{-3}$	$8 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-4}$
F [cm ²]		10			0,4	
$I_0 \left[\frac{\text{quants}}{\text{sec cm}^2 \text{sr}} \right]$		$3 \cdot 10^{12}$	$(\lambda = 4 \text{ \AA})$		$4 \cdot 10^{16}$	
$(\lambda/\lambda_{\text{CuK}\alpha})^4$		46	$(\lambda = 4 \text{ \AA})$		1	
Product of all factors	$2,5 \cdot 10^{18}$	$3 \cdot 10^{19}$	$7,3 \cdot 10^{20}$	$2 \cdot 10^{17}$	$1 \cdot 10^{18}$	$6,3 \cdot 10^{18}$
Measuring-time [arb. units]	0,4	0,03	0,002	5	1	0,16

Tabelle 1: Vergleich von Meßzeiten bei Neutronen- und Röntgenstreuexperimenten

Diese grobe Abschätzung zeigt für die betrachteten Elemente, daß die im Zwischenreflexgebiet zur Punktdefektstruktur-Untersuchung erforderlichen Meßzeiten bei Neutronen- und Röntgenstreuexperimenten in der gleichen Größenordnung liegen. Beide Methoden erfordern den gleichen meßtechnischen Aufwand (Vielfachzählersysteme, Datenverarbeitung), jedoch liegen Installations- und Betriebskosten einer Hochleistungsrontgenröhre wesentlich niedriger als die eines Reaktors.

Die Meßzeiten an der im folgenden beschriebenen Röntgenanlage betragen für Aluminium etwa 10 Stunden bei 0,05% Zwischengitteratomen, einer Wirkungsquerschnittgenauigkeit von einigen Prozenten und einer Auflösung Δx von etwa $0,15 \text{ \AA}^{-1}$. Messungen an Atomen mit höherer Kernladungszahl sind wegen des günstigeren Untergrund/Effekt-Verhältnisses in kürzeren Zeiten möglich.

4. Beschreibung der Meßanlage.

4.1. Prinzipielle Gesichtspunkte.

Im Zwischenreflexgebiet erlaubt die langsame Änderung der diffusen Streuung mit dem Streuwinkel eine intensitätsmäßig günstige Messung mit grober Winkel- und Energieauflösung. Infolge des schlechten Untergrund/Effekt-Verhältnisses kommt die Meßzeit trotzdem erst in eine praktisch realisierbare Größenordnung, wenn große Proben von etwa 1 cm^2 optimal ausgeleuchtet werden, was die Anwendung großer Röntgenquellen hoher Leuchtdichte voraussetzt.

Die kurzwellige Röntgenbremsstrahlung soll in den Proben keinen hohen Fluoreszenzuntergrund anregen. Dies kann durch einen Mono-chromator zwischen Röhre und Probe verhindert werden, der dann eine Fokussierungsgeometrie nahelegt.

Eine Optimierung aller freien Parameter führt dann immer noch zu Meßzeiten von einigen Stunden für 1 Wert $I(\vec{x})$. Eindeutige Aussagen über Defektlage und Nahfeldstruktur erfordern einige hundert Werte $I(\vec{x})$. Wenn die Gesamtmeßzeit eine Woche nicht überschreiten soll, muß detektorseitig ein Vielfach-Zählersystem verwendet werden, mit dem sich für verschiedene $\vec{x}$ -Werte viele Werte $I(\vec{x})$ gleichzeitig messen lassen.

Sehr hohe Anforderungen an die Langzeitkonstanz der Zählernachweiswahrscheinlichkeiten sind nur dadurch zu vermeiden, daß sehr oft jeweils für kurze Zeiten die Probe gegen eine konstant bleibende Vergleichsprobe ausgemessen wird. Liegen diese Zeiten bei einigen Minuten und werden 100 Detektoren verwendet, so müssen während einer Woche Meßzeit 200.000 mal die Zählraten von diesen 100 Detektoren aufsummiert und die Ergebnisse für die weitere Verarbeitung gespeichert werden.

Zur Datenverarbeitung ist deshalb zumindest der on-line Anschluß eines Kleinrechners mit Magnetbandspeicher an das Detektorsystem nötig. Die weitere Datenreduzierung der 200.000 Einzelmessungen auf den gesuchten Wirkungsquerschnitt der defektinduzierten

Streuung ist nur in größeren Rechnern möglich. Daher liegt eine on-line Verbindung Kleinrechner/Großrechner nahe.

4.2. Ausführung.

Abbildung 3 zeigt schematisch den experimentellen Aufbau:

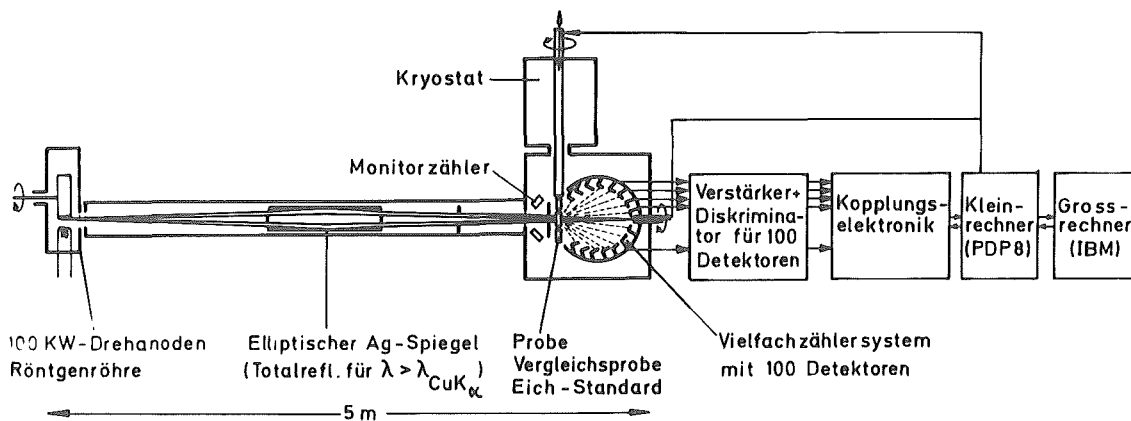


Abb. 3: Anordnung zur Messung der diffusen Röntgenstreuung im Zwischenreflexgebiet.

Die zur Messung benutzte Kupfer- K_{α} -Strahlung wird nach Verlassen einer 100 kW-Drehanodenröhre durch einen rotationselliptischen Spiegel in einen 5 m entfernten Brennpunkt fokussiert. In den aus Absorptionsgründen vollständig im Vakuum verlaufenden Strahlengang können Probe, Vergleichsprobe oder ein Eichstandard gebracht werden. Mit Hilfe eines Kryostaten kann die Proben temperatur auf einen Wert im Bereich von 5 bis 500 K eingeregelt werden.

Auf der Fokussierungskugel wird die gestreute Strahlung mit 100 Einzeldetektoren ausgemessen. Die Detektorsignale laufen dabei über eine Zwischenelektronik direkt in den Kernspeicher eines PDP8-Rechners und werden im angeschlossenen Großrechner on-line bis zum gesuchten Wirkungsquerschnitt verarbeitet. Fotografien der Anlage sind in den Abb. 4 bis 6 zu sehen.

Abb. 4 zeigt den Meßraum mit der gesamten elektronischen Ausrüstung. Es schließt sich von links nach rechts an: ein Schrank mit 100 Hauptverstärkern und Einkanal-Diskriminatoren, der Kleinrechner mit 2 Magnetbandeinheiten und einem X-Y-Schreiber, ein

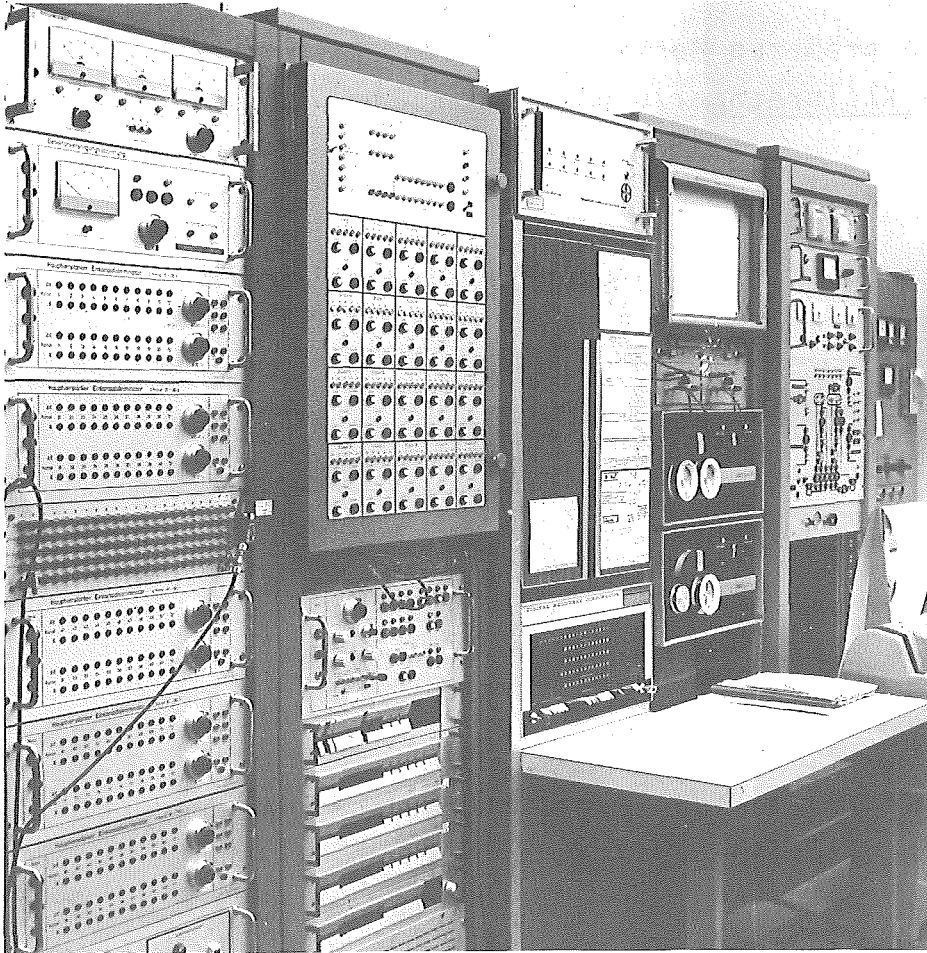


Abb. 4:
Elektronische
Ausrüstung der
Meßanlage.

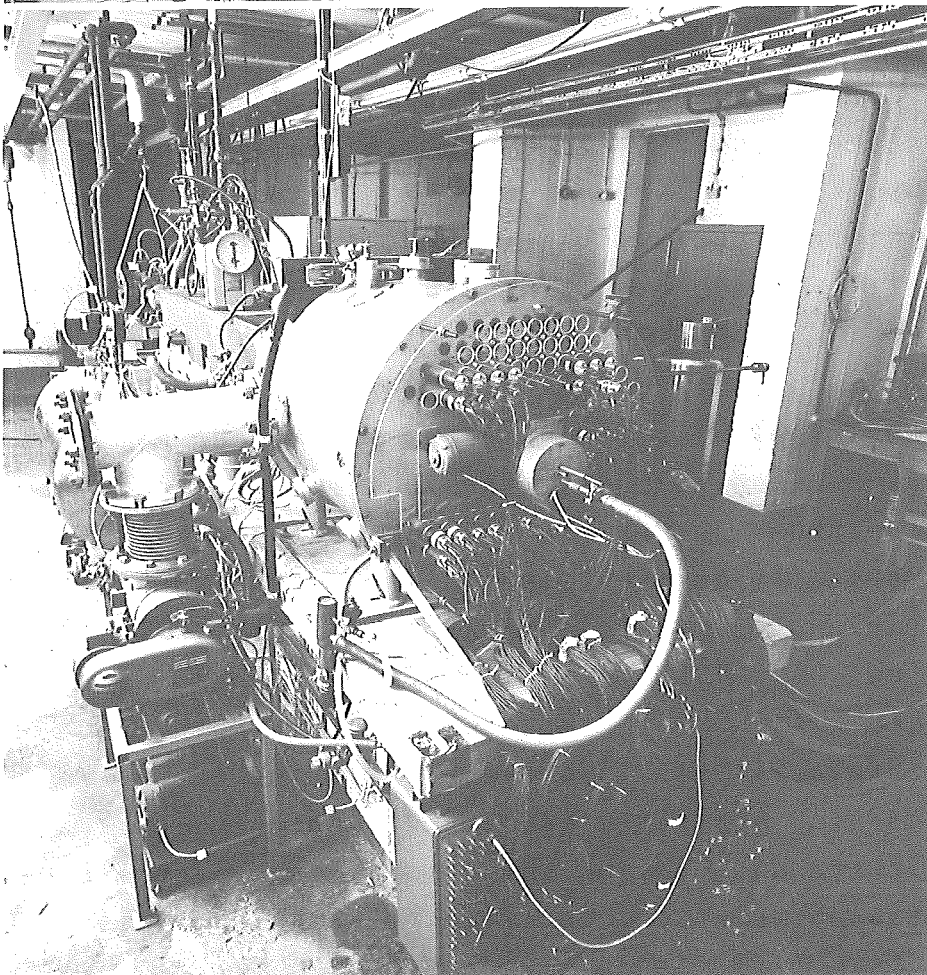


Abb. 5:
Meßanlage

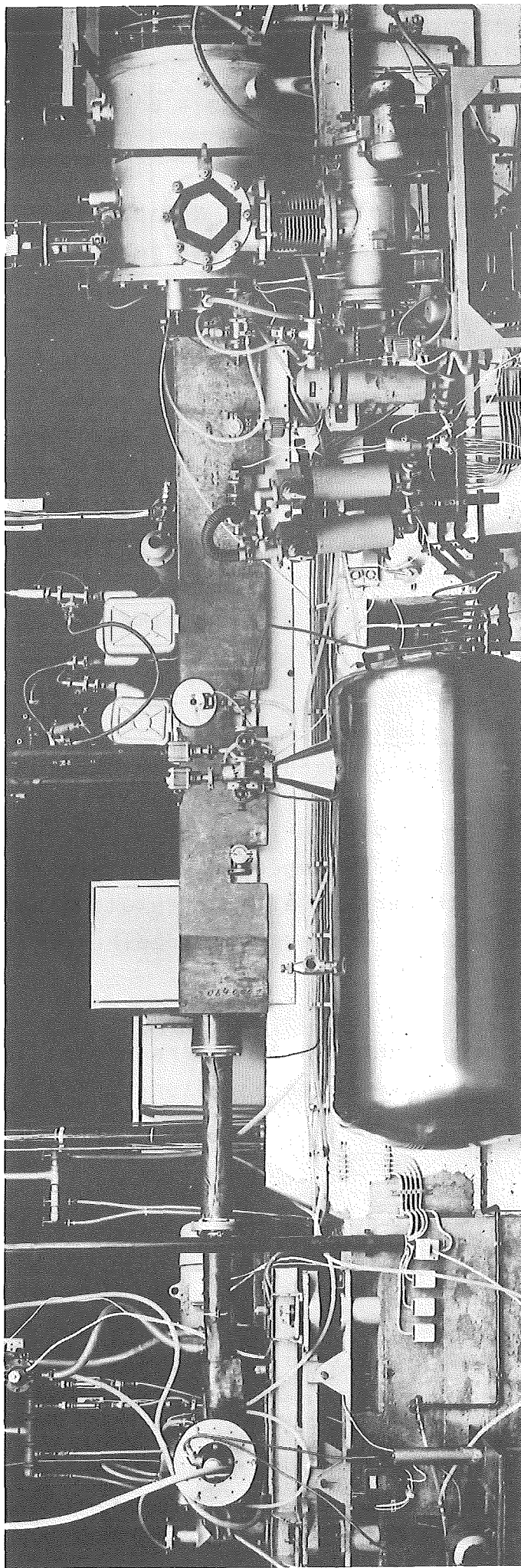


Abb. 6: Anlage zur Messung der diffusen Röntgenstreuung im
Zwischenreflexgebiet.

Schrank für das Vakuumkontrollsystem sowie ein Steuerschrank für die 100 kW-Stromversorgungsanlage.

Die Abb. 5 und 6 zeigen die eigentliche Meßapparatur. Im Vordergrund der Abb. 5 ist die Meßkammer mit den aufgesteckten Vorverstärkern und den Signalleitungen zu sehen, welche in den Meßraum führen. Abb. 6 zeigt eine Seitenansicht der Anlage. Von links nach rechts folgend ist zuerst die 100 kW-Drehanodenröhre (Blick auf die Kathode) zu sehen. In dem sich anschließenden Kasten ist der Spiegel untergebracht. Rechts schließt sich dann die Meßkammer an. Im Vordergrund ist in der Mitte ein 500 l Tank für flüssigen Stickstoff zur Detektorkühlung zu sehen, während rechts das Pumpensystem für die Meßkammer ins Auge fällt.

Im folgenden wird etwas näher auf die experimentellen Einzelheiten eingegangen.

4.3. Experimentelle Einzelheiten.

4.3.1. 100 kW-Hochleistungs-Drehanodenröntgenröhre.

Bei Baubeginn der Anlage wurden auf dem Markt nur Drehanodenröhren mit Leistungen bis zu 10 kW angeboten. Der Wunsch nach einer um eine Größenordnung stärkeren Quelle bedeutete daher die Entwicklung einer 100 kW-Röhre. Aufbau und Einzelheiten sind in /7,9/ beschrieben.

Die Messungen wurden mit einem 3 x 30 mm Brennfleck gemacht, der unter 6° Strahlaustrittswinkel eine auflösungsmäßig wirksame Größe von 3 x 3 mm hatte.

4.3.2. Spiegel.

Aufgrund seines hohen Reflexionsvermögens von etwa 70 % für Kupfer- K_{α} -Strahlung wird ein Silber-Spiegel dazu benutzt, den Röhrenbrennfleck auf die Detektoren abzubilden. Er hat dazu die Form eines langgestreckten Rotationsellipsoids, bei dem von einem Brennfleck ausgehend die Röntgenstrahlen in den zweiten Brennfleck fokussiert werden.

Die Röntgenstrahlen treffen auf der gesamten Spiegeloberfläche mit etwa gleichem Einfallswinkel auf. Durch geeignete Wahl des Achsenverhältnisses wurde er so groß wie der Grenzwinkel der Totalreflexion für die Kupfer- K_{α} -Strahlung gemacht ($\theta_c (1,5 \text{ \AA}) = 22'$). Da der Grenzwinkel proportional mit der Röntgenwellenlänge abnimmt, wird die kürzer wellige Bremsstrahlung nicht auf die Probe reflektiert und kann die Messung nicht durch Fluoreszenz- und Braggreflex-Untergrund stören.

Der Krümmungskreis der Ellipse hat einen Radius von 400 m, d.h. der Durchmesserunterschied zwischen Mitte und Rand des 80 cm langen Spiegels beträgt nur etwa 400 μm .

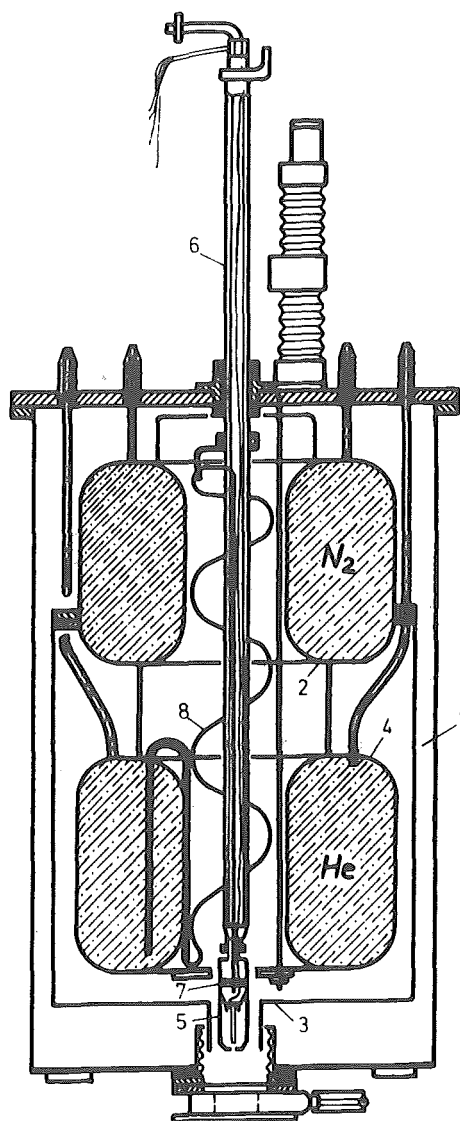
Diese hohen Anforderungen an die Maßhaltigkeit konnten durch ein Positiv/Negativ-Herstellungsverfahren erfüllt werden:

Der Spiegel ist längsgeteilt und besteht aus zwei, mit einer dünnen Silberschicht bedampften Epoxyharzabgüssen eines Metallpositivs, in das maschinell die gewünschte Form eingeschliffen wurde. Nach Vermessen mit optischen Methoden konnten aufgetretene Formabweichungen durch gezielten Materialbetrag beseitigt werden. Das Positiv wurde anschließend elektrolytisch vernickelt, um eine hohe Oberflächengüte zu erreichen.

4.3.3. Kryostat.

Einen Querschnitt durch einen Kryostaten zeigt die Abbildung 7. In einem Vakuummantel sind übereinander zwei toroidförmige Behälter angebracht, von denen der obere mit flüssigem Stickstoff zur Kühlung eines Wärmeschildes gefüllt werden kann. Das zweite Reservoir dient zur Aufnahme von flüssigem Helium für die Probenkühlung.

Die Probe hängt an einem Rohr im Kryostatenvakuum und kann indirekt über einen Wärmetauscher im Probenhalter gekühlt werden. Dazu wird Helium über eine Wellenschlauchspirale aus dem Behälter in den Probenhalter und von dort durch das Rohr nach außen abgepumpt. Ein von der Probentemperatur gesteuertes elektrisches Abgas-Regelventil gestattet in Verbindung mit einer Heizung im Probenhalter die Einstellung der gewünschten Temperatur.

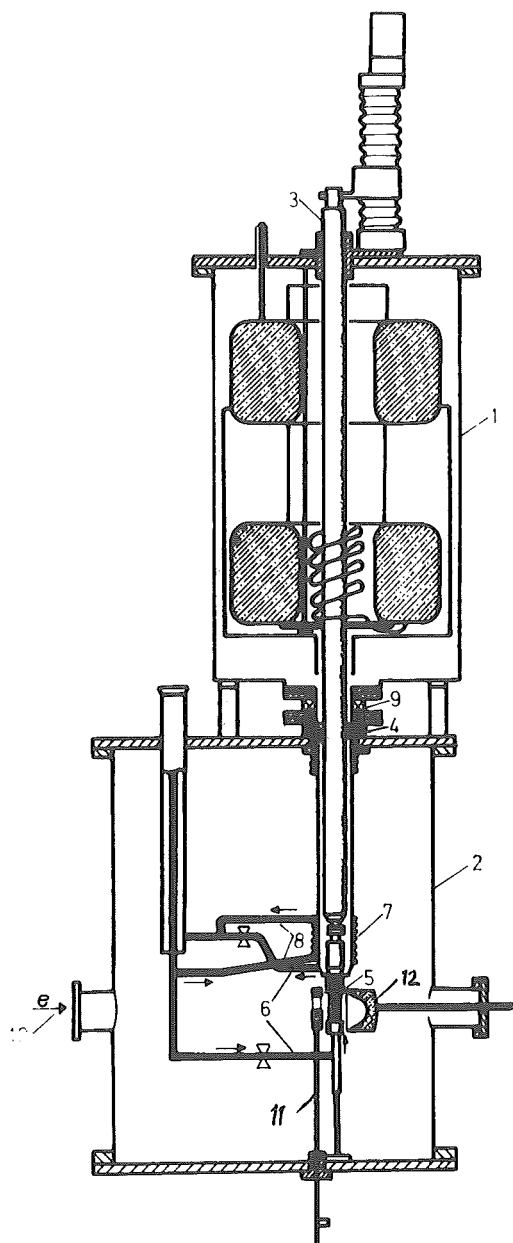


- 1 Vakuummantel
- 2 Toriodförmiger Behälter (N₂ Reservoir)
- 3 Wärmeschild
- 4 Toriodförmiger Behälter (He Reservoir)
- 5 Probe mit Probenhalter
- 6 Zentralrohr
- 7 Wärmetauscher
- 8 Wellerschlauchspirale

Abb. 7: Kryostat

Der Kryostat wird für den Probentransport vom Beschleuniger zur Meßapparatur, die Bestrahlung und für die Messung gebraucht. Er wird zu diesem Zweck allein betrieben oder auf den Bestrahlungskryostaten bzw. die Meßkammer aufgesetzt.

Die Bestrahlungsanordnung ist in Abbildung 8 gezeigt. Bei Bestrahlungsbeginn wird die Probe durch Absenken des Kryostaten-Zentralrohres in die gezeichnete Bestrahlungsposition gebracht. Nachdem durch eine Spezialdichtung der Kryostat vakuummäßig abgesperrt worden ist, wird die Bestrahlungskammer mit flüssigem Helium geflutet. Die Probe wird während der Bestrah-



- 1 Meßkryostat
- 2 Bestrahlungskryostat
- 3 Zentralrohr
- 4 Spezialdichtung
(aufblasbar)
- 5 Bestrahlungskammer
- 6 Kühlkreislauf
direkte Probenkühlung
- 7 Kühlschlange
- 8 Kühlkreislauf
indirekte Probenkühlung
- 9 Bodenventil
- 10 Elektronenstrahl
- 11 Blende
- 12 Faraday-Käfig

Abb. 8: Bestrahlungsanordnung.

lung durch vorbeiströmendes Helium direkt gekühlt.

Bei Bestrahlungsende wird auf indirekte Probenkühlung durch den Kryostaten übergangen und die Bestrahlungskammer auf Hochvakuum gebracht. Nach Lösen der Dichtung zwischen Kryostat und Bestrahlungskammer wird die Probe in den Kryostaten gezogen. Nach Schließen des Bodenventils wird der Kryostat abgehoben und zur Meßapparatur transportiert. Dort wird er zur Messung auf die Meßkammer gesetzt wie dies in Abb. 9 gezeigt ist. Nachdem der Raum zwischen den zwei Verbindungsventilen evakuiert worden ist,

werden diese geöffnet und die Probe wird aus dem Kryostaten in die Meßposition abgesenkt.

4.3.4. Meßkammer.

Der Aufbau der Meßkammer geht aus Abbildung 9 hervor, die einen Querschnitt durch die Meßkammer mit aufgesetztem Kryostaten zeigt.

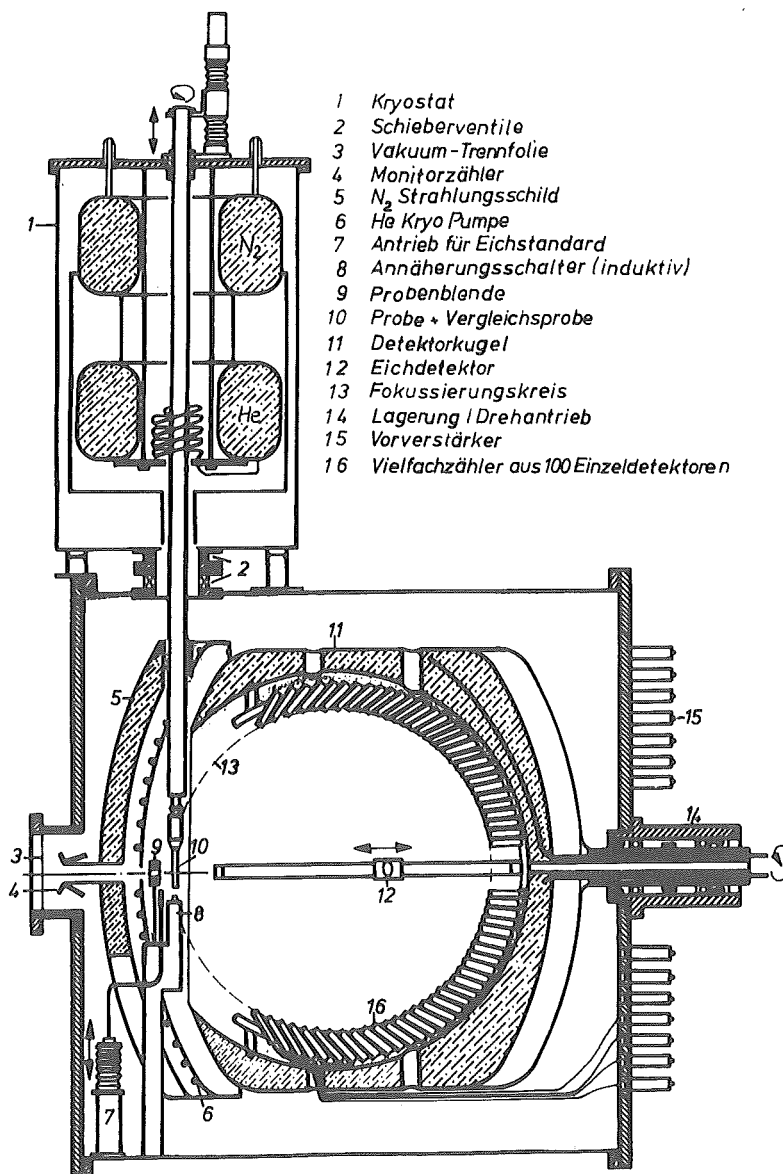


Abb. 9: Meßkammer mit aufgesetztem Kryostaten.

Das zylindrische Außengehäuse der Meßkammer wird fast vollständig durch zwei Behälter für flüssigen Stickstoff ausgefüllt. Diese bilden zusammen eine Hohlkugel. Sie wirkt als Strahlungsschild für die Probe, die sich im Innenraum befindet.

Ein Teil der Kugel weist eine Öffnung auf, durch welche der Primärstrahl in den Innenraum gelangen und dort von der Probe gestreut werden kann. Dieser Kugelteil ist so ausgebildet, daß es zwei Si(Li)-Detektoren tragen und zum Betrieb bei hoher Energieauflösung kühlen kann. Sie messen als Monitorzähler die Streustrahlung, die der Primärstrahl in einer Trennfolie erzeugt. Diese ist zur Abdichtung des Streukammerhochvakuums gegen das Vorvakuum um Spiegel und Blendensystem erforderlich.

Der übrige Teil der Kugel kann im Endflansch der Meßkammer rechnergesteuert gedreht werden. Er ist innen mit dem Vielfachzählersystem zur Ausmessung der diffus gestreuten Strahlung bestückt (siehe Abb. 10). Dieses Detektorsystem besteht aus Si(Li)-Einzeldetektoren (siehe Abb. 11), die auf Trägern beliebig angeordnet werden können. Die Träger sind in der mit flüssigem Stickstoff gekühlten Kugel befestigt, so daß ein gekühlter Detektor-Betrieb mit einer Energieauflösung von etwa 1,2 keV möglich ist.

Ein Detektor kann auf der gekühlten Innenfläche der Kugel bewegt werden. Dies erfolgt durch einen rechnergesteuerten Antrieb auf einer Bahn, die in Abb. 9 angedeutet ist. Ein Trieb sorgt dafür, daß die Detektorzählfläche bei allen Streuwinkeln auf die Probe gerichtet ist. Da dieser Detektor für Eichzwecke benötigt wird, wird für ihn im folgenden die Bezeichnung "Eichdetektor" verwendet.

Die Primärstrahlung muß auf ihrem Weg durch Strahlungsschild und Detektorkugel nicht durch Fenster hindurchtreten, da die Probe im Vakuum ausgemessen werden kann. Der Streuuntergrund ohne Probe wird daher nur durch Streuung an der Probenblende erzeugt. Sie liegt im Zwischenreflexgebiet mehr als zwei Größenordnungen unter der Streuung einer Aluminiumprobe und stört daher die Messungen nicht.

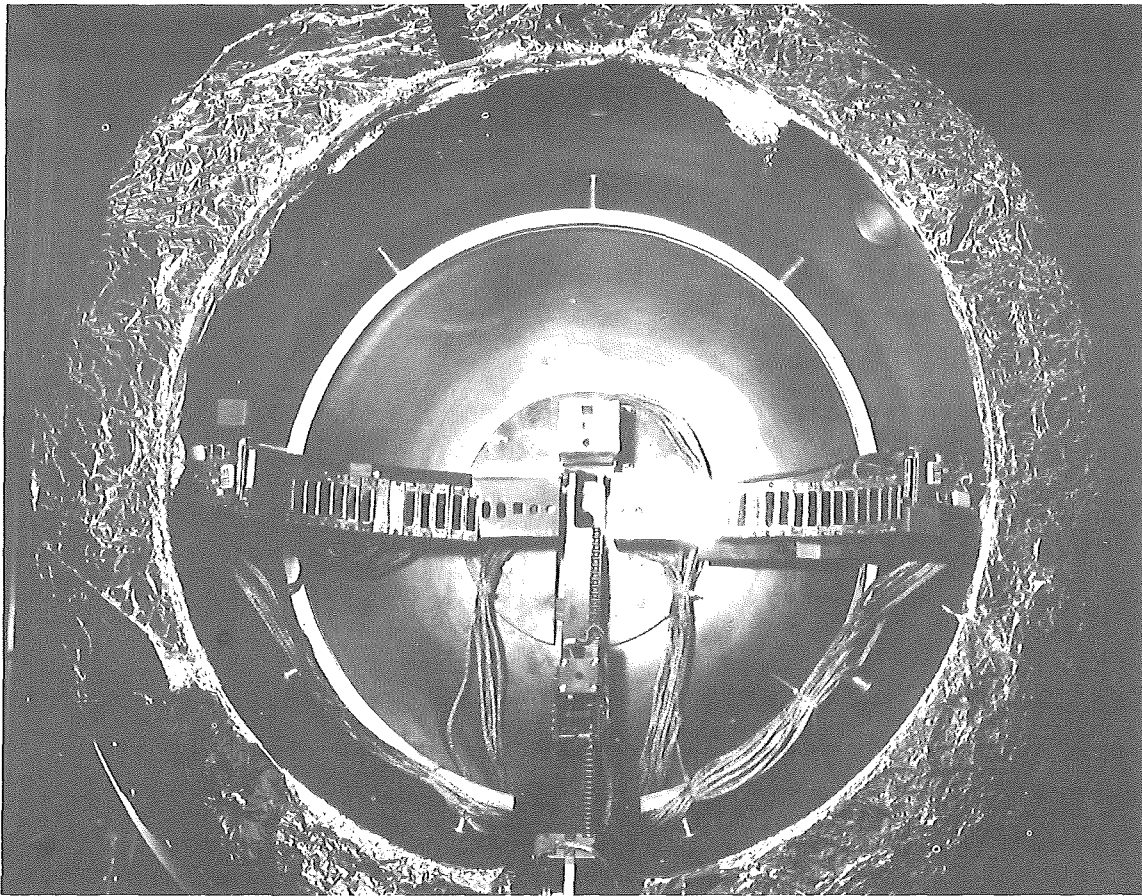


Abb. 10: Vielfachzählersystem

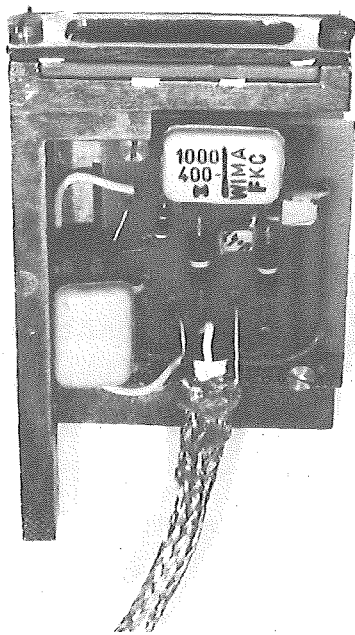


Abb. 11: Si(Li)-Detektor

Dieser geringe Untergrund wurde u.a. dadurch erreicht, daß Teile der Probenblende aus einem Aluminium-Einkristall bestehen. Sie kann im Gegensatz zu einer polykristallinen Blende so orientiert werden, daß der Streusaum des Primärstrahls keine Untergrunderhöhung durch Braggreflexionen hervorruft.

In den Strahl kann durch einen hydraulischen Hubmechanismus ein Eichstandard gebracht werden. Bei den vorliegenden Messungen war dies ein genau ausgemessener Al-

Einkristall, dessen Temperatur durch den Wasserkreislauf des Hydraulikantriebes thermostatisch wurde.

Die Positionierung von Probe und Vergleichsprobe erfolgt rechnergesteuert durch einen spielfreien Spindeltrieb auf dem oberen Kryostatenflansch. Durch diesen können die Proben in der Höhe bis auf $10\text{ }\mu\text{m}$ reproduzierbar positioniert werden. Durch Temperaturschwankungen verursachte Längenänderungen in der 1.20 m langen Rohrverbindung zwischen Probe und Antrieb sollten keinen Einfluß auf die Probenhöhe haben. Die Positionierung erfolgt daher in der Weise, daß die Probe vor jedem der drei Minuten langen Meßzyklen einen Fixpunkt anfährt und die Positionierung jedesmal von dort aus erfolgt. Dieser Fixpunkt ist der Schaltpunkt eines induktiven Annäherungsschalters. Er liegt einige mm über dem Schalter und wird durch Thermostatisierung bis auf einige μm stabilisiert.

Dieser Aufwand ist erforderlich, wenn auch mit nicht ganz gleichmäßig dicken Proben die Streuwirkungsquerschnitte genau gemessen werden sollen.

Die Probentemperatur liegt bei der Untersuchung von Frenkeldefekten bei etwa 8 K. Die Probe wirkt daher als Kryopumpe. Da die angeschlossene Turbomolekularpumpe in der Streukammer nur ein Endvakuum von etwa 10^{-6} Torr erzeugt, kondensierten bei der ersten Messung (A1 1) während der Meßzeit erhebliche Mengen von Restgasen auf der Probe. Sie waren Ursache für eine mit der Zeit zunehmende zusätzliche diffuse Streuung. Diese war nach einem Tag schon größer als die Defektstreuung und verursachte bei der Auswertung der Messung größere Fehler.

Um dies zu vermeiden, wurde vor der zweiten Messung (A1 2) in die Meßkammer eine zusätzliche Kryopumpe eingebaut, die ein Vakuum $< 10^{-8}$ Torr erzeugt. Sie besteht aus einem kreisförmigen Schild mit aufgelöteten Kühlschlangen, die durch temperaturregeltes Abpumpen aus einer Kanne mit flüssigem Helium gekühlt werden. Eine Zunahme der diffusen Streuung mit wachsender Meßzeit tritt jetzt in dieser geänderten Anordnung nicht mehr auf.

4.3.5. Elektronik.

Aus Kostengründen wurde die gesamte Zählelektronik in der KFA entwickelt. Die Pulse der 100 Detektoren laufen über zugehörige Vor- und Hauptverstärker in 100 unabhängige Einkanaldiskriminatoren, deren Fenster auf die 8 keV-Linie eingestellt sind.

Die ersten Stufen der Vorverstärker sind auf den Detektorträgern montiert. Dadurch können die Vorverstärker hinsichtlich Eingangskapazitäten und Arbeitstemperaturen mit optimaler Energieauflösung betrieben werden. Die zweiten Stufen befinden sich in röhrenförmigen Gehäusen, die auf die Außenseite des Meßkammerflansches aufgesteckt sind.

Die verstärkten Signale laufen anschließend über 15 m lange BNC-Kabel in den Meßraum zu den Hauptverstärkern und Diskriminatoren. Zum Einlesen der Ausgangssignale in den Rechner ist eine Zwischenelektronik ("Interface") notwendig. Sie muß den Datenfluß in den 100 Zählkanälen auf einen einzigen Datenkanal reduzieren, der dann als Transferkanal in die PDP8 dient.

Die Interface ist eine Eigenentwicklung. Sie ist aus Moduls der Firma DEC aufgebaut und besteht im wesentlichen aus 3 Teilen:

- 1) Einem Codierungssystem (Diodenmatrix), durch das jeder Kanal eine zugeordnete Adresse in ein 12 Bit Flip-Flop-Register setzen kann. Dieses dient als Adressen-Register für einen Increment-Data-Break der PDP-8. Jeder der 100 Detektoren kann auf diese Weise die 8 keV-Quanten innerhalb von $1,5 \mu s$ unter einer zugeordneten Adresse im Kernspeicher aufsummieren.
- 2) Einer Steuereinheit zur Bildung der nötigen Transfersignale und zur Verarbeitung von Adressen-Überläufen.
- 3) Einem elektronischen Verriegelungssystem, das unter Vermeidung von Prioritäten einzelner Kanäle jeweils einen Kanal zur Verarbeitung durchschaltet.

Da die Wortlänge der PDP-8 nur 12 Bit beträgt, erfolgt ein Überlauf der Detektoradressen nach jeweils 4096 Zählungen. Das Über-

laufsignal wird dazu benützt, die ersten 4 Bits der Detektoradresse auszutauschen und in einem zweiten Break-Zyklus den Inhalt einer zugeordneten Überlaufadresse aufzuaddieren. Diese hardwaremäßige Doppelwortbildung hat gegenüber der Überlaufverarbeitung durch ein Hintergrundprogramm den Vorteil wesentlich größerer Schnelligkeit: Es können auf diese Weise über die Interface pro Sekunde etwa 600.000 K_{α} -Quanten in den Rechner eingelesen werden. Dies ist besonders für die Untersuchung von Elementen mit hoher Elektronenzahl vorteilhaft, wo hohe Zählraten auftreten.

Über die Interface werden ferner die Motore für Proben- und Detektorbewegung angesteuert. Über einen Digital-Analog-Konverter erfolgt der Betrieb eines X-Y-Schreibers und eines Displays. Außerdem ist es möglich, den Rechner für Energieanalysen der Streustrahlung als Vielkanal-Pulshöhenanalysator zu betreiben.

Die Datenkanäle der PDP-8 können durch einen Multiplexer auch mit zwei Magnetbandeinheiten (DEC-Tape) oder über eine On-line-Verbindung mit den IBM-Großrechnern der KFA verbunden werden.

Ein weiterer Zugriff zu den Großrechnern ist über ein TSS-Terminal möglich.

4.4. Prüfung der Anlage.

Vor der ersten Messung wurde die gesamte Anlage auf ihre Leistungsfähigkeit hin untersucht.

Zuerst wurde nachgeprüft, ob der Spiegel tatsächlich die auf die elliptische Spiegeloberfläche fallende CuK_{α} -Strahlung aus dem Röhrenbrennfleck in einen 5 m entfernten Fokus reflektiert. Dessen berechnete Größe ist mit etwa 4 x 4 mm etwas größer als der 3 x 3 mm große Röhrenfokus, da bei der Reflexion der Strahlen aus dieser nicht punktförmigen Quelle Abbildungsfehler auftreten. Die tatsächlich auftretende Verbreiterung geht aus Abb. 12 hervor, die Fotos des Strahlquerschnitts sowie den berechneten Strahlengang zeigt. Dieser ist im oberen Teil in starker Vergrößerung der Querdimensionen dargestellt, während die Fotos im unteren Teil der Abbildung die vorliegende Intensitätsverteilung

im Strahl am Ort der Vorblende, nach der Probenblende und im Fokus zeigen. Die erreichte Fokussierung in einem Brennfleck mit einem Durchmesser von etwa 5 mm entspricht gut dem für die ideale Ellipse erwarteten Strahlverlauf, falls die in der Spiegeloberfläche vorhandenen Abweichungen von dieser Sollform (Schleifriefen in der Positivform, Achsverlauf) berücksichtigt werden.

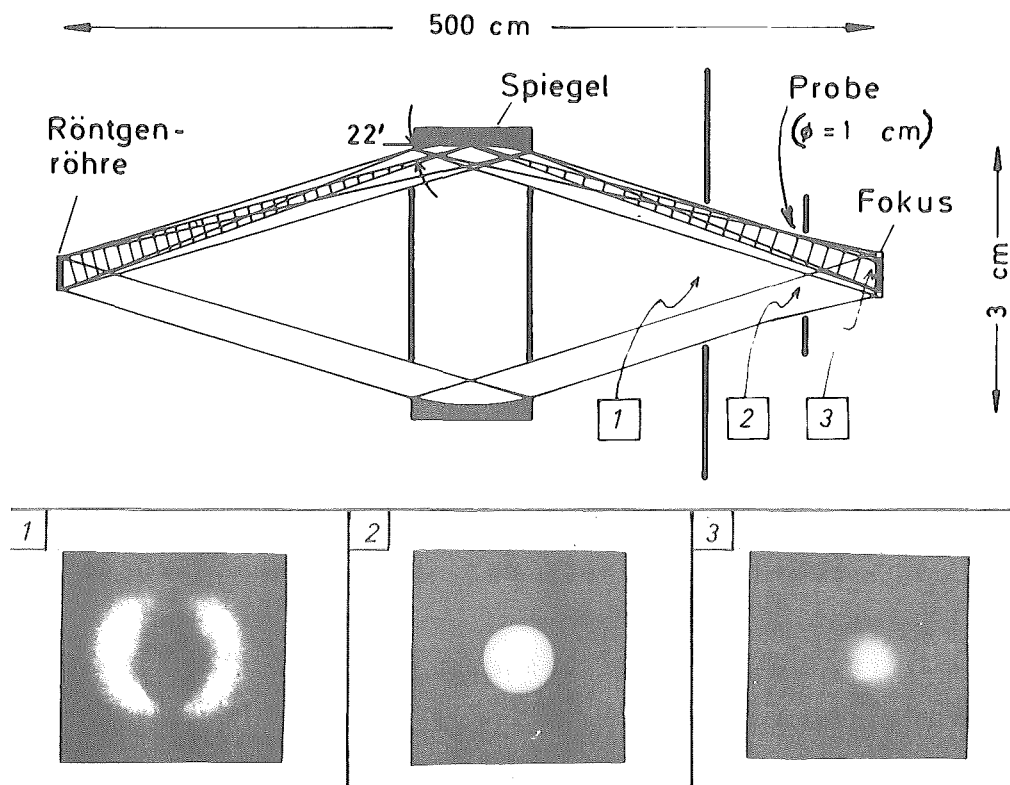


Abb. 12: Fokussierung durch den Spiegel

Die Röntgenröhre emittiert bei 100 kW Leistung etwa $3,8 \cdot 10^{15}$ $K_{\alpha 1,2}$ -Quanten $\frac{\text{sterad} \cdot \text{sec}}{\text{sterad} \cdot \text{sec}}$. Hieraus ergibt sich rechnerisch die Zahl der auf die Probe fallenden $K_{\alpha 1,2}$ -Quanten zu $1,4 \cdot 10^{11} \frac{\text{Quanten}}{\text{sec}}$, da der volle Raumwinkel durch den Spiegel nur zu einem Faktor $\frac{\Delta\Omega}{\Omega} = 8,7 \cdot 10^{-5}$ mit einer Reflektivität von 70 % ausgenutzt und zusätzlich noch durch die Absorption in zwei je 0,5 mm dicken Beryllium-Fenstern, in einer Hostaphan-Trennfolie und in einem 5μ dicken Nickelfilter zur Unterdrückung der $\text{CuK}\beta$ -Linie geschwächt wird.

Der mit Hilfe eines Eichstreuers aus Polystyrene mit bekanntem Wirkungsquerschnitt /13/ gemessene Wert beträgt bei 100 kW Röhrenleistung $5 \cdot 10^{10} \left[\frac{K_{\alpha 1,2}\text{-Quanten}}{\text{sec}} \right]$. Dieser Wert ist um einen Faktor 3 kleiner als der berechnete Wert. Dies ist vermutlich auf die Abbildungsfehler des Spiegels zurückzuführen, da stark defokussierte Strahlen im Blendensystem abgefangen werden und daher nicht auf die Probe fallen.

Das Energiespektrum der reflektierten Strahlung wurde ebenfalls ausgemessen. Dazu wurde die Strahlung mit einem Absorber aus Aluminium geschwächt, welcher im interessierenden Energiebereich keine zusätzliche Fluoreszenzstrahlung erzeugt. Der Absorber diente zur Unterdrückung der 8 KeV K_{α} -Linie und relativ dazu zur Anhebung des intensitätsschwachen kurzwelligen Bremsberg Anteils, der so ohne Übersteuerung des Zählers durch die K_{α} -Linie ausgemessen werden konnte. Hierzu wurde eine Pulshöhenanalyse der mit dem Eichdetektor gemessenen Primärstrahlung durchgeführt. Das erhaltene Energiespektrum wurde anschließend auf die Energieabhängigkeit des Absorptionsvermögens des Aluminiumabsorbers korrigiert. Man erhält dann das in Abbildung 13 dargestellte Energiespektrum der auf die Probe fallenden Primärstrahlung.

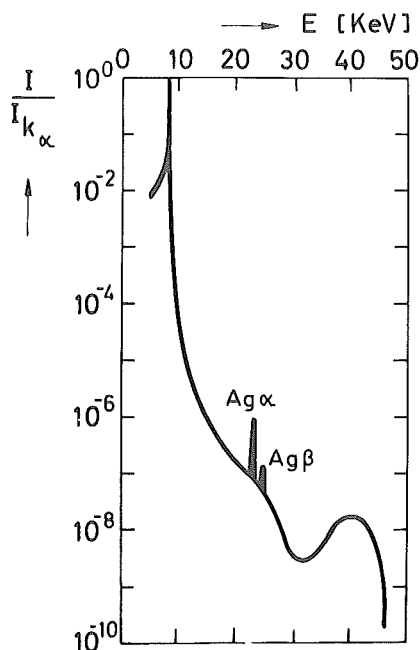


Abb. 13: Energiespektrum der zur Messung verwendeten Röntgenstrahlung (ohne Ni-Filter).

Die 8 KeV-Linie hebt sich genügend vom Untergrund ab, um ohne Entfaltungsaufwand die Messung der diffusen Defektstreuung im Zwischenreflexgebiet zu ermöglichen. Schwierigkeiten treten durch diesen Untergrund nur in unmittelbarer Nähe der reziproken Gitterpunkte auf, wo der Anstieg des Streuuntergrundes durch Braggreflexionen aus dem nicht voll-

ständig unterdrückten Bremsberg eine sinnvolle Messung unmöglich macht.

Im zweiten Schritt wurde die Zuverlässigkeit der Kopplungselektronik getestet. Dies geschah dadurch, daß durch ein in der PDP-8 laufendes Testprogramm Zählsignale parallel zu den Diskriminatorausgängen des Vielfachzählersystems in die Kopplungselektronik eingespeist und anschließend auf ihre richtige Verarbeitung hin kontrolliert wurden. Hierbei wurden alle im tatsächlichen Betrieb vorkommenden Situationen (Paralleleinlesungen, aufeinander folgendes Auftreten von Überläufen der Detektoradressen, usw.) simuliert und die Solleinlesungen mit den tatsächlich im Rechner registrierten Einlesungen verglichen. Nach 10^8 simulierten Einlesungen pro Detektorkanal wurde der Test mit dem Ergebnis abgebrochen, daß alle 10^8 -Signale fehlerfrei verarbeitet worden waren. Die Zuverlässigkeit der Kopplungselektronik ist daher mit Sicherheit groß genug, um die einzelnen Detektorzählraten mit den erforderlichen Genauigkeiten von einigen 10^{-4} im Rechner aufzählen zu können.

Die Meßzeitabschätzung nach Glg. (27) war unter der Voraussetzung abgeleitet worden, daß die erreichbare Genauigkeit nur durch den statistischen Fehler der Zählratenmessung gegeben ist und nicht durch zusätzliche Fehler im Detektorsystem verschlechtert wird. Ob diese Annahme auch tatsächlich zutrifft, wurde in einem letzten Schritt überprüft.

Dazu wurde nach dem unter 4.5. angegebenen Verfahren eine Aluminiumprobe der gleichen Art ausgemessen, wie sie auch später für die Bestrahlung verwendet wurde. Mit der gleichen Probe wurden zwei Messungen mit jeweils 5 Stunden Meßzeit gemacht. Sie wurden nach Glg. (32) unter der Annahme ausgewertet, daß die Probe während der ersten Messung streuende Defekte enthält, während die zweite Messung als Nullmessung der Probe angesehen wurde. Durch statistische und eventuell aufgetretene systematische Fehler ergibt sich eine Differenz der beiden Messungen und hieraus auch im Fall identischer gleicher Proben eine scheinbare Defektstreuung ΔZ . Diese ist relativ zur gemessenen Zählrate

Z in Abb. 14 in Abhängigkeit vom Streuwinkel aufgetragen.

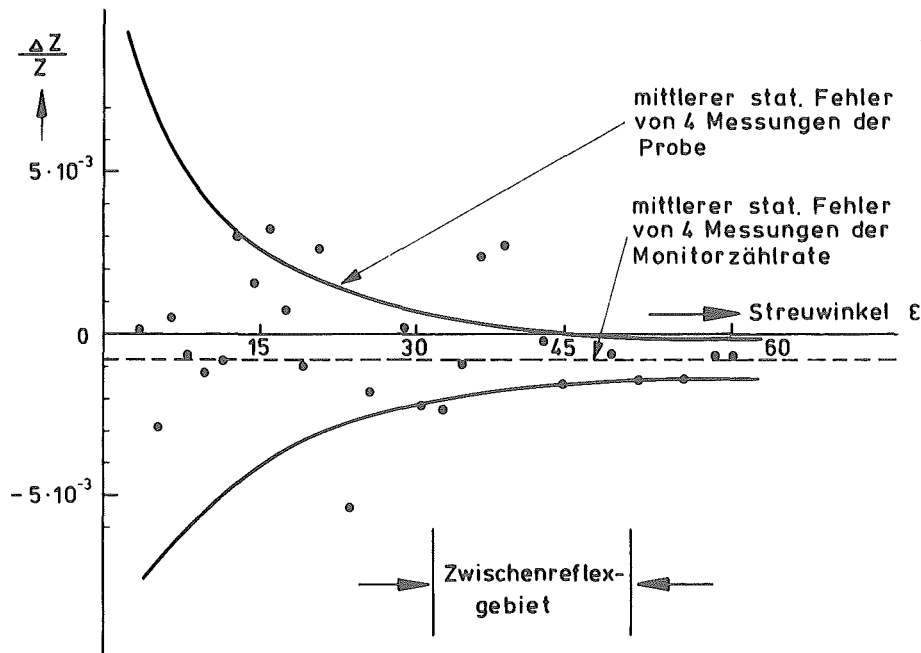


Abb. 14: Meßfehler der aus einer Differenzmessung bestimmten Defektstreureate.

Das Verhältnis $\frac{\Delta Z}{Z}$ mußte aus den später ausgeführten Gründen im wesentlichen aus 8 verschiedenen Zählraten berechnet werden. Es waren dies die beiden Zählraten für die Probe sowie zusätzlich zwei Zählraten für eine Vergleichsprobe. Hinzu kam noch für jede Probe eine Zählrate des Monitorzählers, auf welche die jeweilige Probenmessung normiert wurde.

Da der relative mittlere statistische Fehler der Monitorzählraten etwa $4 \cdot 10^{-4}$ betrug, rufen die 4 verwendeten Zählraten im Ergebnis $\frac{\Delta Z}{Z}$ einen relativen mittleren statistischen Fehler von $8 \cdot 10^{-4}$ hervor. Dieser Fehler wirkt sich auf alle Detektorzählraten in gleicher Weise aus. Er hat daher bei allen Zählern das Auftreten eines gleich großen relativen Meßeffectes zur Folge. Dies ist in Abb. 14 gut zu erkennen, wo der Monitorfehler offensichtlich den mittleren Wert von $\frac{\Delta Z}{Z} = -8 \cdot 10^{-4}$ hat; denn der Mittelwert aller Meßpunkte ist um diesen Betrag zu negativen Werten verschoben. Um diesen Mittelwert streuen die einzelnen Meßpunkte mit dem relativen mittleren statistischen Fehler der jeweiligen Detektorstreuren. Dieser mittlere Fehler ist in

Abb. 14 eingezeichnet und setzt sich aus den relativen mittleren statistischen Fehlern der zur Berechnung von $\frac{\Delta Z}{Z}$ verwendeten 4 Einzelmessungen zusammen. Er ist doppelt so groß wie der Fehler einer Einzelmessung.

Bis auf wenige Ausnahmen liegen alle Meßpunkte innerhalb des berechneten mittleren Fehlerbereichs für statistische Fehler. Bei der Ausmessung der Streuung von Frenkeldefekten im Gebiet $x \rightarrow 0$ und im Zwischenreflexgebiet mit Meßzeiten von etwa 5 Stunden pro Messung sind daher statistische Fehler von etwa 10 % zu erwarten, falls die Konzentration bei etwa $4 \cdot 10^{-4}$ liegt. Dies geht aus einem Vergleich mit Abbildung 17 hervor, die das in diesem Fall gemessene Untergrund/Effektverhältnis zeigt.

Die Vermeidung systematischer Fehler setzt allerdings ein geeignetes Meß- und Auswerteverfahren voraus, auf das im folgenden näher eingegangen wird.

4.5. Meß- und Auswertungsverfahren.

Die gesuchte Defektstreuung wurde für jeden Detektor aus der Zählratendifferenz einer Messung mit defekthaltiger ($= P2_{DEF}$) und ausgetemperter defektfreier Probe ($= P2_{NULL}$) bestimmt. Die gemessenen Zählraten der beiden zeitlich bis zu einigen Tagen auseinander liegenden Messungen konnten wegen der während dieser Zeit auftretenden Driften in den Zählernachweiswahrscheinlichkeiten nicht ohne weiteres voneinander abgezogen werden, um die Defektstreuung zu erhalten. Sie mußten für diesen Zweck auf die jeweils mitgemessenen Zählraten $P1_{DEF}$ und $P1_{NULL}$ einer Vergleichsprobe $P1$ bezogen werden.

Als Vergleichsprobe wurde bei den vorliegenden Messungen ein defektfrei gelassener Teil der gleichen Probe benützt. Dies hatte den Vorteil, daß die gemessenen Vergleichsprobenzählraten ein Maß dafür waren, ob die Untergrundstreuung auch der defekthaltigen Probe zwischen den beiden Messungen konstant geblieben war oder ob sie sich beispielsweise durch Kondensation von Gasen auf der Probe verändert hatte; denn diesbezüglich verhielten sich die beiden Probengebiete identisch. Um diese Kontrolle unabhän-

gig von den Nachweiswahrscheinlichkeiten der Detektoren durchführen zu können, war noch die Ausmessung einer dritten Probe notwendig, deren Streuvermögen mit Sicherheit zeitlich konstant blieb. Hierfür wurde der unter 4.3.4. beschriebene Eichstandard benützt.

Für die Auswertung war es notwendig, daß in beiden Messungen die Zählratenverhältnisse $(\frac{P_2}{P_1})$ und $(\frac{EICH}{P_1})$ unabhängig von Driften in der Primärstrahlintensität und in der Zählernachweiswahrscheinlichkeit sind. Ersteres wurde durch Normierung aller Zählraten auf die jeweils mitgemessene Monitorzählrate erreicht. Die im Detektorsystem vorhandenen Langzeitdriften konnten die Ergebnisse ebenfalls nicht beeinflussen, da die drei Proben nicht zeitlich nacheinander ausgemessen wurden, sondern abwechselnd für nur jeweils kurze Zeiten (3 Minuten), in denen die Driften klein genug waren.

Die Zählratenverhältnisse $(\frac{P_2}{P_1})$ wurden in der Regel nach etwa 8 Stunden Meßzeit durch eine Mittelwertbildung bestimmt. Aus etwa 50 $(\frac{P_2}{P_1})$ -Kurzzeitverhältnissen konnte auf diese Weise der $(\frac{P_2}{P_1})$ -Wert und aus etwa 25 $(\frac{EICH}{P_1})$ -Messungen der gemittelte $(\frac{EICH}{P_1})$ -Wert mit einer nur durch die Statistik der Zählratenmessung gegebenen Genauigkeit bestimmt werden.

Zur Verdeutlichung des Meßablaufes zeigt Abbildung 15 eine typische Aufzeichnung der auf die Monitorzählrate normierten Meßwerte eines Detektors während des Meßzeitraumes von etwa 8 Stunden. Es wurde in der Reihenfolge P2, P1, P2, P1, Untergrund ohne Probe, EICH, P2, P1, gemessen. Aus dem Intensitätsverlauf der Meßpunkte für den Eichstandard geht hervor, daß die Zählerdrift in 8 Stunden etwa $\pm 5 \%$ betrug.

Mit diesem Meßprogramm wurden mit defekthaltiger Probe die Verhältnisse $(\frac{P_2}{P_1})_{DEF}$ und $(\frac{EICH}{P_1})_{DEF}$ gemessen. Entsprechend wurden in einer Nullmessung mit defektfreier, ausgetemperter Probe die Verhältnisse $(\frac{P_2}{P_1})_{NULL}$ und $(\frac{EICH}{P_1})_{NULL}$ bestimmt.

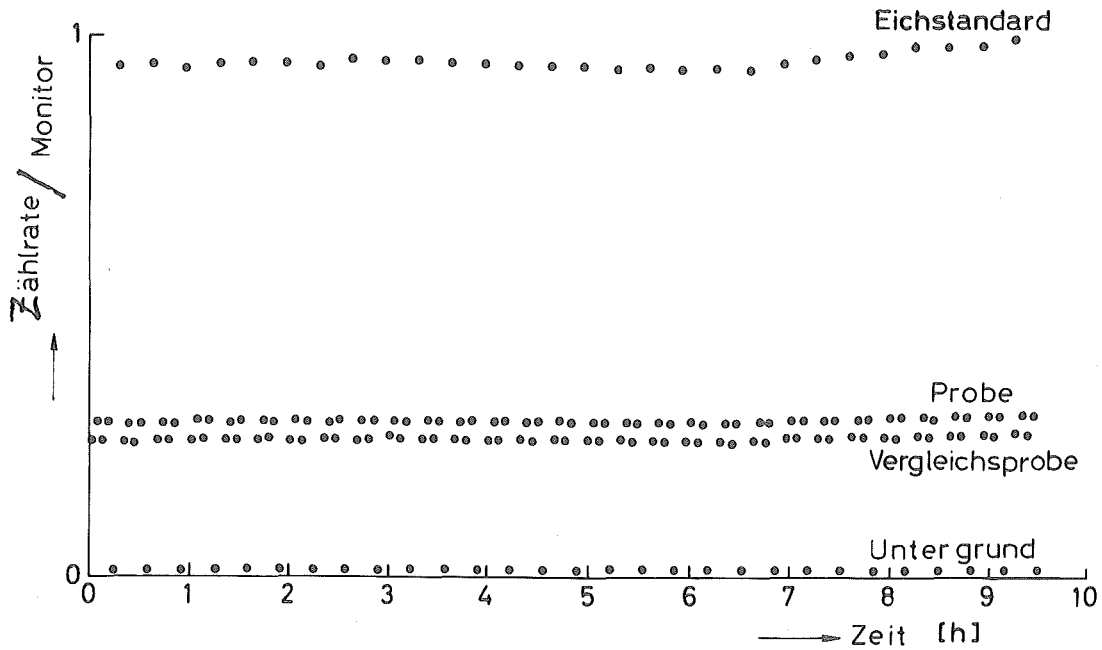


Abb. 15: Zeitlicher Ablauf einer Messung.

Bei konstant bleibender Untergrundstreuung der defekthaltigen Probe PZ ergibt sich die Defektstreuung DEF sofort zu:

$$\frac{DEF}{P_1} = \left(\frac{P_2}{P_1} \right)_{DEF} - \left(\frac{P_2}{P_1} \right)_{NULL} \quad (30)$$

Eine eventuell auftretende Änderung der Untergrundstreuung kann aus den Eichstandardmessungen $\left(\frac{EICH}{P_1} \right)$ bestimmt werden:

$$\frac{\Delta P_1}{P_1_{DEF}} = \frac{P_1_{NULL} - P_1_{DEF}}{P_1_{DEF}} = \frac{P_1_{NULL}}{P_1_{DEF}} - 1 = \left(\frac{EICH}{P_1} \right)_{DEF} / \left(\frac{EICH}{P_1} \right)_{NULL} - 1 \quad (31)$$

Unter der Annahme, daß $\Delta P_2 = \Delta P_1$ ist, kann dann auch in einem solchen Fall veränderlicher Untergrundstreuung die Defektstreuung nach Glg. (30) mit einem zusätzlich auftretenden Korrekturterm berechnet werden:

$$\frac{DEF}{P_1_{DEF}} = \left(\frac{P_2}{P_1} \right)_{DEF} - \left(\frac{P_2}{P_1} \right)_{NULL} - \overbrace{\left[\left(\frac{P_2}{P_1} \right)_{NULL} - 1 \right] \cdot \left[\left(\frac{EICH}{P_1} \right)_{DEF} / \left(\frac{EICH}{P_1} \right)_{NULL} - 1 \right]}^{\text{KORREKTURTERM}} \quad (32)$$

In Glg. (32) ist die Defektstreuung auf die Streuung der Vergleichsprobe bezogen. Letztere kann mit dem Vielfachzählersystem nicht ohne weiteres ausgemessen werden, da sich die nicht bekannten Nachweiswahrscheinlichkeiten der einzelnen Zähler je nach Einstellung der Diskriminatoren bis zu 30 % voneinander unterscheiden.

Die Defektstreuung wurde daher in einem ersten Schritt durch Multiplikation mit dem gemessenen Verhältnis $\left(\frac{P_1}{EICH}\right)$ auf das Eichnormal bezogen. Dieses wurde mit dem Eichdetektor für alle Streuwinkel ausgemessen, wobei das Ergebnis auf die Monitorzählrate bezogen und in e.u. umgerechnet wurde. Das Verhältnis Eichdetektor zu Monitorzählrate wurde zu diesem Zweck durch die Ausmessung der diffusen Streuung einer Probe aus Polystyrol mit bekanntem Wirkungsquerschnitt /13/ in absoluten Einheiten geeicht.

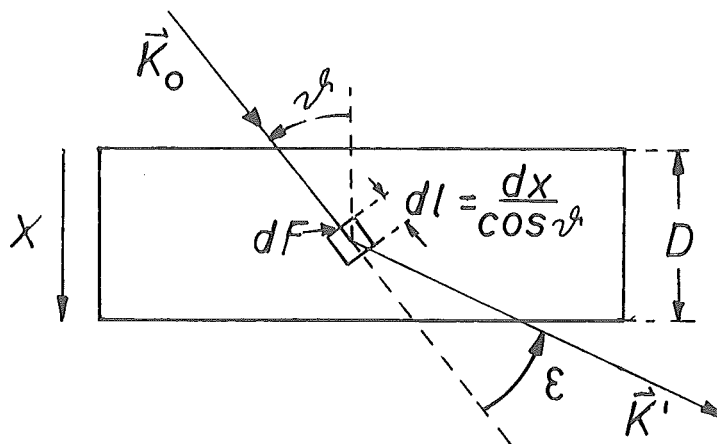
Durch weitere Multiplikation mit dieser Eichdetektormessung $EICH_{NORM}$ [e.u.] konnte die Defektstreuung dann für jeden Detektor in absoluten Einheiten bestimmt werden zu:

$$DEF = \left(\frac{DEF}{P_1}\right) \cdot \left(\frac{P_1}{EICH}\right) \cdot EICH_{NORM} \text{ [e.u.]} \quad (33)$$

Um den berechneten Wirkungsquerschnitt nach Glg. (1) mit dem gemessenen nach Glg. (33) vergleichen zu können, müssen noch folgende 3 Korrekturen durchgeführt werden:

1. Absorptionskorrektur

In Glg. (15) war die Absorptionskorrektur für den einfachsten Fall angegeben, daß der Primärstrahl senkrecht auf die Probenoberfläche trifft. Im allgemeinen Fall des unter einem Winkel einfallenden Primärstrahls erhält man für die Streuintensität bei Transmission ($|\vartheta + \epsilon| < 90^\circ$) für ein Volumenelement $dF \cdot dl$:



$$dI \sim I_0 e^{-\mu \frac{x}{\cos \vartheta}} \frac{d\vartheta}{d\Omega} e^{-\mu \frac{(D-x)}{\cos(\vartheta+\epsilon)}} \frac{dx}{\cos \vartheta} dF \quad (34)$$

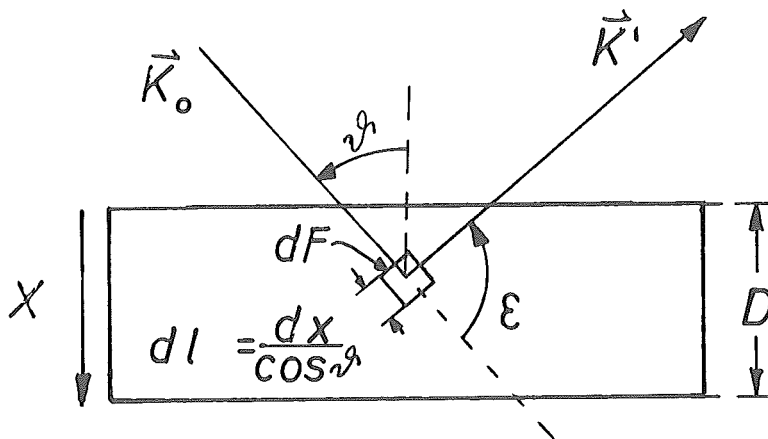
Für die gesamte ausgeleuchtete Probe folgt dann (F = Querschnittsfläche des Primärstrahls):

$$\begin{aligned}
 I &\sim \int_0^F \int_0^D dI = I_0 \frac{\exp(-\mu D / \cos(\vartheta + \epsilon))}{\cos \vartheta} \frac{d\vartheta}{d\Omega} \int_0^F \int_0^D \exp(-\mu x (1/\cos \vartheta - 1/\cos(\vartheta + \epsilon))) dx dF \\
 &= I_0 F \frac{d\vartheta}{d\Omega} \frac{\exp(-\mu D / \cos(\vartheta + \epsilon))}{-\mu (1 - \cos \vartheta / \cos(\vartheta + \epsilon))} \left[\exp(-\mu x (1/\cos \vartheta - 1/\cos(\vartheta + \epsilon))) \right]_0^D \\
 &= I_0 F \frac{d\vartheta}{d\Omega} \frac{\exp(-\mu D / \cos(\vartheta + \epsilon))}{\mu (1 - \cos \vartheta / \cos(\vartheta + \epsilon))} \left[1 - \exp(-\mu D (1/\cos \vartheta - 1/\cos(\vartheta + \epsilon))) \right] \\
 &= I_0 F \frac{d\vartheta}{d\Omega} d_{\text{eff}} \quad (35)
 \end{aligned}$$

Die effektive Probendicke d_{eff} ergibt sich hierbei zu:

$$d_{\text{eff}} = \frac{\exp(-\mu D / \cos(\vartheta + \epsilon))}{\mu (1 - \cos \vartheta / \cos(\vartheta + \epsilon))} \left[1 - \exp(-\mu D (1/\cos \vartheta - 1/\cos(\vartheta + \epsilon))) \right] \quad (36)$$

Wenn Proben in Reflexion ausgemessen werden, erhält man in entsprechender Weise ($|\vartheta + \epsilon| < 90^\circ$) für ein Volumenelement $dF \cdot dl$:



$$dI \sim I_0 \exp(-\mu x / \cos \vartheta) \frac{d\vartheta}{d\Omega} \exp(\mu x / \cos(\epsilon + \vartheta)) \frac{dx}{\cos \vartheta} dF \quad (37)$$

Für die gesamte ausgeleuchtete Probe folgt dann (F = Querschnittsfläche des Primärstrahls):

$$\begin{aligned}
I &\sim \int_0^F \int_0^D dI = I_0 \frac{d\sigma}{d\Omega} \frac{1}{\cos\theta} \int_0^F \int_0^D \exp(-\mu x (\frac{1}{\cos\theta} - \frac{1}{\cos(\theta+\epsilon)})) dx dF \\
&= I_0 F \frac{d\sigma}{d\Omega} \frac{1}{\cos\theta} \frac{1}{\frac{1}{\cos\theta} - \frac{1}{\cos(\theta+\epsilon)}} \int_0^D \exp(-\mu z) dz \\
&= I_0 F \cdot \frac{d\sigma}{d\Omega} \frac{1}{-\mu(1 - \cos\theta/\cos(\theta+\epsilon))} \left[\exp(-\mu x (\frac{1}{\cos\theta} - \frac{1}{\cos(\theta+\epsilon)})) \right]_0^D \\
&= I_0 F \frac{d\sigma}{d\Omega} d_{\text{eff}} \quad (38)
\end{aligned}$$

Die effektive Dicke d_{eff} ergibt sich in diesem Fall zu:

$$d_{\text{eff}} = \frac{1}{\mu(1 - \cos\theta/\cos(\theta+\epsilon))} \left[1 - \exp(-\mu D (\frac{1}{\cos\theta} - \frac{1}{\cos(\theta+\epsilon)})) \right] \quad (39)$$

2. Polarisationskorrektur

Für die Polarisationskorrektur P wurde der Ausdruck für unpolarisierte Strahlung benutzt (rotationssymmetrischer Monochromator!):

$$P = 0,5 + 0,5 \cos^2 \epsilon \quad (40)$$

3. Atomformfaktor

Die Atomformfaktoren für das Zwischenreflexgebiet sind Hartree-Fock Rechnungen /21/ entnommen. Nach der Berücksichtigung der Hönl-Korrektur ($\Delta f' = 0,19$) wichen die verwendeten Werte von den am 111 und 200-Reflex experimentell bestimmten Werten /14/ nicht mehr als 1 % ab.

4. Thermischer Debye-Waller-Faktor

Die Korrektur durch den thermischen Debye-Waller-Faktor ist bei 4 K Meßtemperatur für kleine Streuwinkel vernachlässigbar und liefert erst für größere Streuwinkel einen Beitrag, der bei 60° etwa 5 % beträgt. Der nach Berücksichtigung von Hönl-Korrektur und Debye-Waller-Faktor erhaltene f-Wert ist in Abb. 15 in Abhängigkeit von $\frac{\sin\theta}{\lambda}$ aufgetragen ($\theta = \frac{\epsilon}{2}$):

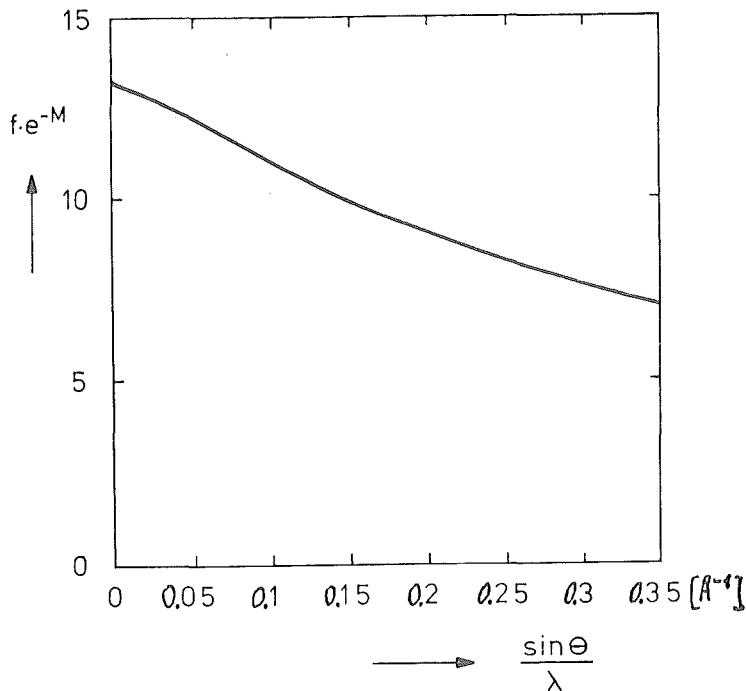


Abb. 15: Streuamplitude $f \cdot e^{-M}$ eines Aluminiumatoms bei 4 K.

5. Zwischenreflexstreuung von Aluminium nach Bestrahlung mit 3 MeV Elektronen bei 4.7 K.

Mit der beschriebenen Anordnung wurden Frenkeldefekte in Aluminium nach Tieftemperatur-Elektronenbestrahlung untersucht. Es sollte geklärt werden, auf welchen Plätzen die bei 4.7 K erzeugten Zwischengitteratome sitzen.

5.1. Messung.

Die zu den Messungen verwendeten Proben bestanden aus 37x24 mm großen Einkristallplättchen von etwa 0,6 mm Dicke, die aus einem Aluminium Einkristall (Reinheit 99.999, Restwiderstandsverhältnis 1000) durch Funkenerosion herausgeschnitten und planerodiert wurden. Sie waren in einem 34 x 19 mm großen Gebiet auf 90 μm Dicke durch ein elektrochemisches Verfahren /8/ abgedünnt. Die Probe wurde zusammen mit einer Widerstandsprobe gleichen Materials auf den Probenträger gelötet. Eine Fotografie ist in Abb. 16 zu sehen.

In zwei Bestrahlungsläufen wurde jeweils eine Hälfte der Einkristallprobe sowie die Widerstandsprobe gleichzeitig mit Strahlstromdichten zwischen 30 bis 40 [$\mu\text{A}/\text{cm}^2$] an der Tieftemperaturbe-

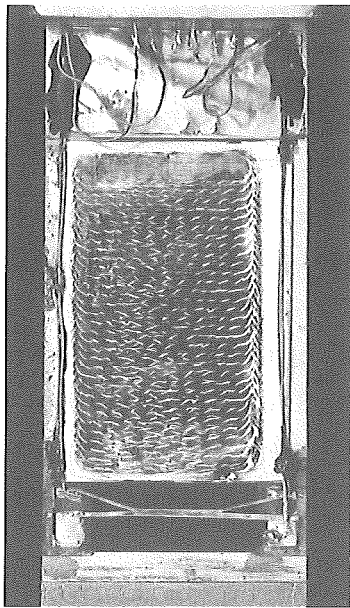


Abb. 16:

Probenhalter mit Röntgen- und Widerstandsprobe.

strahlungsanlage der KFA-Jülich /12/ mit 3 MeV Elektronen bei 4.7 K bestrahlt. Es wurden Frenkeldefekt-Konzentrationen von einigen 10^{-4} erzeugt. Die Restwiderstandsänderungen betrugen für die erste bzw. zweite Bestrahlung:

$$\text{Al 1: } \Delta R_0 = 194 \text{ n}\Omega\text{cm}$$

$$\text{Al 2: } \Delta R_0 = 143 \text{ n}\Omega\text{cm}$$

Die Elektronenbestrahlung der Einkristallprobe erfolgte nur in einem Teilbereich von 15 x 15 mm, da der nicht bestrahlte Teil bei der späteren Messung als Vergleichsprobe diente.

Nach Bestrahlungsende wurde die Probe nach dem unter 4.3.3. beschriebenen Verfahren bei etwa 8 K aus dem Bestrahlungskryostaten in den Transportkryostaten geschleust und anschließend zur Meßanordnung gebracht. In dieser wurde sie dann, wie unter 4.5. beschrieben, in einer Gesamtmeßzeit von etwa 7 Tagen ausgemessen.

Die Messung wurde so durchgeführt, daß abwechselnd der bestrahlte und als Vergleichsprobe der unbestrahlte Probenteil für jeweils 3 Minuten ausgemessen wurde. Jedes sechste Mal erfolgte eine Eichstandardmessung.

Bei beiden Bestrahlungen war die Probennormale ebenso wie die Drehachse der Probe eine 110-Achse. Die Detektoren waren in

einer zur Drehachse senkrechten Ebene angeordnet. Die Streuintensität konnte daher durch Drehen der Probe auf verschiedenen Ewaldkreisen in der 110-Ebene des reziproken Gitters ausgemessen werden. Die Lage der Ewaldkreise in dieser reziproken Gitterebene ist in den später folgenden Abbildungen jeweils in einem Einsatzbild angegeben.

Für die verschiedenen Stellungen der Probe gegen den Primärstrahl wurde jeweils nach etwa 8 Stunden Meßzeit für jeden Zähler die Defektstreuung nach dem unter 4.5. angegebenen Verfahren ermittelt. Es trat nach beiden Bestrahlungen ein Meßeffect der erwarteten Größe auf.

Nach der zweiten Bestrahlung mit ungefähr $4 \cdot 10^{-4}$ Frenkeldefekten pro Atom ergaben sich bei nicht zwischengetemperter Probe die in Abb. 17 in Abhängigkeit von der Länge des Streuvektors gezeigten Untergrund/Effekt-Verhältnisse.

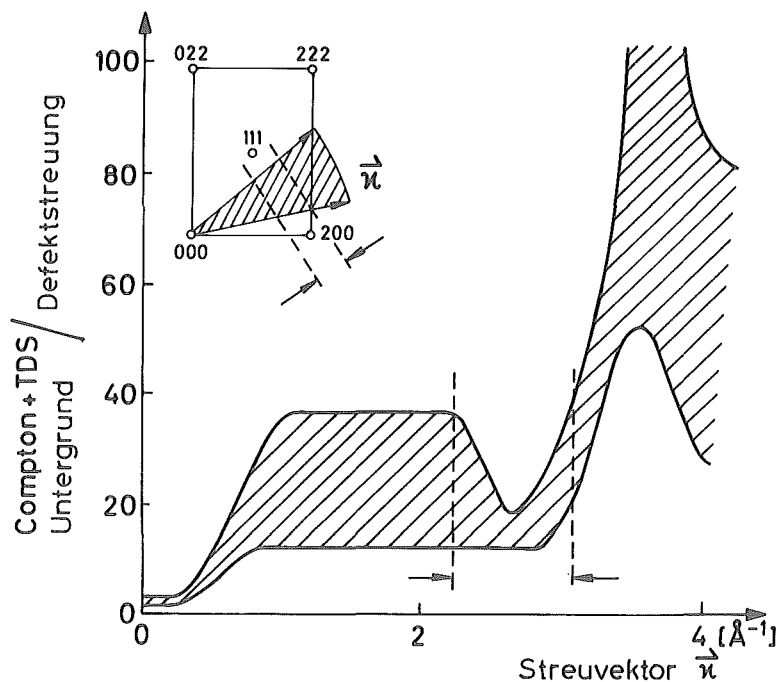


Abb. 17: Untergrund/Effekt-Verhältnis bei $4 \cdot 10^{-4}$ Frenkeldefekten pro Aluminiumatom.

Das gemessene Untergrund/Effekt-Verhältnis ändert sich stark mit der Länge des Streuvektors. Es hängt neben der Länge noch von

der Richtung des Streuvektors im reziproken Gitter ab. Für die im Einsatzbild angedeuteten Lagen des Streuvektors in der 110-Ebene zwischen dem 200- und 111-Reflex liegen die gemessenen Untergrund/Effekt-Verhältnisse im schraffiert eingezeichneten Bereich.

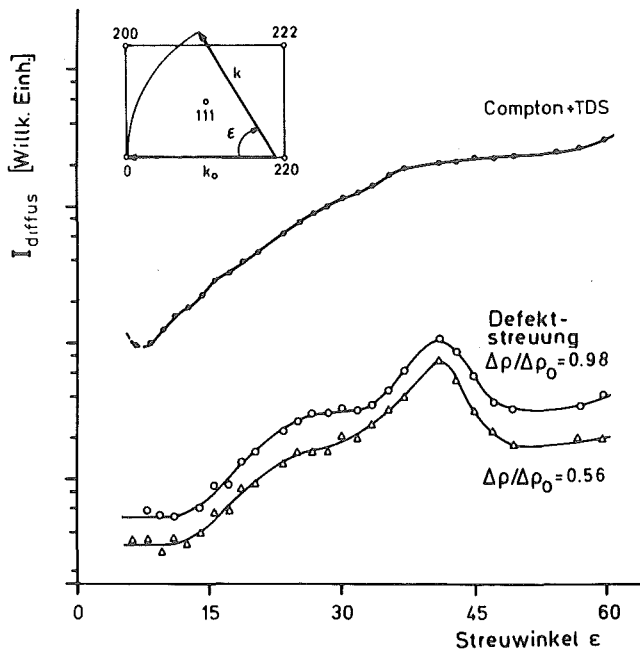
Ausgehend von niedrigen Werten bei kleinen 2θ -Werten steigt das Verhältnis schnell auf Werte von etwa 30 an. Im Zwischenreflexgebiet nimmt das Verhältnis infolge des Anstieges der defekt-induzierten Streuung wieder günstigere Werte von etwa 15 an. Anschließend nimmt die Defektstreuung stark ab. Die Messung liefert daher für größere Streuvektoren sehr ungünstige Untergrund/Effekt-Verhältnisse, deren Spitzenwerte bei etwa 140 liegen.

Die Untergrund/Effekt-Verhältnisse nach der ersten Bestrahlung waren entsprechend der kleineren Defektkonzentration ungefähr 25 % größer. Das gute Untergrund/Effekt-Verhältnis bei kleinen 2θ -Werten wurde nach der ersten Bestrahlung nicht erreicht, da die während der ersten Messung auf der Probe kondensierten Gase bei kleinen Winkeln stark streuten und den Untergrund dort erheblich erhöhten. Der beobachtete Minimalwert des Untergrund/Effekt-Verhältnisses lag daher in diesem Fall bei etwa 10.

Für den Meßeffect erhält man nach Durchführung aller unter 4.5. angegebenen Korrekturen die in den folgenden Abbildungen gezeigten Ergebnisse. Der Wirkungsquerschnitt der Defektstreuung ist dort für verschiedene Stellungen der Probe gegen den Primärstrahl, d.h. für verschiedene Lagen des Ewaldkreises in der 110-Ebene des reziproken Gitters, in Abhängigkeit vom jeweiligen Streuwinkel aufgetragen. Die Lage der zu den verschiedenen Meßkurven gehörigen Ewaldkreise ist jeweils im oberen linken Teil der Abbildungen angegeben.

Während der ersten Bestrahlung kondensierten, wie schon erwähnt, Gase auf die Probe. Diese ersten Messungen weisen daher infolge des nicht konstant bleibenden Streuuntergrundes größere Meßfehler auf. Sie sollten daher nur als grobe Übersichtsmessung betrachtet werden. Abb. 18 zeigt in logarithmischer Darstellung

die Untergrund- und Defektstreuung nach der ersten Bestrahlung ($\Delta\varrho_0 = 143 \text{ n}\Omega\text{cm}$).



Die Defektstreuung wird von den Defekten verursacht, die nach Zwischentemperungen auf 98 % bzw. 56 % der Anfangskonzentration noch nicht ausgeheilt waren. Die nach der Temperung auf 98 % noch vorhandene Defektstreuung ist in einem größeren Gebiet des reziproken Gitters in Abb. 19 gezeigt. Hier, wie auch später nach der zweiten Bestrahlung, zeigen die Meßkurven ① bis ⑦ die Defektstreuung in linearem Maßstab für folgende Winkel ϑ der 110-Proben-
normale zum Primärstrahl k_0 :

Abb. 18: Untergrund- und Defektstreuung ($\Delta\varrho_0 = 143 \text{ n}\Omega\text{cm}$).

$$\begin{aligned} \vartheta \text{ ①} &= -45^\circ; \vartheta \text{ ②} = -30^\circ; \vartheta \text{ ③} = -11^\circ; \vartheta \text{ ④} = -1,5^\circ; \\ \vartheta \text{ ⑤} &= 11^\circ; \vartheta \text{ ⑥} = 30^\circ; \vartheta \text{ ⑦} = 45^\circ. \end{aligned}$$

Die Defektstreuung ist bei allen 7 Meßkurven anfangs praktisch streuwinkelunabhängig, steigt jedoch im Zwischenreflexgebiet um mehr als eine Zehnerpotenz an.

Die mit höherer Genauigkeit gemessene Defektstreuung nach der zweiten Bestrahlung ($\Delta\varrho_0 = 194 \text{ n}\Omega\text{cm}$) ist in den Abbildungen 20-22 gezeigt. Sie zeigen die Defektstreuung für die gleichen Lagen der Ewaldkreise im reziproken Gitter wie bei der ersten Bestrahlung. Die Defektstreuung wurde sowohl mit ungetemperter Probe gemessen als auch nach Temperungen auf 96 % und 47 % des Widerstandes der ungetemperten Probe. Dies bedeutet, daß nach der ersten Temperung diejenigen Defekte, die sich im Erholungs-

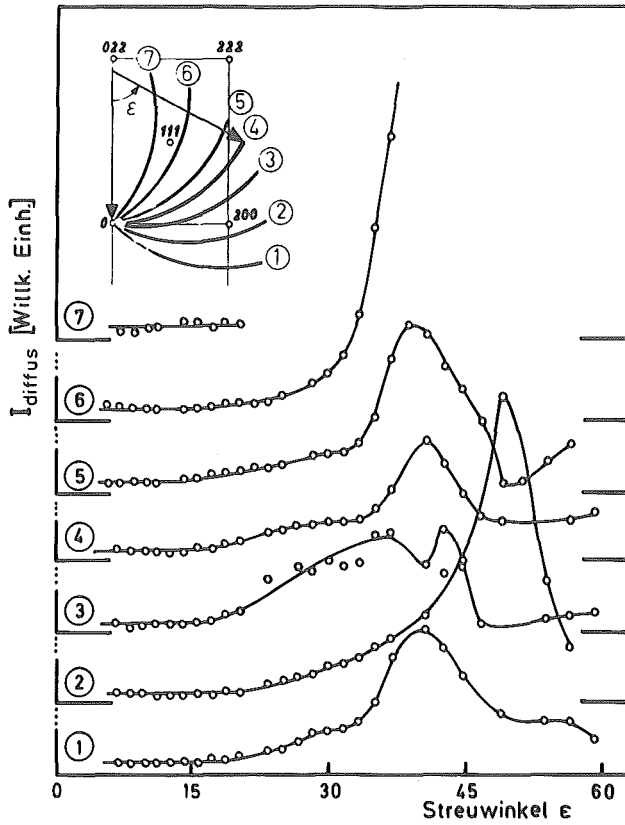


Abb. 19:

Defektstreuung

$$(\Delta\rho_0 = 143 \text{ n}\Omega\text{cm};$$

$$\Delta\rho/\Delta\rho_0 = 0,93)$$

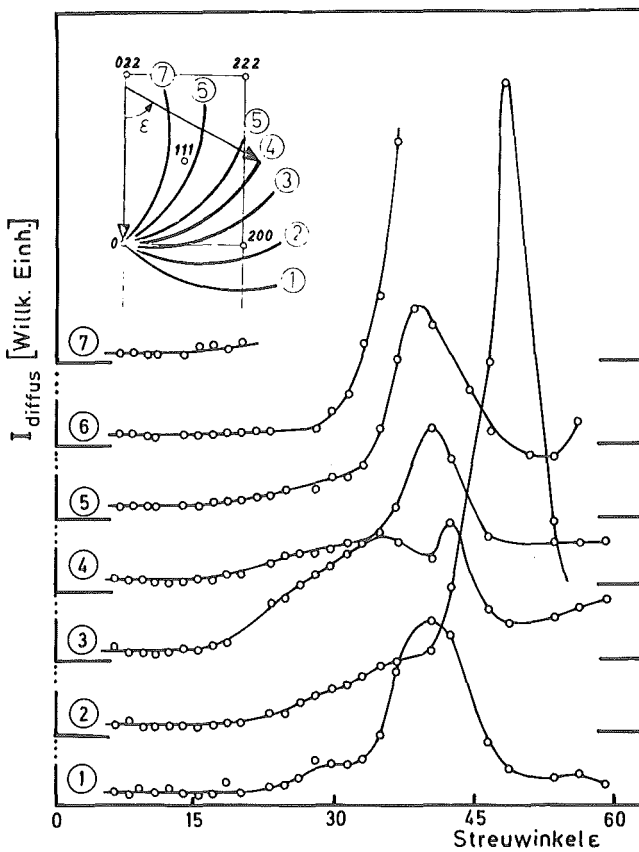


Abb. 20:

Defektstreuung

$$(\Delta\rho_0 = 194 \text{ n}\Omega\text{cm};$$

$$\Delta\rho/\Delta\rho_0 = 1)$$

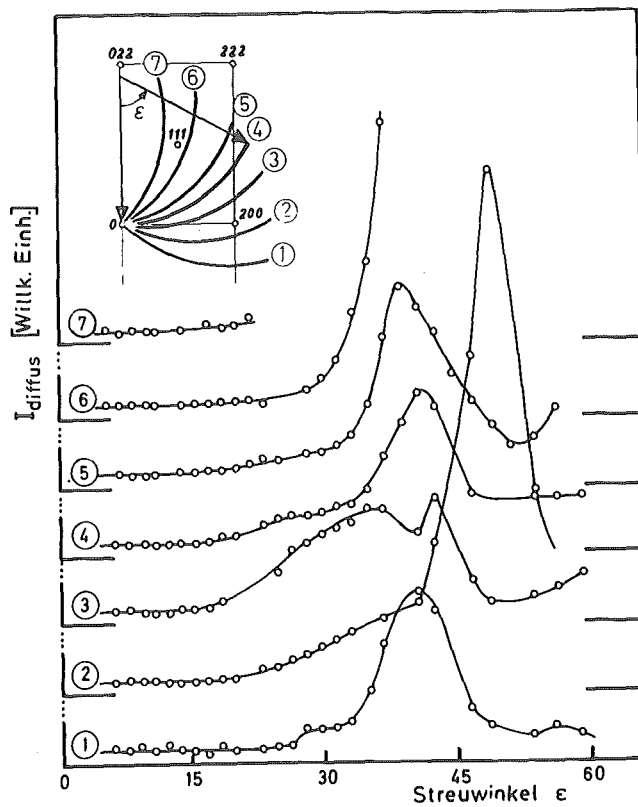


Abb. 21:

Defektstreuung

$$(\Delta \varrho_0 = 194 \text{ n}\Omega\text{cm};$$

$$\frac{\Delta \varrho}{\Delta \varrho_0} = 0,96)$$

$$\Delta \varrho_0$$

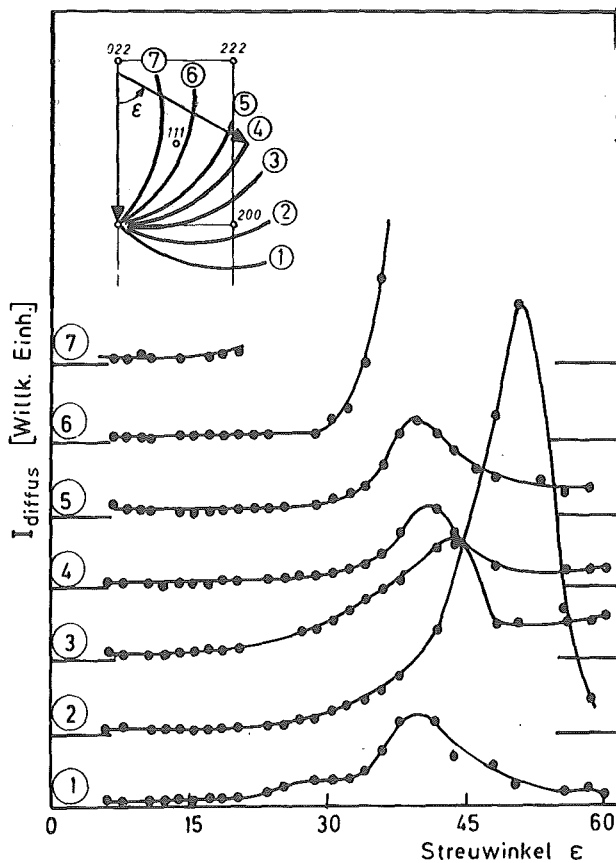


Abb. 22:

Defektstreuung

$$(\Delta \varrho_0 = 194 \text{ n}\Omega\text{cm};$$

$$\Delta \varrho / \Delta \varrho_0 = 0,47)$$

gebiet der Stufe I_B des elektrischen Widerstandes erholen, nicht mehr mitgemessen wurden. Nach der zweiten Temperung wurden diejenigen Defekte ausgemessen, die nach Stufe I_E noch in der Probe waren.

Um die bei verschiedenen Defektkonzentrationen gemessenen Streuwirkungsquerschnitte miteinander vergleichen zu können, wurden sie nach Umrechnung in die absoluten Einheiten [e.u.] auf die jeweilige Defektkonzentration normiert. Als Maß für die Konzentration wurde der mitgemessene Restwiderstand ΔR verwendet.

Die Erholungskurve des Restwiderstandes ist in der Abb. 23 zusammen mit diesen normierten Wirkungsquerschnitten $\frac{1}{\Delta R} \frac{d\sigma}{d\Omega}$ eingezeichnet. Letztere sind in den Einheiten $10^{-5} \left[\frac{\text{e.u.}}{\text{cm}^2} \right]$ für mehrere Probenstellungen in Abhängigkeit vom Streuwinkel aufgetragen. Die Wirkungsquerschnitte wurden bei folgenden als Meßpunkte in die Erholungskurve eingetragenen $\Delta R / \Delta R_0$ -Verhältnissen gemacht:

$$\frac{\Delta R}{\Delta R_0} = 1; \quad \frac{\Delta R}{\Delta R_0} = 0,96; \quad \frac{\Delta R}{\Delta R_0} = 0,56; \quad \frac{\Delta R}{\Delta R_0} = 0,47.$$

Für die Meßpunkte dieser vier verschiedenen Messungen wurden in den Zusammenstellungen die vier Symbole verwendet, die am zugehörigen $\Delta R / \Delta R_0$ -Wert in die Erholungskurve eingezeichnet sind.

Die nach der ersten Bestrahlung bei einem $\Delta R / \Delta R_0$ -Wert von 0,98 gemessenen Wirkungsquerschnitte sind nicht mit eingezeichnet, da sie für ungefähr den gleichen $\Delta R / \Delta R_0$ -Wert nach der zweiten Bestrahlung wesentlich genauer gemessen werden konnten. Von den Messungen nach der ersten Bestrahlung wurden nur die Werte für $\Delta R / \Delta R_0 = 0,56$ aus Abb. 18 für die Probenstellung ④ mit eingezeichnet, da für dieses $\Delta R / \Delta R_0$ -Verhältnis keine andere Messung gemacht wurde.

Das Streuverhalten der Defekte ändert sich bis

zu einem $\Delta R / \Delta R_0$ -Verhältnis von etwa 0,6 nicht. Erst nach der Temperung auf einen $\Delta R / \Delta R_0$ -Wert von 0,47 verändert sich das Streuprofil, was auf die Bildung eines anderen Defekttyps hindeutet.

Vor der weiteren Ausweitung der Meßdaten müssen Annahmen über die Verteilung der Defekte gemacht werden. Im folgenden wird davon ausgegangen, daß nach der Bestrahlung Einzel-Zwischengitteratome in statistischer Verteilung im Gitter vorliegen. Aufgrund des Erzeugungsmechanismus bei der Tieftemperatur-Elektronenbestrahlung ist diese Annahme für die untersuchten Defektkonzentrationen naheliegend.

Aus Erholungsmessungen des elektrischen Widerstands ist bekannt /26,27/, daß die Zwischengitteratome teilweise an ihre Leerstelle gebunden sind und sich diese eng benachbarten Paare in den Unterstufen I_B und I_C erholen. Bei den vorliegenden Bestrahlungsdosen beträgt der Anteil der I_B - und I_C -Defekte jeweils nur etwa 5 %. Die Meßgenauigkeit ist nicht groß genug, um einen eventuell möglichen Einfluß der eng benachbarten Leerstelle auf das Streuverhalten dieser wenigen Zwischengitteratome in den Meßkurven zu sehen: Die in Abb. 23 gezeigten Wirkungsquerschnitte mit und ohne Stufe I_B unterscheiden sich innerhalb der Fehlergrenzen von etwa 10 % nicht.

Alle anderen Zwischengitteratome, so auch der etwa 40 % betragende Anteil von Zwischengitteratomen, die in Stufe I_D ausheilen, liegen in größerer Entfernung von ihrer Leerstelle. Von Simpson und Chaplin /16/ wurde die Abstandsverteilung der in dieser Stufe ausheilenden Zwischengitteratome aus Erholungsmessungen bestimmt. Danach ist nicht zu erwarten, daß benachbarte Leerstellen einen meßbaren Einfluß auf die Streuung des Zwischengitteratoms haben: Der kleinste Abstand zwischen Leerstelle und Zwischengitteratom erweist sich erstens mit etwa 3,5 Gitterkonstanten als sehr groß und zweitens liegt eine sehr breite Abstandsverteilung vor, die bis zu 10 Gitterkonstanten weit reicht.

Die nach der Erholungsstufe I_B gemessenen Wirkungsquerschnitte können daher im folgenden unter der Voraussetzung statistisch verteilter Einzelzwischengitteratome ausgewertet werden, deren Streuwirkungsquerschnitt nicht von der Lage der Leerstellen in ihrer Umgebung abhängt.

Die Messung bei $\Delta\vartheta/\Delta\vartheta_0 = 0,47$ wird später unter der auch experimentell bestätigten Annahme ausgewertet, daß sich hier die Einzelzwischengitteratome zu Doppelzwischengitteratomen zusammenlagert haben /10/.

Aus den Meßergebnissen kann nicht ohne weiteres auf die Lage der Zwischengitteratome geschlossen werden. Daher wurde die Lageentscheidung in der Weise getroffen, daß für die zur Diskussion stehenden Zwischengitteratomlagen die entsprechenden Streuwirkungsquerschnitte berechnet und anschließend die tatsächliche Lage durch Vergleich mit dem gemessenen Wirkungsquerschnitt bestimmt wurde.

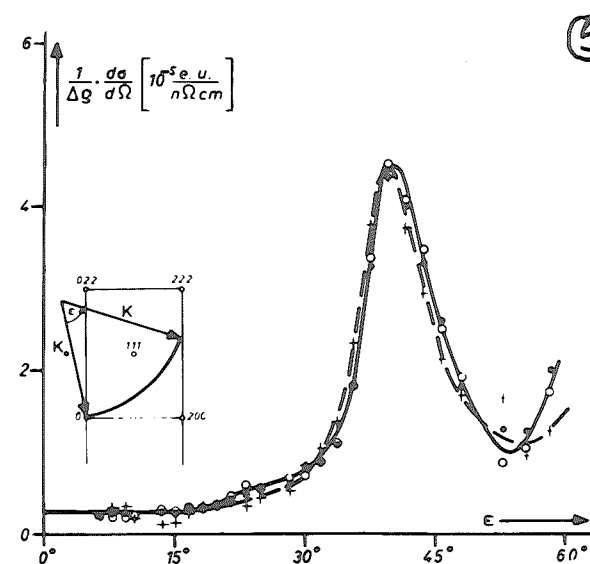
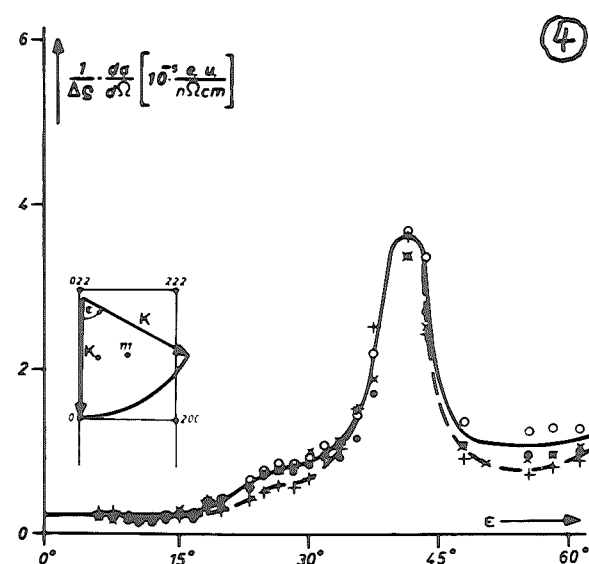
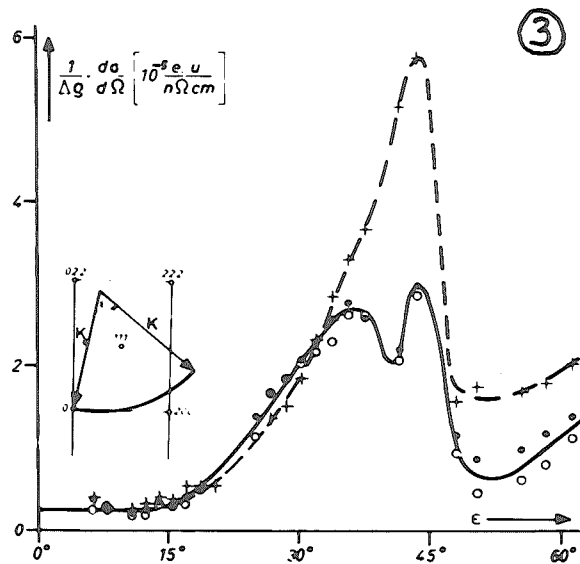
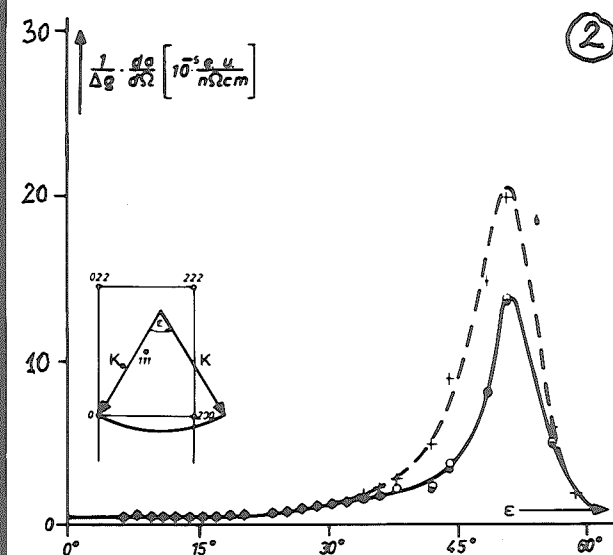
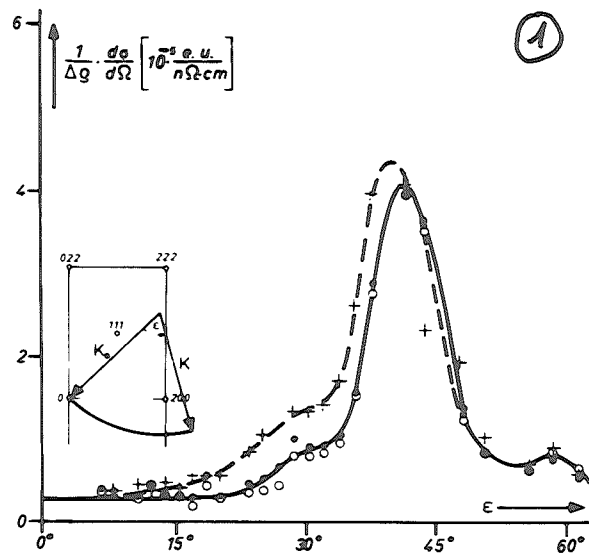
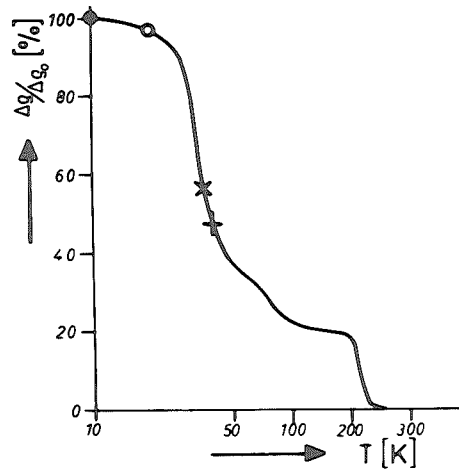


Abb. 23: Zusammenstellung der normierten Wirkungsquerschnitte.

5.2. Berechnung der Zwischenreflexstreuung für verschiedene Zwischengitteratomlagen.

Symmetrieüberlegungen /11/ ergeben für mögliche Lagen von Zwischengitteratomen in kubisch-flächenzentrierten Gittern die in Abb. 24 gezeigten 6 Lagen:

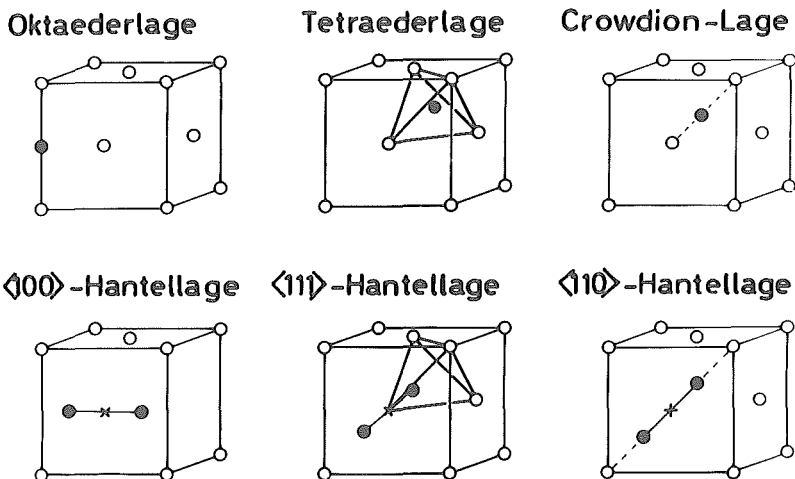


Abb. 24: Mögliche Lagen von Zwischengitteratomen in kubisch-flächenzentrierten Gittern.

Durch Messungen /10/ der diffusen Streuung im Huang-Gebiet konnten von diesen möglichen Zwischengitteratomlagen alle bis auf die Oktaeder-, die Tetraeder- und die 100-Hantellage ausgeschlossen werden. Die Messungen im Zwischenreflexgebiet sollten eine Entscheidung auch zwischen diesen drei Lagen ermöglichen.

Die Berechnung des Streuwirkungsquerschnittes für das ausgemessene Zwischenreflexgebiet erfolgte daher für Zwischengitteratome in der zur Diskussion stehenden Oktaeder-, Tetraeder- und 100-Hantellage, sowie für die in gleicher Anzahl vorhandenen Leerstellen. Zu diesem Zweck wurde ein Rechnerprogramm erstellt, mit dem die Berechnung nach Glg. (2) durchgeführt wurde.

Der Koordinatensprung ist jeweils im Zentrum des Defektes angenommen, so daß sich die Streuamplitude der Laue-Streuung ($f_0 - f$)

sofort für Zwischengitteratome in Oktaeder- und Tetraederlage zu (f) , für solche in Hantellage (Hantelabstand l) zu $(2f \cdot \cos(\frac{\pi l}{2}) - f)$ und für Leerstellen zu $(-f)$ ergibt.

Zur Berechnung der Verschiebungsfeldstreuung ist die Kenntnis des Verschiebungsfeldes um Leerstelle und Zwischengitteratom notwendig. Dieses wurde in harmonischer Näherung gittertheoretisch aus sogenannten "Kanzaki-Kräften" /15/ berechnet. Dies sind schnell mit dem Abstand vom Defekt abfallende fiktive Zusatzkräfte, welche an den Atomen in der Umgebung des Defektes angreifen. Sie sollen im ungestörten Gitter in harmonischer Näherung das gleiche Verschiebungsfeld erzeugen wie der Defekt. Zur Berechnung des Verschiebungsfeldes um die Leerstelle und das Zwischengitteratom wird daher im folgenden ein Modell aus diesen Kanzaki-Kräften benutzt.

Dieses Kraftmodell stimmt allerdings nur dann mit den tatsächlichen vom Defekt auf das Gitter ausgeübten Kräften überein, wenn erstens durch den Einbau des Defektes die Kopplungsparameter des Kristalls nicht geändert werden und zweitens die Gitterverschiebungen so klein sind, daß anharmonische Effekte vernachlässigt werden können.

Trotzdem ist es sinnvoll, die Streuwirkungsquerschnitte des Zwischengitteratoms mit einfachen Kraftmodellen aus Kanzaki-Kräften zu berechnen; denn schon die einfachsten Zentralkraftmodelle nur zu den nächsten Nachbarn beschreiben das Verschiebungsfeld eines Zwischengitteratoms recht gut. Das geht aus einem Vergleich der für Kupfer mit einem Zentralkraftmodell nur zu nächsten Nachbarn berechneten Gitterverschiebungen mit Werten von Seeger und Mann /11/ hervor, die aus Atompotentialen ebenfalls für Zwischengitteratome in Kupfer berechnet wurden. In der Tabelle 2 sind die sich jeweils ergebenden Verschiebungen der Nachbaratome gegenübergestellt:

Nachbar	<u>100-Hantel</u>		<u>Oktaederlage</u>		<u>Tetraederlage</u>	
	Modell [A]	Potential [A]	Modell [A]	Potential [A]	Modell [A]	Potential [A]
1.	0,27	0,29	0,3	0,4	0,59	0,59
2.	-0,09	-0,02	0,03	0,03	0,01	0,04
3.	-0,04	0	0,06	0,08	0,14	0,23
4.	0,03	0,02				
		(+0,02)		(+0,02)		(+0,02)

Tabelle 2: Gitterverschiebungen um ein Zwischengitteratom in Kupfer.

Das erste Moment der Zusatzkräfte ist durch die Komponenten des Doppelkrafttensors gegeben /1/:

$$P_{ij} = \sum_n r_i^n \cdot f_j^n \quad (40)$$

Für eine näherungsweise Berechnung des Verschiebungsfeldes genügt es, die Wirkung der Zusatzkräfte durch Zentralkräfte am nächsten Nachbarn zu beschreiben. Diese können für alle Defektlagen aus der Spur des Doppelkrafttensors berechnet werden:

$$Sp P = \sum_n \vec{r}^n \cdot \vec{f}^n \quad (41)$$

welche bei bekannter Volumenänderung pro Defekt aus dieser bestimmt werden kann (nicht-ausgerichtete Defekte in kubischen Gittern):

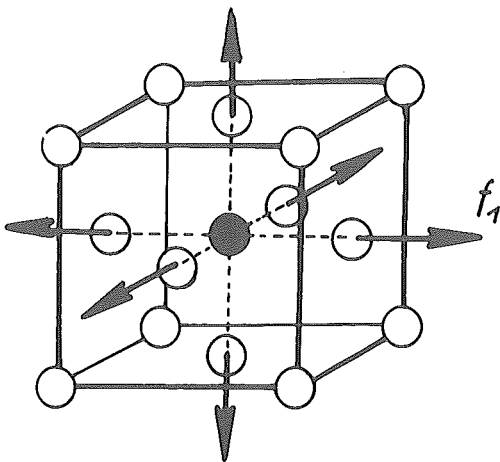
$$\frac{\Delta a}{a} = \frac{c}{3} \frac{\Delta V}{\Omega} = \frac{c}{3} \frac{Sp P}{(c_{11} + 2c_{12}) \Omega} \quad (42)$$

Für Frenkeldefekte in Aluminium wurde die Spur des Zwischengitteratoms durch Kombination einer Gitterparametermessung mit Messungen der diffusen Streuung im Huanggebiet bei Vernachlässigung der Leerstellenstreuung zu 47 eV bestimmt /10/:

$$Sp P = 47 \text{ eV} \quad (43)$$

Die Größe der Zentralkräfte zum ersten Nachbarn ergibt sich dann für die verschiedenen Defektlagen wie folgt:

a) Oktaederlage:

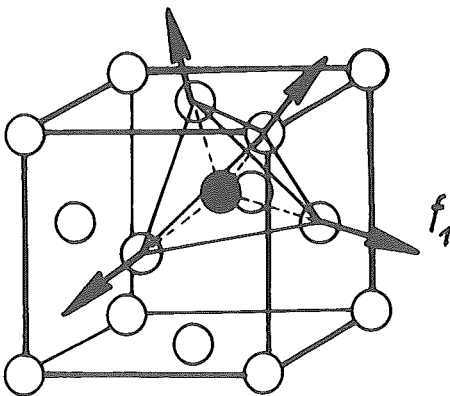


$$P = \begin{pmatrix} af_1 & 0 & 0 \\ 0 & af_1 & 0 \\ 0 & 0 & af_1 \end{pmatrix} \quad (44)$$

$$SpP = 3af_1 \quad (45)$$

$$f_1 = 3,8 \left[\frac{\text{eV}}{\text{\AA}} \right] \quad (46)$$

b) Tetraederlage:



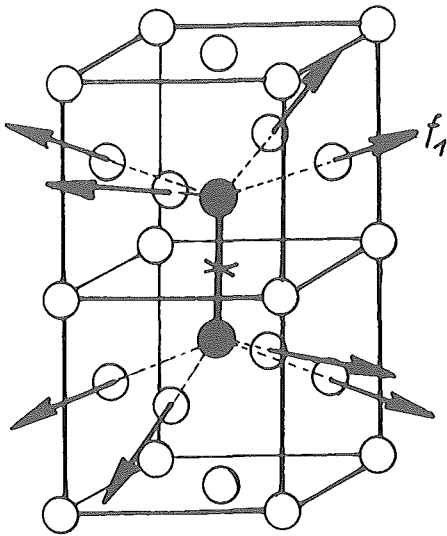
$$P = \begin{pmatrix} \frac{af_1}{\sqrt{3}} & 0 & 0 \\ 0 & \frac{af_1}{\sqrt{3}} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{af_1}{\sqrt{3}} \end{pmatrix} \quad (47)$$

$$SpP = \sqrt{3}af_1 \quad (48)$$

$$f_1 = 6,6 \left[\frac{\text{eV}}{\text{\AA}} \right] \quad (49)$$

c) 100-Hantellage:

Hier wurde angenommen, daß das obere Hantelatom nur auf die obere und das untere nur auf die untere Halbebene wirkt:



$$P = \begin{pmatrix} 4 \frac{(1-\epsilon/a)a}{\sqrt{1+(1-\epsilon/a)^2}} f_1 & 0 & 0 \\ 0 & 2 \frac{a}{\sqrt{1+(1-\epsilon/a)^2}} f_1 & 0 \\ 0 & 0 & 2 \frac{a}{\sqrt{1+(1-\epsilon/a)^2}} f_1 \end{pmatrix} \quad (50)$$

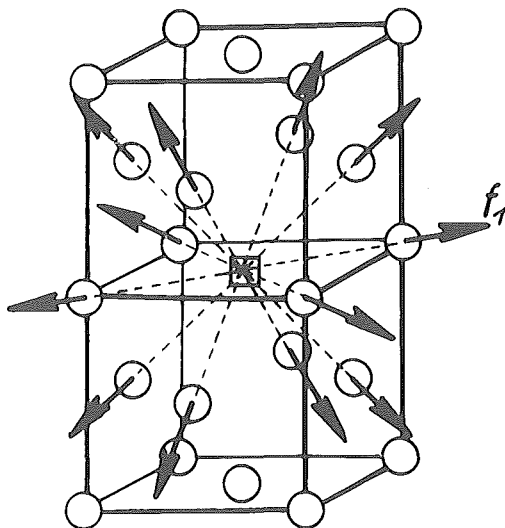
$$\frac{P_{11}}{P_{22}} = 2(1 - \epsilon/a) \quad (51)$$

$$\text{Sp } P = 4 \frac{(2 - \epsilon/a)}{\sqrt{1+(1-\epsilon/a)^2}} a f_1 \quad (52)$$

Für einen realistischen Hantelabstand $l = 0,6 a$ /11/ folgt beispielsweise:

$$f_1 = 2,2 \left[\frac{\text{eV}}{\text{\AA}} \right] \quad (53)$$

Der Doppelkrafttensor der bei Bestrahlungsexperimenten in gleicher Anzahl wie die Zwischengitteratome erzeugten Leerstelle ergibt sich zu:



$$P = \begin{pmatrix} \frac{4af_1}{\sqrt{2}} & 0 & 0 \\ 0 & \frac{4af_1}{\sqrt{2}} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{4af_1}{\sqrt{2}} \end{pmatrix} \quad (54)$$

$$\text{Sp } P = 12 \frac{af_1}{\sqrt{2}} \quad (55)$$

Aus geeigneten Zusatzkraftmodellen kann der Streuwirkungsquerschnitt für jeden Defekt nach dem in Abb. 25 gezeigten Schema für alle $\vec{q}$ -Werte berechnet werden.

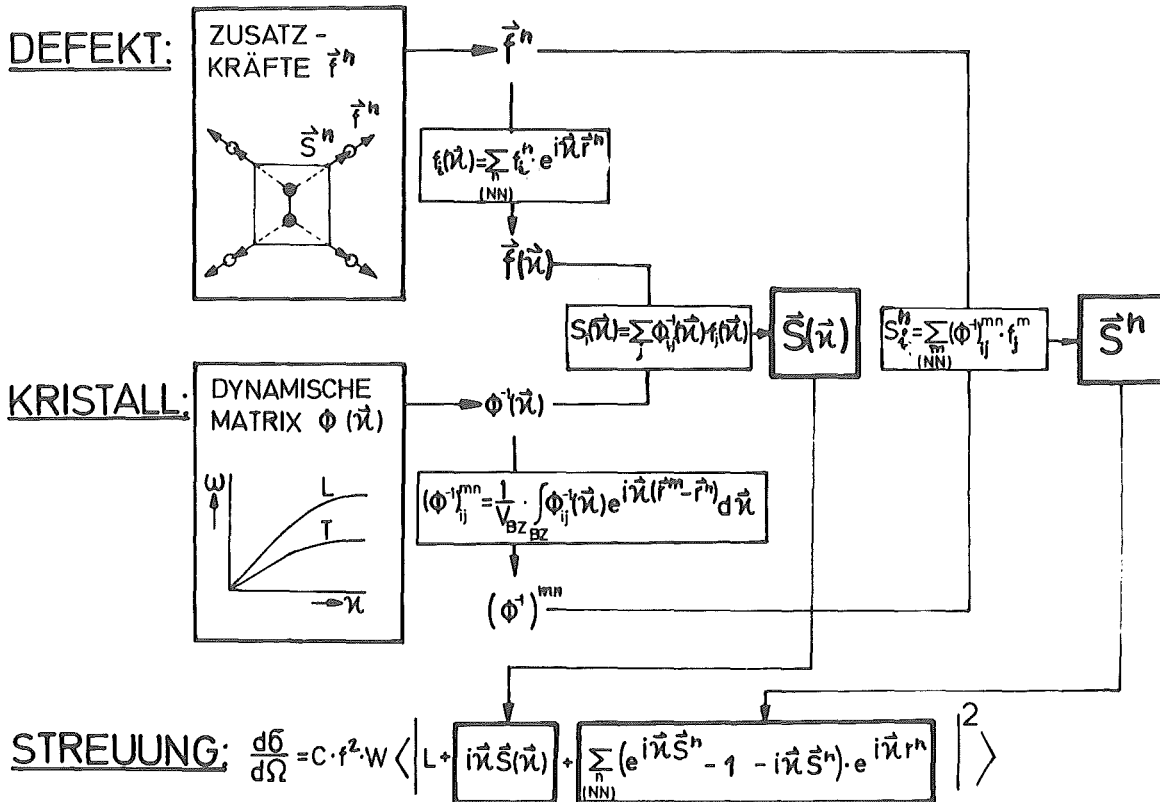


Abb. 25: Berechnung des Streuwirkungsquerschnittes aus Zusatzkraftmodellen.

Aus den Zusatzkräften $\vec{f}^m$ bzw. ihrer Fouriertransformierten $\vec{f}(\vec{r})$ können die Gitterverschiebungen $\vec{S}^n$ in der Umgebung des Defektes und die Fouriertransformierte $\vec{S}(\vec{r})$ wie folgt berechnet werden [1/]:

$$S_i^n = \sum_m^{(NN)} (\phi^{-1})_{ij}^{mn} \cdot f_j^m \quad (56)$$

$$S_i(\vec{r}) = \sum_j \phi_{ij}^{-1}(\vec{r}) \cdot f_j(\vec{r}) \quad (57)$$

Hierbei sind $\phi_{ij}^{-1}(\vec{r})$ die Elemente der inversen dynamischen Matrix des Kristalls und $(\phi^{-1})_{ij}^{mn}$ die Matrix-Elemente der Green'schen Funktion.

Die dynamische Matrix $\phi_{ij}(\vec{x})$ bestimmt sich aus den Kopplungsparametern ϕ_{ij}^{mn} durch Fouriertransformation zu:

$$\phi_{ij}(\vec{x}) = \sum_n^{(NN)} \phi_{ij}^n e^{i\vec{x}\vec{r}_n} \quad (58)$$

Für die Kopplungsparameter des Aluminiums wurden die von G. Gilat und R.M. Nicklow /17/ angegebenen Werte genommen. Sie wurden von den Autoren durch einen Born-von-Karman-Fit aus Dispersionskurven bestimmt, die von Stedman und Nilsson /18/ mit Hilfe inelastischer Neutronenstreuung bei 80 K in Symmetrierichtungen gemessen wurden. Die aus diesen Kopplungsparametern für einige Zwischenreflexgebiete berechnete dynamische Matrix wich nicht stärker als maximal 10 % von den dort erhaltenen Meßwerten ab /19/.

Zur Berechnung der Green'schen Funktion wurde ein Programm von Zentek /20/ verwendet, das durch Inversion und Rücktransformation der dynamischen Matrix die Green'schen Matrizen berechnet:

$$(\phi^{-1})_{ij}^{mn} = \frac{1}{V_{BZ}} \int_{BZ} \phi_{ij}^{-1}(\vec{x}) e^{-i\vec{x}(\vec{r}_n - \vec{r}_m)} d^3x \quad (59)$$

Die Integration erfolgt über die erste Brillouin-Zone (V_{BZ} = Volumen der Brillouin-Zone). Einige der so erhaltenen Werte für $(\phi^{-1})_{ij}^{mn}$ sind in Tabelle 3 aufgeführt.

Die hier angewendete Methode der Verschiebungsfeldberechnung erfordert bei bekannten Green'schen Matrixelementen keinen sehr großen Rechenaufwand, da nach Glg. (56) nur Summationen über wenige Nachbarn auszuführen sind. Die rechenzeitintensive Integration über die Brillouin-Zone nach Glg. (59) zur Berechnung dieser Green'schen Matrizen braucht für alle Zusatzkraftmodelle nur einmal durchgeführt werden. Dies ist der Vorteil gegenüber einer ebenfalls möglichen $\vec{S}^n$ -Berechnung aus $\vec{S}(\vec{x})$ durch Rücktransformation; denn in diesem Fall müßte die Transformations-Integration über die Brillouin-Zone für jedes Defektmodell von neuem durchgeführt werden.

Das Programm wurde in TSS-Fortran erstellt. Es gestattet die Berechnung der defektinduzierten diffusen Streuung nach dem in Abb. 25 gezeigten Schema in allen Gebieten des reziproken Gitters aus Zusatzkraftmodellen (Kräfte bis max. 10 Nachbarn) für Zwischengitter- und Substitutionsatome sowie für Leerstellen. Die näherungsweise Berechnung des Zusatzkraftfeldes von Defektagglomeraten (Doppelzwischengitteratome) erfolgte durch Addition der vorher bestimmten Zusatzkräfte der das Agglomerat bildenden Einzeldefekte.

$\begin{array}{c} ij \\ \hline m_1 \ m_2 \ m_3 \end{array}$		$(\phi^{-1})_{ij}^m \left[10^{-4} \frac{\text{\AA}^2}{\text{eV}} \right]$									
		11	12	13	21	22	23	31	32	33	
0	0	0	3676	0	0	0	0	0	0	0	3676
1	1	0	1231	0	360	1231	0	0	0	0	919
2	0	0	888	0	0	663	0	0	0	0	663
2	1	1	679	100	100	553	43	100	43	0	553
2	2	0	684	185	185	684	0	0	0	0	493
3	1	0	586	61	61	454	0	0	0	0	414
2	2	2	423	57	57	423	57	57	57	57	423

Tabelle 3: Matrixelemente der Green'schen Funktion.

Die mit diesen Programmen berechneten Wirkungsquerschnitte für Zwischengitteratome in 100-Hantel-, Oktaeder- und Tetraederlage sind in den Abbildungen 26 bis 27 gezeigt. Der Wirkungsquerschnitt für die Hantellage ergibt sich durch Mittelung der Ergebnisse für die drei möglichen 100-Lagen.

Abbildung 26 zeigt für Streuvektoren entlang 100-, 110- und 111-Richtungen im reziproken Gitter die Streuwirkungsquerschnitte in logarithmischer Darstellung. Sie sind in Abhängigkeit von der Länge des Streuvektors aufgetragen, wobei alle Wirkungsquerschnitte auf die Streuung eines Atoms (Atomformfaktor f^2) normiert sind. Das Streuverhalten der Zwischengitteratome in allen drei Lagen ändert sich in charakteristischer Weise mit der Größe des Streuvektors :

Bei kleinen $\mathcal{R}$ -Werten streut das Zwischengitteratom wesentlich weniger als es ohne Wechselwirkung mit dem Gitter streuen würde. Seine Streuamplitude f wird nämlich zu einem großen Teil durch die des Verschiebungsfeldes weginterferiert. Dessen Streuamplitude wird in der ganzen ersten Brillouinzone nur aus dem longitudinalen Anteil gebildet und ergibt sich für $\mathcal{R} \rightarrow 0$ entsprechend der Gitterparameteränderung $\frac{\Delta a}{a}$ bei Vernachlässigung der Anisotropie zu $i f \vec{\mathcal{R}} \cdot \vec{\mathcal{S}}(\mathcal{R}) \approx - 3 f \frac{\Delta a}{a} = - f \frac{\Delta V}{V} = - 1,3 f$. Die Volumenänderung $\frac{\Delta V}{V} = 1,3$ im unendlichen Gitter ergibt sich aus dem Wert von 47 eV für die Spur des Doppelkrafttensors, der den Rechnungen zugrunde liegt. Die Anisotropie des Aluminiumgitters führt zu einer Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts von der Symmetrierichtung. Dieser Anisotropieeinfluß ist bei $\mathcal{R} \rightarrow 0$ infolge der Interferenz der beiden etwa gleich großen Streuamplituden sehr groß.

Die Verschiebungsfelder von Zwischengitteratomen in Oktaeder- und Tetraederlage haben kubische Symmetrie für großen Abstand vom Defekt. Die Streuwirkungsquerschnitte für Zwischengitteratome in diesen beiden Lagen sollten daher bei $\mathcal{R} \rightarrow 0$ den gleichen Wert haben, während der Wirkungsquerschnitt für die anisotrope Hantel trotz Mittelung über die 3 möglichen Lagen bei $\mathcal{R} \rightarrow 0$ einen unterschiedlichen Wert haben sollte. Dieses Verhalten wird durch die Rechnung bestätigt, wie ein Blick in die Abb. 26 zeigt.

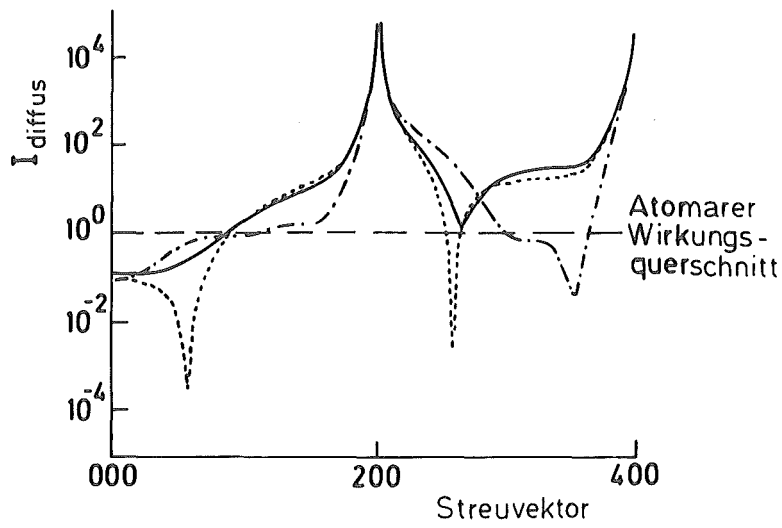
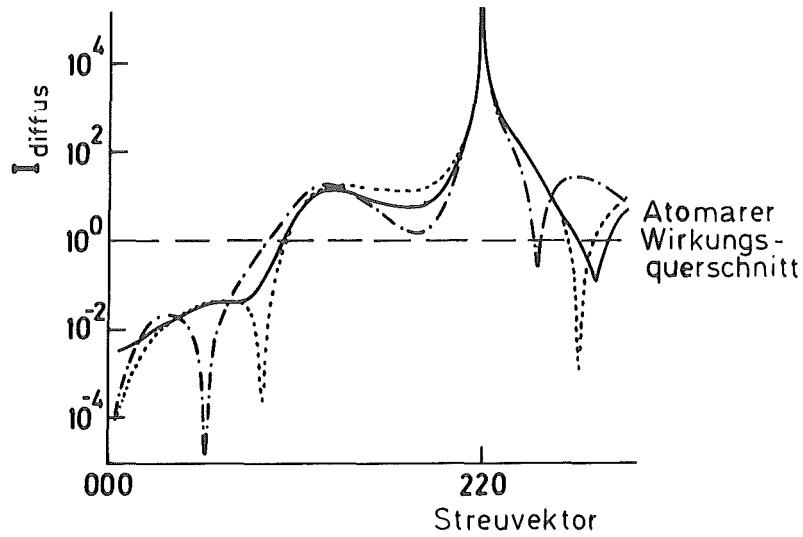


Abb. 26:

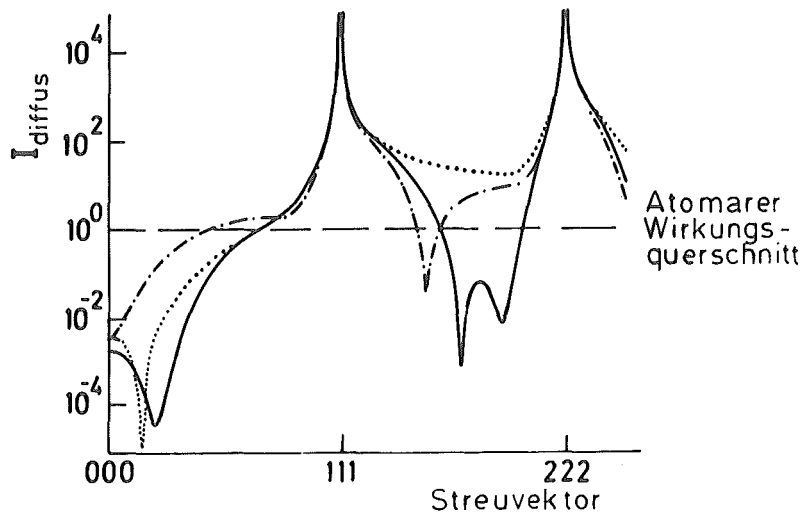
Berechnete Streuwirkungsquerschnitte für verschiedene Zwischengitteratomlagen in Aluminium.



$\langle 100 \rangle$ -Hantel-lage

Tetraeder-lage

Oktaeder-lage



Mit größer werdenden Streuvektoren steigt der Wirkungsquerschnitt an, da die Verschiebungsfeldstreuung innerhalb der ersten Brillouin-Zone mit wachsendem $\mathcal{K}$ abnimmt. Im Fall der Hantel wird an der Brillouin-Zonengrenze bei $\mathcal{K} = \pi/2$ die Fouriertransformierte des Verschiebungsfeldes Null, da der Defekt auf einem Gitterplatz sitzt und ein inversions-symmetrisches Verschiebungsfeld hat. Die Streuung setzt sich in diesem Fall nur aus Defekt- und Nahfeldamplitude (3. Term in Glg. (3)) zusammen.

Mit Annäherung an den Braggreflex gewinnt die Fouriertransformierte des Verschiebungsfeldes wieder mehr an Einfluß, bis sie schließlich in unmittelbarer Nähe des Reflexes den Anstieg der Streuintensität im Huang-Gebiet verursacht. Ähnliches Verhalten zeigt auch der Wirkungsquerschnitt für das Zwischengitteratom in den beiden anderen Lagen. Für noch größere $\mathcal{K}$ -Werte fällt die Streuintensität wieder ab. Da das Periodizitätsvolumen des Phasenfaktors $\exp(-i\mathbf{\mathcal{K}} \cdot \mathbf{R}_D)$ in Glg. (2) von der Zwischengitteratomlage $\mathbf{R}_D$ abhängt, streut das Zwischengitteratom je nach Lage stark unterschiedlich.

Ein Blick in die Abbildung 26 zeigt, daß zur Strukturbestimmung von Zwischengitteratomen das Gebiet der ersten Brillouin-Zone wenig geeignet ist, da dort der Wirkungsquerschnitt sehr klein ist. Im Fall von Frenkeldefekten wird er zusätzlich durch einen wesentlich größeren Leerstellenwirkungsquerschnitt überlagert, der hier ungefähr den Wert 1 hat. Günstiger sind für diesen Zweck die Gebiete zwischen den ersten Reflexen, wo große Unterschiede im Streuverhalten bei hohen Werten des Wirkungsquerschnittes auftreten. Nachteilig ist hier jedoch, daß bei diesen relativ großen $\mathcal{K}$ -Werten der Compton-Untergrund sehr stark ist.

Besser geeignet ist zur Strukturuntersuchung von Zwischengitteratomen das Gebiet zwischen 200- und 111-Reflex, welches bei kleineren $\mathcal{K}$ -Werten untergrundmäßig günstiger auszumessen ist. Die berechneten Streuprofile für die betrachteten 3 Zwischengitteratomlagen sind in Abbildung 27 gezeigt.

Der Wirkungsquerschnitt ist in linearer Darstellung für Streuvektoren angegeben, deren Endpunkte wie bei den Messungen auf Ewaldkreisen ($\lambda = 1,54 \text{ \AA}$) in der 110-Ebene des reziproken Gitters lie-

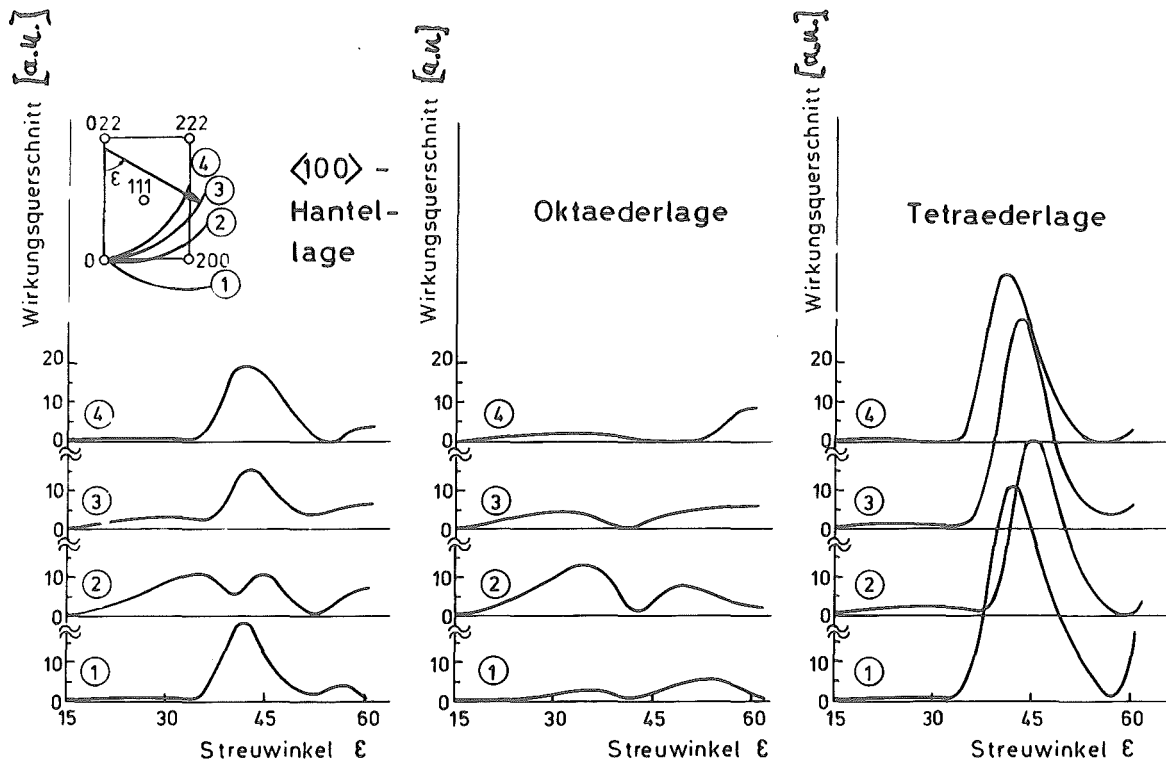


Abb. 27: Berechnete Zwischenreflexstreuung für verschiedene Zwischengitteratomlagen in Aluminium.

gen, wie dies im Einsatzbild angedeutet ist. Der Winkel ϑ zwischen 110-Achse und Primärstrahl $\vec{K}_0$ hatte die Werte:

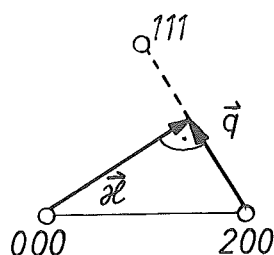
$$\vartheta_1 = -45^\circ; \vartheta_2 = -11^\circ; \vartheta_3 = -1,5^\circ; \vartheta_4 = 11^\circ.$$

Die Zwischengitteratome streuen in allen 3 Lagen mit großen Wirkungsquerschnitten. Für jede der drei Lagen ergibt die Rechnung jedoch ein unterschiedliches charakteristisches Streuprofil. Dies bedeutet, daß in diesem Gebiet die Nahfeldstruktur sehr empfindlich in den Wirkungsquerschnitt eingeht; denn die großen Unterschiede zwischen Tetraeder- und Oktaederlage können nur durch unterschiedliche Verschiebungen in der Nahzone verursacht werden, da die Fernfelder bei diesen großen q-Werten kaum zur Streuung beitragen und außerdem bei beiden Lagen die gleiche kubische Symmetrie aufweisen und gleich groß sind. Eine genaue Analyse der einzelnen Streubeiträge zeigt, daß in diesem Gebiet alle drei Terme der Glg. (3) wesentlich zur Streuung beitragen: Das Nahfeld streut sowohl durch seine Fouriertransformierte als auch explizit im Nahfeldterm. Beide Terme interferieren mit der Lauestreuung des Defektes, der in diesem Gebiet ebenfalls wesentlich zur Streuung beiträgt.

Der unterschiedliche Einfluß des Verschiebungsfeldes bei Oktaeder- und Tetraederlage wird am verständlichsten, wenn der Koordinatenursprung für die verschiedenen Defektlagen nicht im Defekt, sondern in einem Gitteratom angenommen wird.

Im ersten Fall weisen sowohl bei der Oktaeder- als auch bei der Tetraederlage die Verschiebungsfelder auch der Nahzone jeweils radial vom Defekt nach außen. Der große Unterschied im Streuverhalten ergibt sich bei dieser Betrachtung durch die verschiedene Abstandsverteilung der Gitteratome in der Nahzone um den Defekt sowie durch die unterschiedliche Größe dieser radialen Verschiebungen.

Nimmt man den Koordinatenursprung nicht im Defekt, sondern für alle Lagen in einem gleichen benachbarten Gitteratom an, so ergeben sich zwar wegen des auftretenden Phasenfaktors unterschiedliche, etwas kleinere Werte für die Lauestreuung, die Gitterverschiebungen können dafür jedoch an jedem Atom direkt miteinander verglichen werden. Auf diesen neuen Ursprung bezogen, haben die Verschiebungen nur noch in großem Abstand vom Defekt radiale Richtungen. Die Fouriertransformierte des Verschiebungsfeldes trägt daher bei Oktaeder- und Tetraederlage in gleichem Maße zur Streuung im Huang-Gebiet bei. In der Nahzone macht sich der Unterschied zwischen Defektlage und Koordinatenursprung dadurch bemerkbar, daß das Verschiebungsfeld, bezogen auf den Koordinatenursprung, transversale Komponenten bekommt. Diese sind für Oktaeder- und Tetraederlage verschieden groß. Die auf den neuen Ursprung bezogene Fouriertransformierte der Gitterverschiebungen hat daher für große q -Werte je nach Defektlage verschieden große Transversalkomponenten. Diese unterschiedlichen Transversalkomponenten bestimmen auf der Verbindungslinie zwischen 200- und 111-Reflex jedoch die Größe der Verschiebungsfeldstreuung, da der Streuvektor $\vec{q}$ hier ungefähr senkrecht auf $\vec{q}$ steht:



Das unterschiedliche Streuverhalten des Zwischengitteratoms in Oktaeder- und Tetraederlage ist daher auch anschaulich verständlich. Das unterschiedliche Streuverhalten der Hantel ist zu erwarten, da das Verschiebungsfeld in diesem Fall keine kubische Symmetrie mehr aufweist.

Um ein Gefühl für die Wichtigkeit der einzelnen Streubeiträge zu bekommen, ist der Einfluß von Laue-, Fourier- und Nahfeldterm in Abbildung 28 am Beispiel des Zwischengitteratoms in 100-Hantellage gezeigt:

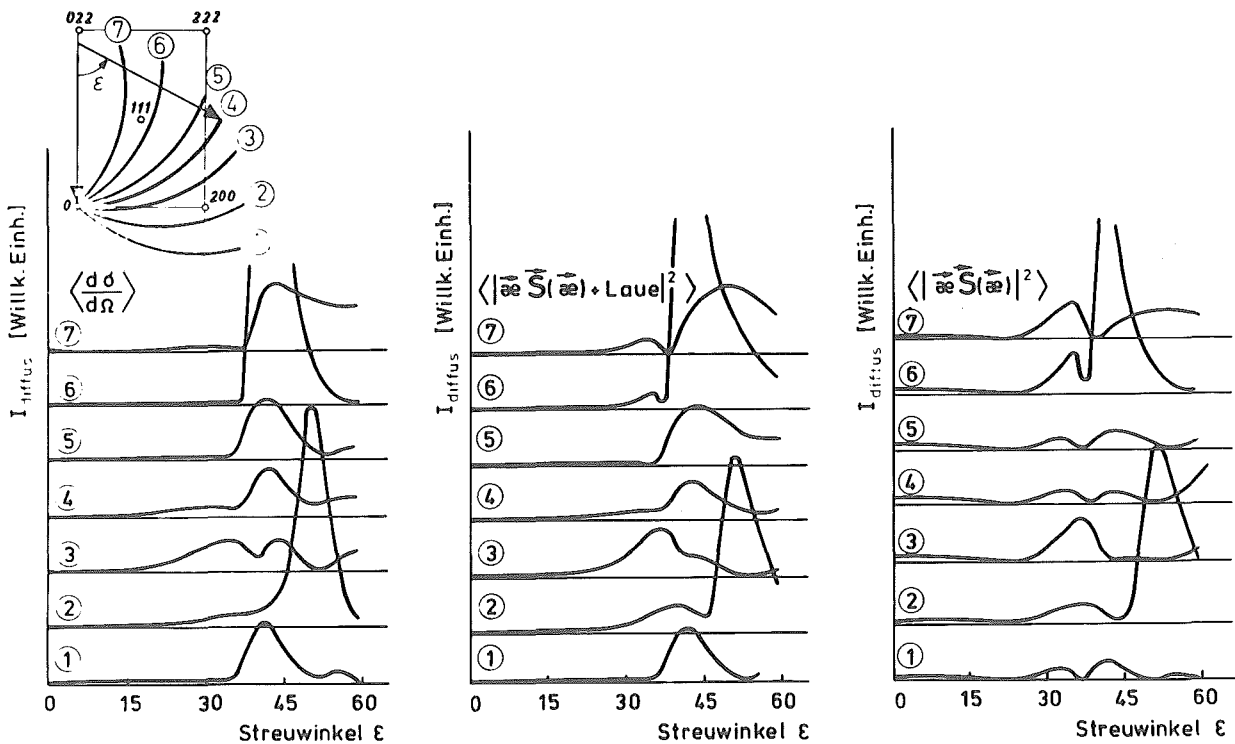


Abb. 28: Streubeiträge der 100-Hantel.

Die Fouriertransformierte $\vec{S}(\vec{\epsilon})$ beschreibt das Streuverhalten nur in der Nähe der Braggreflexe (Kurven ② und ⑥). Erst die Summe aus Fouriertransformierte und Lauestreuung gibt auch zwischen den Reflexen die Haupteigenschaften des Streuverhaltens recht gut wieder. Durch höhere Ordnungen von $\vec{S}(\vec{\epsilon})$ (= Nahfeldterm in Glg. (3)) wird der Wirkungsquerschnitt noch in wesentlichen Einzelheiten verändert. Man erkennt daran, daß zur vollständigen Beschreibung des Streuverhältnisses alle drei Terme der Glg. (3) gleich wichtig sind. Der Nahfeldterm wird dabei fast vollständig durch die Verschiebungen der nächsten Nachbarn gegeben.

5.3. Bestimmung der Struktur des Zwischengitteratoms in Aluminium.

5.3.1. Einzeldefekte.

Die Auswertung der Messungen erfolgt in zwei Schritten: Durch einen qualitativen Vergleich der Meßkurven mit den für Zwischen-gitteratome in Oktaeder-, Tetraeder- und 100-Hantellage näherungs-weise berechneten Streukurven wird zuerst die Lagebestimmung des Zwischengitteratoms durchgeführt. Im zweiten Schritt wird dann bei bekannter Defektlage eine quantitative Anpassung der berechneten Werte an die Meßwerte versucht. Dies geschieht durch Variation aller noch freien Parameter.

Der Vergleich erfolgt für das Streuverhalten im Zwischenreflexgebiet. Dort ist die Streuung der durch die Elektronenbestrahlung erzeugten Leerstellen und ZGA hauptsächlich durch Laue- und Verschiebungsfeldstreuung des Zwischengitteratoms gegeben. Der Beitrag der Leerstellen ist wegen des kleineren Verschiebungsfeldes um eine Größenordnung geringer und braucht für einen qualitativen Vergleich nicht berücksichtigt zu werden.

Der Vergleich der Meßwerte der Übersichtsmessung (Al 1) mit dem für gleiche Streuvektoren berechneten Streuwirkungsquerschnitt für ein Zwischengitteratom in 100-Hantellage ist in Abb. 29 gezeigt.

Die jeweiligen Streubilder sind in willkürlichen Einheiten gegenübergestellt. Für alle im Zwischenreflexgebiet liegenden Meßkurven ① bis ④ besteht eine gute Übereinstimmung. Die Abweichungen der Meßwerte vom berechneten 100-Hantelwirkungsquerschnitt sind wesentlich kleiner als die großen Unterschiede im Streuverhalten der verschiedenen Zwischengitteratomlagen untereinander (siehe Abb. 27). Das Zwischengitteratom kann daher nicht in nennenswertem Umfang in Oktaeder- oder Tetraederlage vorliegen: Durch Tieftemperaturbestrahlung bei 4.7 K mit 3 MeV-Elektronen werden in Aluminium die Zwischengitteratome in 100-Hantellage erzeugt.

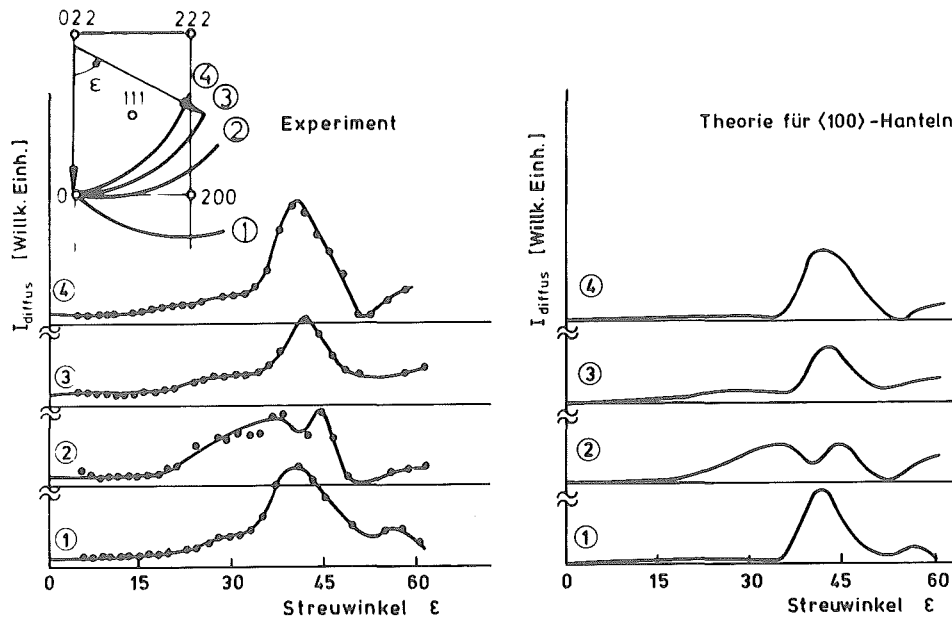


Abb. 29: Zwischenreflexstreuung von Aluminium nach Bestrahlung mit 3 MeV Elektronen bei 4.7 K.
Vergleich von Experiment und Theorie.

Nachdem die Zwischengitteratomlage als 100-Hantellage bestimmt worden ist, soll jetzt durch Variation der noch freien Parameter eine auch quantitative Übereinstimmung der Rechnung mit den Meßdaten erreicht werden. Die Defektbeschreibung soll dabei weiterhin durch das Modell der Zusatzkräfte erfolgen.

Als Parameter gehen in die Streuwirkungsquerschnitts-Berechnung die folgenden Größen ein:

- 1.) Hantelabstand
- 2.) Reichweite, Größe und Richtung der Zusatzkräfte
- 3.) Defektkonzentration
- 4.) Beitrag der Leerstelle zur Streuung.

Viele dieser Parameter sind innerhalb relativ geringer Fehlergrenzen bekannt. Für den Hantelabstand l erhalten Seeger et al. /11/ für Kupfer den theoretischen Wert $l = 0.6 a$. Gemessene Werte liegen nicht vor. Reichweite, Größe und Richtung der Zusatzkräfte könnten aus Atompotentialen abgeschätzt werden. Lei-

der sind die Unterschiede zwischen den nach verschiedenen Methoden von den Autoren erhaltenen Potentialen (Zusammenfassung in /22/) so groß, daß auf diese Weise keine brauchbare Abschätzung über die Reichweite und die Größe und Richtung der Zusatzkräfte gemacht werden ^{kann}. Alle Zusatzkraftmodelle für die 100-Hantellage müssen jedoch mit folgenden Werten für Komponenten und Spur des Doppelkrafttensors verträglich sein, welche durch Messungen der diffusen Röntgenstreuung im Huang-Gebiet experimentell bestimmt wurden /10/:

$$|P_{11} - P_{22}| = 2 \pm \frac{4}{2} \text{ [eV]} \quad (60)$$

$$P_{ij} \leq 1 \text{ [eV]} \quad (i \neq j) \quad (61)$$

$$Sp \ P = 36 \dots 47 \text{ [eV]} \quad (62)$$

Während sich die Unsicherheit im P_{11}/P_{22} -Verhältnis direkt aus der Meßungenauigkeit der Messung ergab, wurde die Ungenauigkeit in der Spur-Bestimmung durch den unbekannten Beitrag der Leerstelle zur Volumenaufweitung des Kristalls verursacht. Nimmt man einen Beitrag der Gitterrelaxation um die Leerstelle von $\sim 0,4$ Atomvolumina an, folgte aus den Messungen der Wert 36 eV, während sich bei vernachlässigbarem Leerstellenbeitrag der Wert 47 eV ergab. Leider ist die Gitterrelaxation um die Leerstelle unbekannt. Daher konnte auch der Beitrag eines Frenkeldefektes zum elektrischen Widerstand aus diesen Messungen nur in den entsprechenden Grenzen bestimmt werden:

$$\frac{\Delta \rho}{\rho} = 3,9 \dots 2,4 \left[\frac{\mu\Omega\text{cm}}{\text{at \%}} \right] \quad (63)$$

Für die Auswertung der vorliegenden Messungen bedeutet dies, daß die Defektkonzentration durch die mitgemessene Widerstandsänderung nur in diesen Grenzen bestimmt werden konnte.

Als Ausgangspunkt für den quantitativen Fit dienten 100-Hanteln mit Hantelabständen, die ausgehend vom berechneten Kupfer-Wert $l = 0,6a$ /11/ für die Anpassungsversuche etwas zu größeren und kleineren Werten variiert wurden: $l = 0,5a; 0,6a; 0,65a$. Im

Kraftmodell wurden Kräfte nur zu den ersten Nachbarn verwendet. Auf alle weiter entfernten Nachbarn werden vom Defekt vermutlich wesentlich kleinere Kräfte ausgeübt, da die Kräfte rasch mit zunehmenden Abstand abfallen. Zudem sind die Abstände zum zweiten und dritten Nachbarn etwa so groß wie die Abstände nächster Nachbarn im Gitter, für welche die Zweikörperpotentiale sehr flach verlaufen. Zum besseren Verständnis ist die Lage der sieben nächsten Nachbarn mit den zugehörigen Abstandsvektoren in Abb. 26 gezeigt, während die Anzahl der Nachbarn und der jeweilige Nachbarabstand in Tabelle 4 angegeben ist.

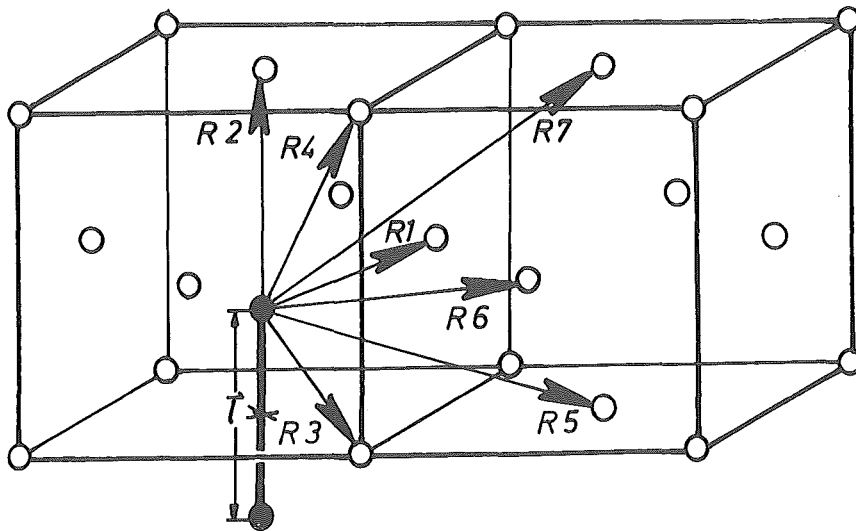


Abb. 26: Lage der nächsten Nachbarn eines Hantelatoms.

Beschränkt man sich weiterhin auf Zentralkräfte zu den ersten Nachbarn wie dies im Fit getan wurde, so wird das Verhältnis P_{11}/P_{22} der Komponenten des Doppelkrafttensors allein durch den Hantelabstand nach Glg. (51) festgelegt zu:

$$\frac{P_{11}}{P_{22}} \leq \begin{cases} 1,0 & (l = 0,5a) \\ 0,8 & (l = 0,6a) \\ 0,7 & (l = 0,65a) \end{cases} \quad (64)$$

Alle Werte liegen im Bereich der durch Huang-Streuung /10/ gemessenen P_{11}/P_{22} -Werte:

$$\frac{P_{11}}{P_{22}} = 0,7 \dots 1,4 \quad (65)$$

Abstands- vektor	100 - Hantel						Gitter		
	l=0,5a		l=0,6a		l=0,7a		Atom	Zahl der Nachbarn	Abstand zum Atom 000
	Abstand zum Defekt	Zahl der Nachbarn	Abstand zum Defekt	Zahl der Nachbarn	Abstand zum Defekt	Zahl der Nachbarn			
R1	0,56a	8	0,54a	8	0,522a	8			
R2	} 0,75a	6	0,7 a	2	0,65 a	2	110	12	0,707a
R3			0,77a	4	0,79a	4			
R4	} 1,03a	12	1 a	8	0,96a	8	200	6	1 a
R5			1,04a	4	1,16a	4			
R6	1,145	16	1,14a	16	1,13a	16			
R7	1,25	8	1,22a	8	1,19a	8	220	24	1,22 a

Tabelle 4: Nachbarabstände der Hantel.

wobei sich der wahrscheinlichste Wert im Fall $P_{11} < P_{22}$ zu

$$\frac{P_{11}}{P_{22}} = 0,87 \quad (66)$$

ergab, was einem Hantelabstand von etwa 0,55a entspricht.

Da für das verwendete Zentralkraftmodell auch alle Nichtdiagonalelemente $P_{ij} (i \neq j)$ in Übereinstimmung mit den Meßergebnissen aus /10/ Null werden, sind alle für die Fits verwendeten Hantelabstände im Bereich $0,5 \leq l/a \leq 0,65$ mit den bisher gemessenen P_{11}/P_{22} -Verhältnissen verträglich.

Die Spur des Doppelkrafttensors, d.h. die Größe der Zusatzkräfte, und die Defektkonzentration können noch im Wertebereich der Glg. (62) und (63) variiert werden, um eine quantitative Anpassung an die Meßdaten zu erreichen. Diese wurde so durchgeführt, daß von drei möglichen festen Werten für die Spur des Doppel-

krafttensors ausgegangen wurde:

$$Sp P = 36 \text{ eV}, 41 \text{ eV}, 47 \text{ eV} \quad (67)$$

Die Werte 36 eV und 47 eV sind Grenzwerte aus /10/, während 41 eV ein mittlerer Wert ist.

Als feste Parameter für jeden Fit würden daher die in Tabelle 5 zusammengestellten Werte für Hantelabstand l und Größe der Kan-zaki-Zentralkraft f_k benützt. Diese ergibt sich nach Glg. (52) aus der Spur des Doppelkrafttensors.

SpP [eV] \ l [Å]	0,5	0,6	0,65
36	$f_k = 1,6$	$f_k = 1,7$	$f_k = 1,75 \left[\frac{\text{eV}}{\text{Å}} \right]$
41	$f_k = 1,85$	$f_k = 1,95$	$f_k = 2,0 \left[\frac{\text{eV}}{\text{Å}} \right]$
47	$f_k = 2,1$	$f_k = 2,23$	$f_k = 2,27 \left[\frac{\text{eV}}{\text{Å}} \right]$

Tabelle 5: Größe von Hantelabstand und Kan-zaki-Kraft in den durchgeführten Fits.

Die einzelnen Fits wurden so durchgeführt, daß für jeweils einen Wert des Hantelabstandes und einen Kraftwert der Streuwirkungsquerschnitt des Zwischengitteratoms berechnet wurde. Nach Addition mit einem näherungsweise angenommenen Wirkungsquerschnitt $\frac{d\sigma}{d\Omega} = f^2$ für die Leerstelle wurde der so berechnete Wirkungsquerschnitt in einem ersten Schritt durch Variation der Defektkonzentration an die Meßergebnisse im Zwischenreflexgebiet angeglichen; denn dort liefert die nur näherungsweise berücksichtigte Leerstellenstreuung nur einen kleinen Streubeitrag. Unter Zugrundelegung der so näherungsweise bestimmten Defektkonzentration wurde dann die Gitterrelaxation der Leerstelle aus dem gemessenen Wirkungsquerschnitt bei $\vartheta \rightarrow 0$ bestimmt. Der über alle gemessenen Richtungen gemittelte Wirkungsquer-

schnitt

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\alpha \rightarrow 0) = (2,2 \pm 0,1) \cdot 10^{-6} \left[\frac{\text{e.u.}}{\text{m}^2 \text{cm}} \right] \quad (68)$$

wurde zu diesem Zweck mit der aus Glg. (5) für den isotropen Fall folgenden Beziehung

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\alpha \rightarrow 0) = C f^2 W \left| 1 - \frac{\Delta V_{\infty}^{LS}}{\bar{V}} \right|^2 + C f^2 W \left\langle \left| 1 - \frac{\Delta V_{\infty}^{BGA}}{\bar{V}} \right|^2 \right\rangle \quad (69)$$

verglichen und auf diese Weise die Gitterrelaxation der Leerstelle näherungsweise berechnet.

In einem zweiten Schritt wurde dann auch der so bestimmte Leerstellenanteil bei der Wirkungsquerschnittsberechnung im Zwischenreflexgebiet berücksichtigt. Hierfür wurde ein Zentralkraftmodell nach Glg. (54-55) verwendet. Durch neuerliche Anpassung an die Meßergebnisse wurde eine geänderte Defektkonzentration bestimmt, was wiederum zu einer neuen Volumenaufweitung durch die Leerstelle führte. Das Verfahren wurde fortgesetzt, bis sich ein selbstkonsistentes Wertepaar für Defektkonzentration und Leerstellenanteil an der Volumenänderung ergab.

Den Fits wurden die am genauesten gemessenen Wirkungsquerschnitte von Al 2 bei $A_P/A_{R_0} = 0,96$ zugrunde gelegt. Im Zwischenreflexgebiet war es nicht mit allen Parametersätzen möglich, durch Variation von Defektkonzentration und Leerstellenbeitrag einen guten Fit zu machen. Dies ist in Abb. 27 gezeigt, in der für 2 verschiedene Parametersätze ($l = 0,6a$; SpP = 47 eV und $l = 0,5a$, SpP = 36 eV) jeweils der beste Fit gezeigt ist.

Für alle Parametersätze sind in Tabelle 6 die für Konzentration und Volumenaufweitung der Leerstelle erhaltenen Ergebnisse zusammengestellt, wobei in der Spalte "Fitqualität" die Güte des Fits angedeutet ist. Viele Minuszeichen bedeuten, daß verglichen mit dem besten Fit, die Beschreibung der Meßwerte wesentlich schlechter war.

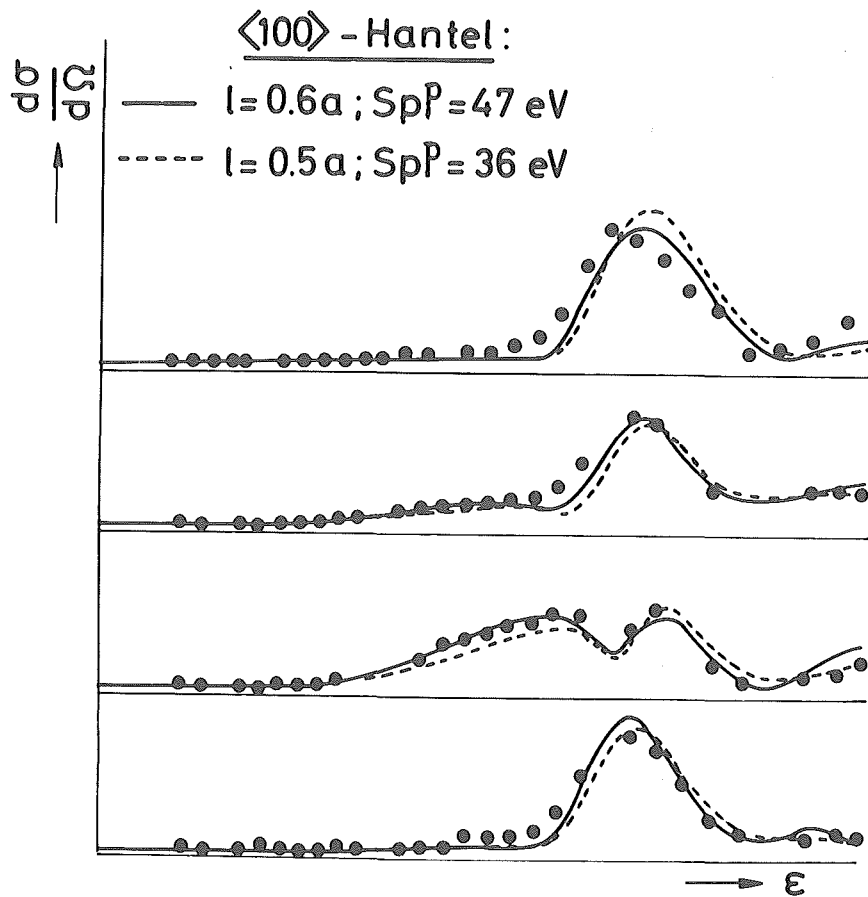


Abb. 27: Empfindlichkeit des Fits auf Parametervariation.

Vorgegebene Parameter		Angepaßte Parameter		Fitqualität
Hantel-abst. $l [a]$	Kanzakikraft zu Nachbarn $[eV/\text{\AA}]$	Defektkon- zentration $(\Delta\varphi_0 = 186,5 \text{ n\AA cm})$	Volumenaufw. (relax.) der Leerstelle $\gamma \frac{\Delta V}{\Omega}$	
0,5	1,6	$5,1 \cdot 10^{-4}$	-0,15	---
	1,85	$5,4 \cdot 10^{-4}$	-0,2	---
	2,1	$4,6 \cdot 10^{-4}$	-0,1	---
0,6	1,7	$5,5 \cdot 10^{-4}$	-0,2	--
	1,95	$4,6 \cdot 10^{-4}$	-0,1	-
	2,23	$4,38 \cdot 10^{-4}$	-0,05	0
	2,3	$4,2 \cdot 10^{-4}$	-0,03	0
0,65	1,75	$5,4 \cdot 10^{-4}$	-0,2	----
	2,0	$4,6 \cdot 10^{-4}$	-0,1	---
	2,27	$4,38 \cdot 10^{-4}$	-0,05	-

Tabelle 6: Ergebnisse der einzelnen Fits.

Tabelle 7 zeigt eine Zusammenstellung der relevanten Größen, die aus den gefitteten Werten der Tabelle 6 berechnet werden können. Die Werte des besten Fits, der in Abb. 28 gezeigt ist, sind umrahmt eingetragen.

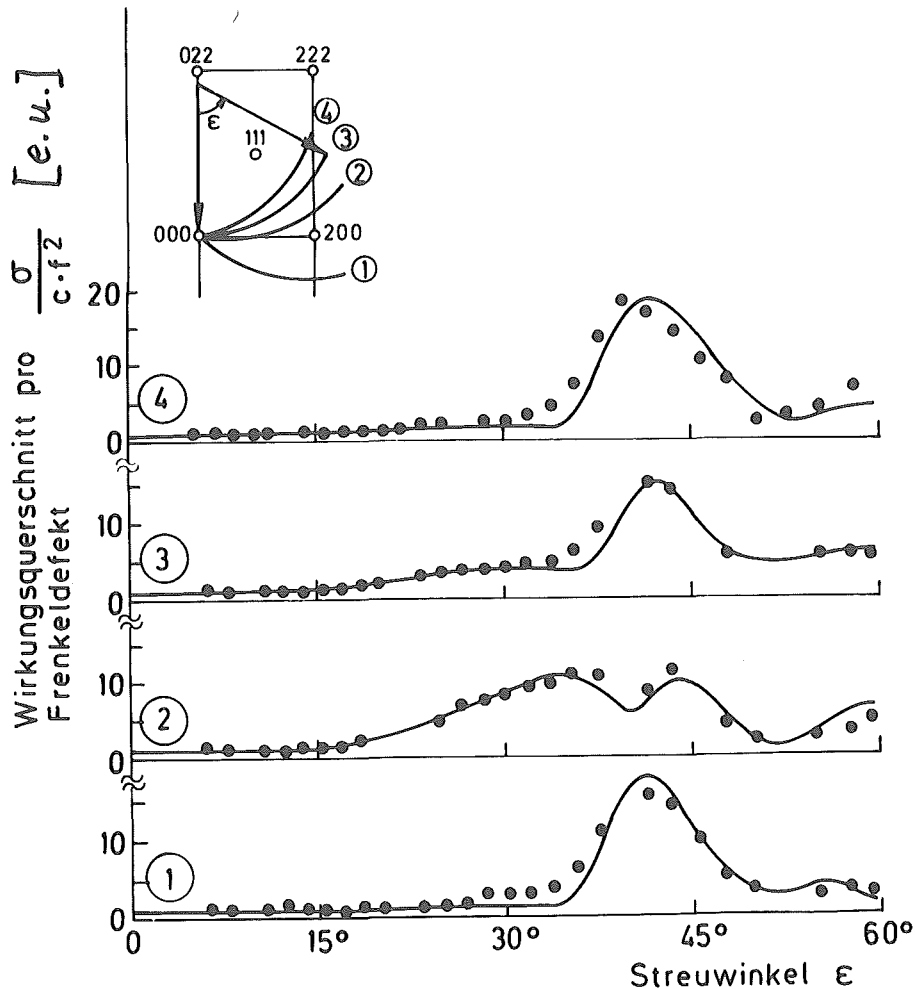


Abb. 28: Quantitativer Fit von Zentralkraftmodellen zu nächsten Nachbarn an die Meßwerte.

Die Daten von Zwischengitteratom und Leerstelle ergeben sich direkt aus den Werten der Tabelle 6. Die gefittete Konzentration wurde auf die Änderung des elektrischen Widerstands bezogen und ist als $\Delta R_F = \Delta R / c$ -Wert in die Tabelle eingetragen. In der vorletzten Spalte ist der Wert $\eta = \frac{8 \Delta V}{\Delta R_F}$ unter Verwendung der Volumenänderung eines Zwischengitteratom/Leerstellen-Paares eingetragen. Die letzte Spalte enthält die Werte für den Ausdruck

Hantel- abstand l [Å]	100-Hantel		Leerstelle		ZGA/LS-Paar		E1.Widerstand pro ZGA/LS- Paar $\Delta\theta$ [%]	η $10^3 (\Omega \text{cm})^{-1}$	$\frac{(SpP_{ZGA})^2}{3\theta_F}$ $10^6 \text{eV}^2 / \Omega \text{cm}$
	SpP [eV]	$\gamma \frac{\Delta V_{\infty}}{\Omega}$	SpP [eV]	$\gamma \frac{\Delta V_{\infty}}{\Omega}$	SpP [eV]	$\gamma \frac{\Delta V_{\infty}}{\Omega}$			
0,5	36	1,48	-3,7	-0,15	32	1,33	3,66	1,2	1,18
	41	1,68	-4,9	-0,2	36	1,48	3,46	1,42	1,62
	47	1,92	-2,2	-0,1	45	1,83	4,05	1,52	1,82
0,6	36	1,48	-4,9	-0,2	31	1,28	3,4	1,25	1,27
	41	1,68	-2,2	-0,1	39	1,6	4,05	1,32	1,38
	47	1,92	-1,1	-0,05	46	1,87	4,26	1,48	1,73
0,65	36	1,48	-4,9	-0,2	31	1,27	3,46	1,22	1,25
	41	1,68	-2,2	-0,1	39	1,58	4,05	1,32	1,38
	47	1,92	-1,1	-0,05	46	1,87	4,26	1,48	1,73

Tabelle 7: Zusammenstellung der gefitteten Parameter.

$\frac{(SpP)^2}{3\theta_F}$, der mit dem Doppelkrafttensor des Zwischengitteratoms berechnet wurde. Diese beiden Werte lassen sich mit Ergebnissen aus Messungen des Gitterparameters und der Huang-Streuung vergleichen.

Aus Gitterparametermessungen an elektronenbestrahltem Aluminium wurden η -Werte von $(0,9 \pm 0,3) \cdot 10^3 (\Omega \text{cm})^{-1}$ /24/ bzw.

$(1,61 \pm 0,1) \cdot 10^3 (\Omega \text{cm})^{-1}$ /25/ bestimmt. Der zuletzt aufgeführte Wert sollte mit dem hier bestimmten Wert am besten übereinstimmen, da diese Messung ebenfalls in ähnlicher Bestrahlungsgeometrie an der gleichen Bestrahlungsanlage durchgeführt wurde. Der im besten Fit bestimmte Wert $\eta = 1,48 \cdot 10^3 (\Omega \text{cm})^{-1}$ stimmt innerhalb der Fehlergrenzen mit diesem Wert überein.

Mit der Huangstreuung /10/ wurde der Wert $\frac{(S_{PP})^2}{3\epsilon_F} = (1,86 \pm 0,2) \cdot 10^6$ $[\text{eV}^2 / \text{cm}]$ gemessen. Der Wert des besten Fits von $1,73 \cdot 10^6 (\text{eV}^2 / \text{cm})$ stimmt mit diesem Wert innerhalb der Fehlergrenzen ebenfalls gut überein.

Eine Beschreibung der Hantel mit nur zwei anpaßbaren Parametern, nämlich Hantelabstand und Größe der Kanzaki-Kraft zu den nächsten Nachbarn, reicht daher offensichtlich aus, um aus der Zwischenreflexstreuung Ergebnisse zu erhalten, die mit den bisher durchgeführten Messungen der Gitterparameteränderung und der Huang-Streuung übereinstimmen.

Mit diesem Modell erhält man dann aus dem besten Fit die in Tabelle 8 zusammengestellten Ergebnisse für Eigenzwischengitteratome und Leerstellen in Aluminium. In der Tabelle sind zum Vergleich auch die Werte angegeben, die durch Kombination der Ergebnisse von Gitterparametermessung und Huang-Streuung berechnet werden können, wenn für die Leerstelle eine vernachlässigbare kleine Gitterrelaxation vorausgesetzt wird.

In der Tabelle sind folgende Größen aufgeführt: Der Hantelabstand l in Einheiten der Gitterkonstanten a ; die Kanzaki-Kraft f_k zu den nächsten Nachbarn; die Verschiebung S_{NN}^{NN} des nächsten Nachbarn; die Spur $S_P P$ sowie die Anisotropie $\frac{P_{22} - P_{11}}{S_P P}$ des Doppelkrafttensors vom Zwischengitteratom sowie die Volumenrelaxation von Zwischengitteratom und Leerstelle. Außerdem ist die Änderung des elektrischen Widerstands pro Frenkeldefekt $\Delta R/c$ eingetragen.

	l [Å]	f_k^{NN} [eV/Å]	s^{NN} [Å]	$Sp\ P$ [eV]	$\frac{P_{22}-P_{11}}{Sp\ P}$	V_Z [At.vol.]	V_L [At.vol.]	$\frac{\Delta\rho}{c}$ [$\mu\Omega\text{cm}/\text{At}\%$]
Bester Fit	0,6 $\pm 0,05$	2,2 $\pm 0,2$	0,1 $\pm 0,01$	47 ± 5	0,07 $\pm 0,03$	1,9 $\pm 0,2$	-0,05 $\pm 0,05$	4,2 $\pm 0,8$
Huang-Streuung und Gitterparameter	-	-	-	47 ± 5	0,04 (+0,08) (-0,04)	1,9 $\pm 0,2$	-	3,9 $\pm 0,6$

Tabelle 7: Ergebnisse für Frenkeldefekte in Aluminium.

Die Unsicherheit in der Ermittlung des besten Fits führt zu Fehlergrenzen von etwa $\pm 10\%$ in den Parametern l und f_k^{NN} . Hieraus ergeben sich die angegebenen Fehlergrenzen für die übrigen Werte. Die Genauigkeit des $\Delta\rho/c$ -Wertes ist mit $\pm 20\%$ allerdings geringer, da in diesen Wert auch die Fehler der Absolut Eichung des Wirkungsquerschnittes sowie Fehler durch unterschiedliche Bestrahlungsdosis von Röntgen- und Widerstandsprobe eingehen.

Die Fehlergrenzen der aus der Huang/Gitterparametermessung erhaltenen Werte liegen in der gleichen Größenordnung. Eine Ausnahme macht nur die Fehlergrenze in der Anisotropie des Doppelkrafttensors. Diese konnte nach diesen Messungen innerhalb der Fehlergrenzen auch Null sein, was einer Hantel mit dem Hantelabstand $\ell = 0,5a$ bzw. einem Zwischengitteratom in Oktaeder- oder Tetraederlage entsprochen hätte.

Zusätzliche Fehler ergeben sich, wenn durch die Bestrahlung neben Einzeldefekten auch Leerstellen- und Zwischengitteratomagglomerate erzeugt werden.

Aus Messungen von Schädigungsraten in elektronenbestrahltem Aluminium wurde der Anteil von Zwischengitteratomen, die bei Bestrahlungen mit 3 MeV-Elektronen in Agglomeraten erzeugt werden, zu maximal **5%** bestimmt [29]. Die Vernachlässigung dieses kleinen Anteils, der überwiegend in Doppelzwischengitteratomen vor-

liegen müßte, verursacht zusätzliche Fehler, die wesentlich kleiner als die angegebenen Fehlergrenzen sind.

Größere Mengen von Doppelleerstellen können bei der verwendeten Bestrahlungsdosis nur durch geeignete Mehrfachverlagerungen erzeugt werden. Durch Mehrfachverlagerungen sind insgesamt etwa 30 % der Defekte erzeugt worden /29/. Nimmt man für eine Abschätzung möglicher Fehler den unrealistischen Fall an, daß alle Mehrfachverlagerungen zur Bildung von Doppelleerstellen führen, so ergibt sich aus den Messungen die Volumenrelaxation um die Einzelleerstelle zu etwa $\frac{\Delta V}{V} \approx -0,2$. Die Werte für das Zwischengitteratom und für die Defektkonzentration bleiben innerhalb der Fehlergrenzen unverändert.

5.3.2 Defektagglomerate

Ehrhard und Schilling /10/ konnten durch die Messung der diffusen Streuung im Huang-Gebiet nachweisen, daß sich die Zwischengitteratome bei ihrer freien Wanderung am Ende der Erholungsstufe I zu Agglomeraten zusammenlagern. Die anfängliche Größe wurde zu zwei Zwischengitteratomen pro Agglomerat bestimmt. Sie steigt bei weiterer Erholung bis auf eine Größe von 10 Zwischengitteratomen an.

Im folgenden wird versucht, genauere Kenntnisse über den atomaren Aufbau der sich im ersten Schritt bildenden Zweieragglomerate zu gewinnen, d.h. über die Struktur von Doppelzwischengitteratomen. Zu diesem Zweck werden die schon früher in Abb. 22 gezeigten Streuwirkungsquerschnitte qualitativ auf die Defektstruktur hin ausgewertet; denn sie wurden bei einem $\Delta\rho/\Delta\rho_0$ -Wert ($\Delta\rho/\Delta\rho_0 = 0,47$; $\Delta\rho_0 = 194 \text{ n}\Omega\text{cm}$) gemessen, bei dem von Ehrhard und Schilling die Clustergröße zu zwei Zwischengitteratomen pro Cluster bestimmt wurde. Der Anteil größerer Agglomerate wurde zu maximal 10 % abgeschätzt. Freie Einzel-Zwischengitteratome sind nicht mehr vorhanden. Der Anteil der eventuell von Fremdatomen eingefangenen Einzel-Zwischengitteratome ist wegen der geringen Fremdatomkonzentration (Reinheit der Probe 99,999) vernachlässigbar klein. Im folgenden kann daher davon ausgegangen werden, daß

diese Messungen das Streuverhalten der Doppelzwischengitteratome sehr gut beschreiben.

Johnson /28/ führte für Kupfer Modellrechnungen über die Stabilität verschieden aufgebauter Zwischengitteratomagglomerate durch. Unter Verwendung von Potentialen, die die 100-Hantellage als stabile Zwischengitteratomlage ergeben, erhält er eine aus zwei 100-Hanteln aufgebaute stabile Doppelzwischengitterkonfiguration, die sich bei thermischer Aktivierung in eine metastabile Konfiguration umorientieren und auf diese Weise thermisch aktiviert wandern kann. Diese beiden Konfigurationen sind in Abb. 29 gezeigt.

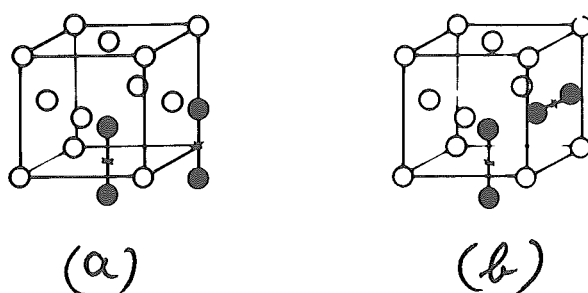
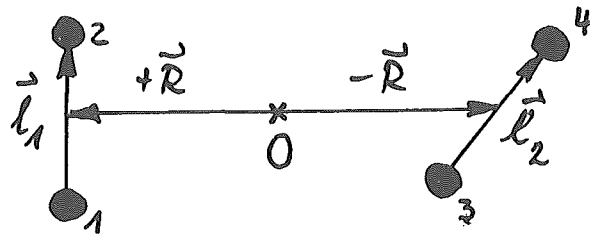


Abb. 29: Berechnete Konfigurationen eines Doppelzwischengitteratoms: a) stabile Konfiguration; b) metastabile Konfiguration.

Um nachzuprüfen, ob das Doppelzwischengitteratom tatsächlich in der als stabil berechneten Konfiguration a) vorliegt, wurde für diese Konfiguration der Streuwirkungsquerschnitt berechnet und im Zwischenreflexgebiet qualitativ mit den Meßwerten verglichen; denn in diesem Gebiet unterscheidet sich der Wirkungsquerschnitt für verschiedene Konfigurationen aufgrund der verschiedenen Laue- und Nahfeldstreuung sehr stark. Um dies zu zeigen, wird den Meßwerten später auch der für die metastabile Konfiguration berechnete Wirkungsquerschnitt gegenübergestellt.

Die Verschiebungsfeldberechnung wurde mit einem Zentralkraftmodell, wie unter 5.2. beschrieben, durchgeführt. In diesem üben die vier Hantelatome des Zweierclusters nur Kräfte auf die nächsten Nachbarn aus. In den Fällen, wo im Kraftmodell zwei Hantelatome auf den gleichen Nachbarn Kräfte ausüben, wurden diese beiden Kräfte addiert. Damit wurden Anharmonizitäten und mögliche zusätzliche Änderungen in den Kopplungskonstanten vernachlässigt. Für die Größe der Zentralkraft und des Hantelabstandes wurden die aus dem besten Fit für die Einzelhantel bestimmten Werte verwendet.

Als Koordinierungsursprung wurde die Mitte der Verbindungslinie zwischen den zwei Hanteln (Hantelabstände $\vec{l}_1$ und $\vec{l}_2$) gewählt:



Die Streuamplitude L der Lauestreuung ergibt sich dann wie folgt:

$$L = \sum_{i=1}^4 A_i^H - \sum_{i=1}^2 A_i^G \quad (70)$$

Die A_i^H sind hierbei die Streuamplituden der 4 Hantelatome, während die A_i^G die Streuamplituden der 2 Gitteratome sind, die durch die beiden Hanteln ersetzt worden sind.

$$A_1^H = f \cdot \exp[i\vec{x}(\vec{R} - \frac{\vec{l}_1}{2})] \quad (71)$$

$$A_2^H = f \cdot \exp[i\vec{x}(\vec{R} + \frac{\vec{l}_1}{2})] \quad (72)$$

$$A_3^H = f \cdot \exp[-i\vec{x}(\vec{R} + \frac{\vec{l}_2}{2})] \quad (73)$$

$$A_4^H = f \cdot \exp[-i\vec{x}(\vec{R} - \frac{\vec{l}_2}{2})] \quad (74)$$

$$A_1^G = f \cdot \exp[i\vec{x}\vec{R}] \quad (75)$$

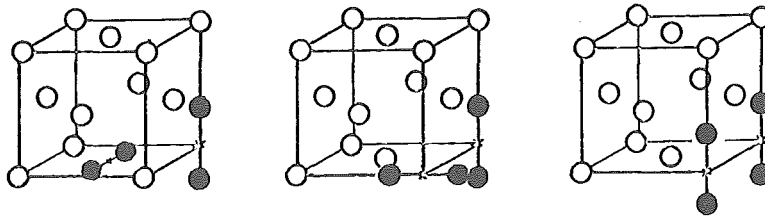
$$A_2^G = f \cdot \exp[-i\vec{x}\vec{R}] \quad (76)$$

Hiermit folgt dann aus Glg. (70):

$$L = 2f \cos\left(\frac{\vec{x} \cdot \vec{l}_1}{2}\right) \exp(i\vec{x} \cdot \vec{R}) + 2f \cos\left(\frac{\vec{x} \cdot \vec{l}_2}{2}\right) \exp(-i\vec{x} \cdot \vec{R}) - 2f \cos(\vec{x} \cdot \vec{R}) \quad (77)$$

Die sich nach Mittelung über alle äquivalenten Lagen ergebenden Wirkungsquerschnitte sind in Abb. 30 für beide Konfigurationen gezeigt. Sie wurden für das gleiche Gebiet des reziproken Gitters berechnet, in dem die im linken Teil der Abbildung gezeigten Meßergebnisse erhalten wurden. Diese wurden in der 110-Ebene des reziproken Gitters entlang den ebenfalls eingezeichneten Ewaldkreisen ① bis ④ gemessen.

Ins Auge fallend ist auch hier wieder das stark unterschiedliche Streuverhalten des Doppelzwischengitteratoms in verschiedenen Konfigurationen. Dies gilt auch für die hier nicht gezeigten Wirkungsquerschnitte für folgende, nach Johnson instabile, Lagen:



Aufgrund der großen Ähnlichkeit der für die Konfiguration a) berechneten Wirkungsquerschnitte mit den Meßwerten kann daher davon ausgegangen werden, daß diese Konfiguration auch in der Probe vorliegt. Das bedeutet, daß im Doppelzwischengitteratom zwei 100-Hanteln auf nächsten Nachbarplätzen sitzen. Ihre Hantelachsen sind parallel und stehen senkrecht auf der Verbindungslinie der beiden Hantelmittelpunkte. Dies ist die Konfiguration, die auch aus Atompotentialen als stabiles Zweier-Agglomerat berechnet wurde.

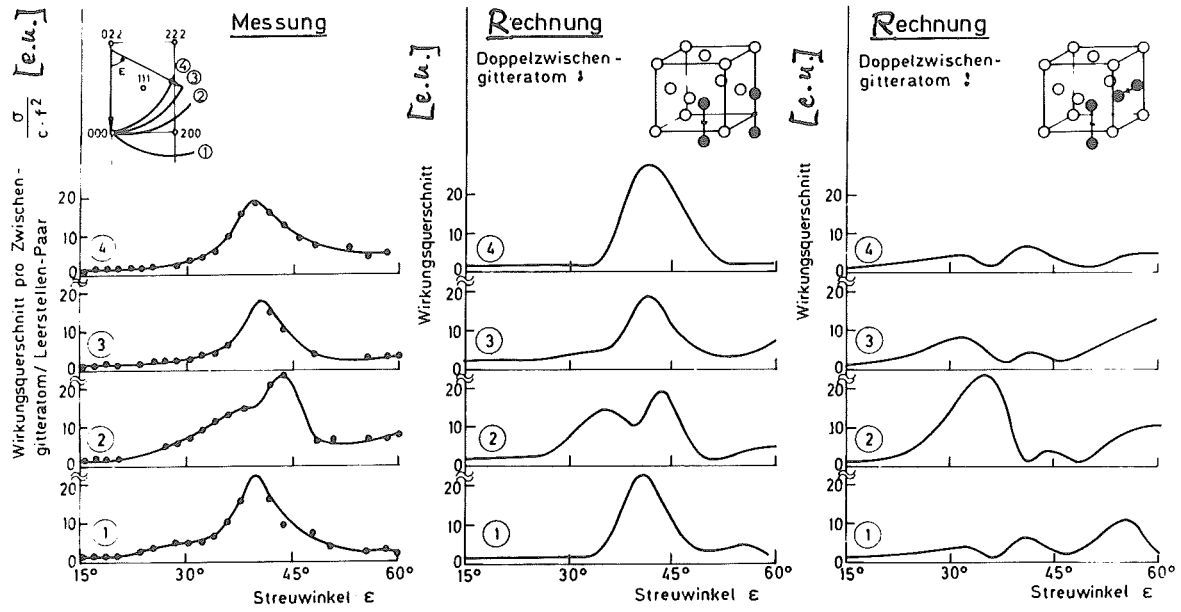


Abb. 30: Gemessene und berechnete Wirkungsquerschnitte für Doppelzwischengitteratome.

6. Zusammenfassung

Es wurde eine Meßanordnung gebaut, an der - verglichen mit konventionellen Anlagen- Messungen im Zwischenreflexgebiet in einer um den Faktor 10^4 kürzeren Meßzeit durchgeführt werden können. Dieser Faktor ergibt sich erstens durch den Einsatz einer 100 KW-Hochleistungsrontgenröhre mit Drehanode an Stelle einer üblichen 1 KW-Röhre und zweitens durch die Messung mit einem Vielfachzählersystem aus 100 Detektoren.

Mit dieser Anlage wurde die Zwischenreflexstreuung von Aluminium-Einkristallen ausgemessen, die zuvor bei 4,5 K mit 3 MeV Elektronen bis zu Defektkonzentrationen von $5 \cdot 10^{-4}$ bestrahlt worden waren. Anschließend an die Bestrahlung wurden die Streuwirkungsquerschnitte von Einzelzwischengitteratomen und nach einer Temperung auch die von Doppelzwischengitteratomen gemessen.

Zur Auswertung der Daten wurden Rechnerprogramme erstellt. Unter Verwendung vorgegebener Kraftmodelle aus Kanzakikräften können hiermit Gitterverschiebungen in der Umgebung eines Defektes ausgerechnet und daher Streuwirkungsquerschnitte von Defekten auch im Zwischenreflexgebiet berechnet werden.

Die für die verschiedenen möglichen Zwischengitteratomlagen berechneten Streuwirkungsquerschnitte unterscheiden sich sehr stark. Daher konnten schon durch qualitative Vergleiche von berechneten und gemessenen Wirkungsquerschnitten eindeutige Lageentscheidungen getroffen werden:

In Aluminium liegt das Einzelzwischengitteratom als 100-Hantel vor. Das Doppelzwischengitteratom ist aus zwei 100-Hanteln aufgebaut, die auf nächsten Nachbarplätzen sitzen. Die beiden Hantelachsen sind parallel und stehen senkrecht auf der Verbindungslinie der zwei Hantelmittelpunkte.

Für das Einzelzwischengitteratom liefert schon ein Kraftmodell, in dem das Zwischengitteratom Zentralkräfte nur auf seine nächsten Nachbarn ausübt, eine auch quantitative sehr gute Überein-

stimmung mit den Meßwerten, wenn die Größe dieser Kraft, der Hantelabstand, die Defektkonzentration und die Volumenrelaxation um eine Leerstelle als anpaßbare Parameter benützt werden.

Aus diesem Fit konnte der Hantelabstand zu $0,6 \pm 0,05$ Gitterkonstanten, die Volumenrelaxation um das Zwischengitteratom zu $1,9 \pm 0,2$ Atomvolumen, die um die Leerstelle zu $-0,05 \pm 0,05$ Atomvolumen und der Beitrag der Frenkeldefekte zum elektrischen Restwiderstand zu $4,2 \mu\Omega\text{cm}/\text{At.}\%$ bestimmt werden.

Einige dieser Größen konnten auch durch Messungen der diffusen Streuung im Huang-Gebiet gemessen werden. Die sehr gute Übereinstimmung der mit zwei völlig unabhängigen Methoden ermittelten Werte ist ein Zeichen für die große Zuverlässigkeit, mit der aus diffuser Streuung die Struktur von Punktdefekten bestimmt werden kann.

7. Literaturverzeichnis

- /1/ P.H. Dederichs, J. Phys. F, Metal Phys. 3, 471 (1973)
- /2/ E. Eisenriegler, Cryst. Lattice Defects 2, 181 (1971)
- /3/ H. Trinkaus, Phys. stat. sol. (b) 51, 307 (1972)
- /4/ I.D. Eshelby, Solid State Phys. 3, 79 (1956)
- /5/ C.B. Walker, Phys. Rev. 103, 547, 558 (1956)
- /6/ L.S. Birks, R.E. Seebold, B.K. Grant, J.S. Grosso,
J. Appl. Phys. 36, 699 (1965)
- /7/ H.-G. Haubold, GSI-Bericht 73-7 der Gesellschaft für
Schwerionenforschung, Darmstadt, 20 (1973)
- /8/ P. Wombacher, J. Phys. E 5, 243 (1972)
- /9/ H.-G. Haubold, E. Küssel, P. Wombacher, wird veröffentlicht
- /10/ P. Ehrhard, W. Schilling, Phys. Rev. B8, 2604 (1973)
- /11/ A. Seeger, E. Mann, R. von Jan, J. Phys. Chem. Solids 23,
639 (1962)
- /12/ J. Hemmerich, Berichte der Kernforschungsanlage Jülich,
JÜL-579-FN (1969)
- /13/ C.J. Sparks, B. Borie, Local Atomic Arrangements Studied
by X-Ray Diffraction, Metallurgy Society Conference No. 36
(Gordon and Breach, New York) (1966)
- /14/ P.M. Raccah, V.E. Heinrich, Phys. Rev. 184, 604 (1968)
- /15/ H. Kanzaki, J. Phys. Chem. Solids 2, 107 (1957)
- /16/ H.M. Simpson, R.L. Chaplin, Phys. Rev. 178, 1166 (1969)
- /17/ G. Gilat, R.M. Nicklow, Phys. Rev. 143, 487 (1966)
- /18/ R. Stedman, G. Nilsson, Phys. Rev. 145, 492 (1966)
- /19/ R. Stedman, L. Almquist, G. Nilsson, Phys. Rev. 162, 549
(1967)
- /20/ A. Zentek (private Mitteilung)
- /21/ L. Pauling, J. Sherman, Z. Krist. 81, 1 (1932)
- /22/ R.M.J. Cotterill, M. Doyama, Lattice Defects and Their
Interactions, ed. by R.R. Hasiguti (Gordon and Breach,
New York) (1967)
- /23/ H. Maier-Leibnitz, T. Springer, Annu. Rev. Nucl. Sci. 16,
207 (1966)
- /24/ R. Hanada, C.L. Snead, J.W. Kaufmann, J. Appl. Phys. 40,
3694 (1969)
- /25/ H. Wagner, Berichte der Kernforschungsanlage Jülich,
JÜL-664-FN (1970)

- /26/ W. Schilling, G. Burger, K. Isebeck, H. Wenzl, Vacancies and Interstitials in Metals (North Holland), 255 (1969)
- /27/ W. Schilling, K. Sonnenberg, J. Phys. F, Met. Phys. 3, 322 (1973)
- /28/ R.A. Johnson, Phys. Rev. 152, 629 (1966)
- /29/ F. Dworschak, private Mitteilung
- /30/ P. Ehrhard, U. Schlagheck, wird veröffentlicht in J.Phys.F.
- /31/ B. v.Guerard, H. Peisl, Verhandl. DPG (VI) 9, 764 (1974)

Die vorliegende Arbeit wurde im Institut IX (Gitterfehlordnung) des Instituts für Festkörperforschung der Kernforschungsanlage Jülich GmbH durchgeführt.

Herrn Prof. Dr. W. Schilling möchte ich besonders danken für die Anregung zu dieser Arbeit, für sein förderndes Interesse und für viele klärende Gespräche.

Weiterhin gilt mein besonderer Dank Herrn Ing. E. Küssel, der wichtige Teile der Meßanlage entworfen und mir bei der Durchführung der Messungen tatkräftig geholfen hat.

Ebenfalls besonders danken möchte ich an dieser Stelle Herrn Dr. P. Wombacher für seine Hilfe, insbesondere bei der sehr schwierigen Probenpräparation.

Den Herren Dipl.-Ing. R. Meißner und F. Löser danke ich für ihre tatkräftige Hilfe beim Bau der elektronischen Ausrüstung.

Frau L. Schätzler und Herrn H. Jungbluth haben mir mit großer Sachkenntnis und viel Geschick bei der Erstellung der Rechnerprogramme geholfen. Hierfür danke ich ihnen ganz besonders.

Den Herren der Beschleunigergruppe danke ich für die Unterstützung bei der Durchführung der Bestrahlungen. Für seine Hilfe bei der quantitativen Auswertung der Messungen danke ich Herrn Dipl.-Phys. D. Martinsen.

Den Herren Dr. E. Eisenriegler, Dr. H. Schober, Prof. Dr. W. Schmatz und Dr. P.-H. Dederichs danke ich für sehr hilfreiche Diskussionen.

Frau M.L. Klein danke ich für das Schreiben des Manuskriptes.

