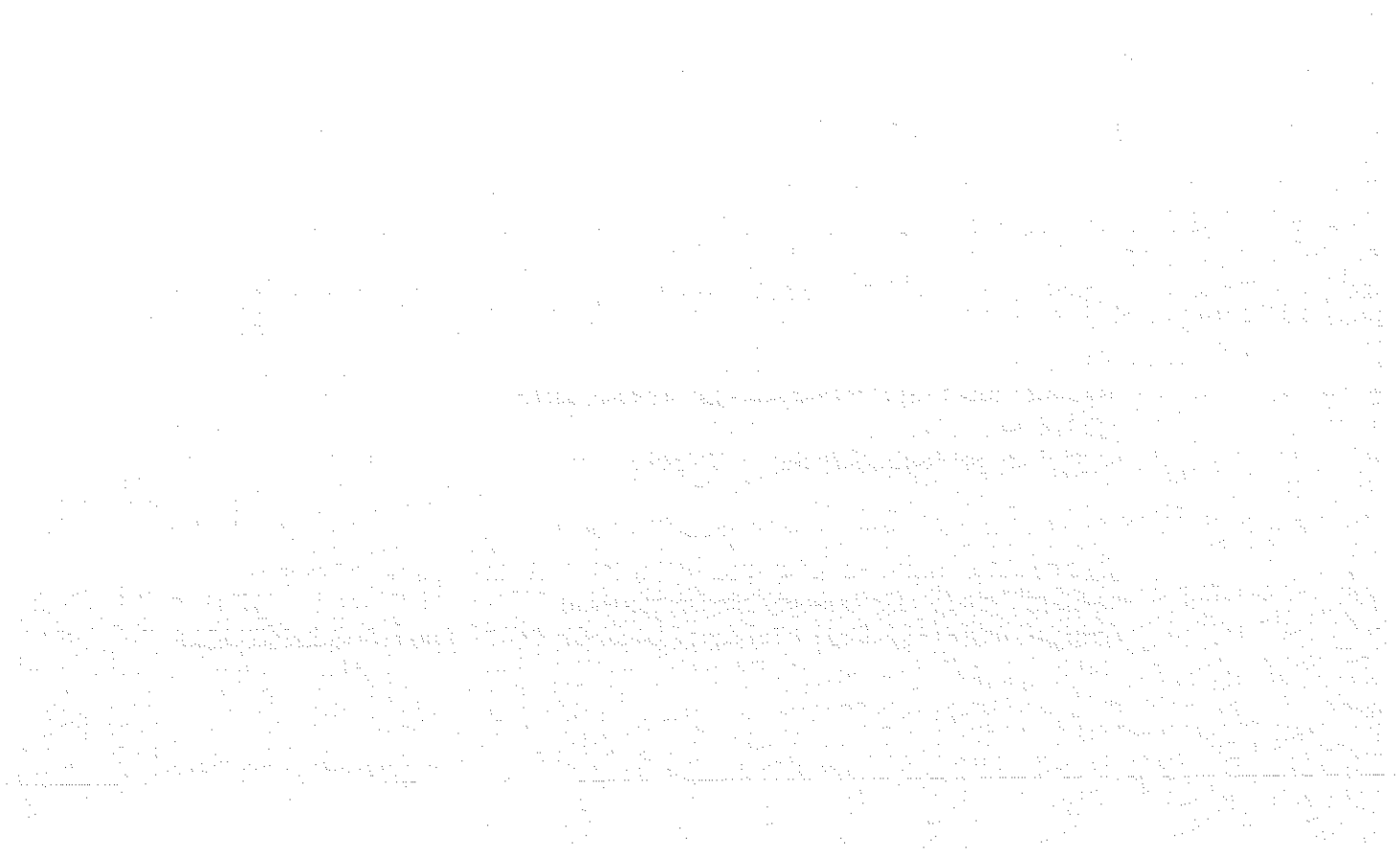
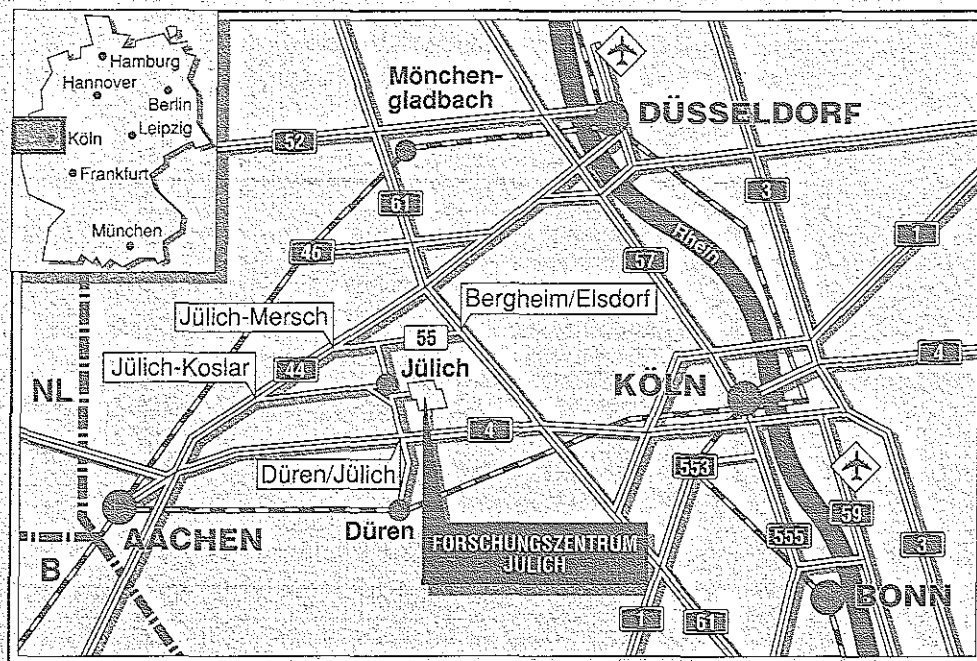


Institut für Festkörperforschung

**Computersimulationen und Experimente
zur Entwicklung von Heliumblasen
in Metallen**

Volker Zell





Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 2873

ISSN 0944-2952

Institut für Festkörperforschung Jüli-2873

Zu beziehen durch : Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek

D-52425 Jülich · Bundesrepublik Deutschland

Telefon : 024 61 / 61 - 61 02 · Telefax : 024 61 / 61 - 61 03 · Telex : 833 556-70 kfa d

Computersimulationen und Experimente zur Entwicklung von Heliumblasen in Metallen

Volker Zell

1. The first part of the paper discusses the importance of the study of the history of the world, and the second part discusses the importance of the study of the history of the world.

2. The first part of the paper discusses the importance of the study of the history of the world, and the second part discusses the importance of the study of the history of the world.

3. The first part of the paper discusses the importance of the study of the history of the world, and the second part discusses the importance of the study of the history of the world.

Abstract

In this work, the evolution of inert gas bubble microstructures in metals by migration and coalescence has been studied by a simulation approach for two typical experimental conditions: (A) Coarsening at constant gas content during annealing after low temperature implantation and (B) bubble evolution under continuous gas production at elevated temperatures. For the latter case also experiments in which Helium was implanted into Nickel were performed with particular emphasis on the temperature and production rate dependence of bubble size and density.

The simulation shows that the bubble size distributions in case (A) become asymptotically selfsimilar, whereas under (B) there is no simple scaling behaviour. The time dependence of the mean bubble radius and the bubble density in case (A) follow simple power laws. While the bubble densities in (A) are always decreasing with increasing time, in case (B) the bubble density generally saturates or even increases, depending on the gas state in the bubbles and the assumption about the migration mechanism.

The measured bubble densities and mean radii in the experiment show Arrhenius behaviour in a low temperature regime with a low apparent activation energy and in a high temperature regime with a high apparent activation energy. The data indicate that the low temperature regime is controlled by He diffusion via the self-interstitial/He replacement mechanism and the high temperature regime is He dissociation controlled according to standard nucleation models. Also the rate dependence confirm these findings. Effects of bubble migration and coalescence could not be identified. The bubbles are considered to be in an overpressurized state. The results are compared with data obtained from Nickel in the case of an experiment of type (A) and with data from stainless steel.

1. Introduction

The first part of the paper discusses the importance of understanding the underlying mechanisms of the system. It is essential to identify the key components and their interactions. This section also covers the methodology used for data collection and analysis. The results of the study are presented in the following section, showing a clear trend in the data. The conclusion of the study is that the system behaves as expected under the given conditions. Further research is needed to explore the system's behavior under different parameters. The authors thank the reviewers for their constructive comments and suggestions. The paper is organized as follows: Section 1 introduces the topic, Section 2 describes the methodology, Section 3 presents the results, and Section 4 concludes the study.

The second part of the paper discusses the implications of the findings. It is important to consider the practical applications of the results. The study shows that the system is robust to certain changes but sensitive to others. This information is valuable for designing and controlling the system. The authors also discuss the limitations of the study and the need for future work. The paper is organized as follows: Section 1 introduces the topic, Section 2 describes the methodology, Section 3 presents the results, and Section 4 concludes the study.

The third part of the paper discusses the future work. It is important to consider the practical applications of the results. The study shows that the system is robust to certain changes but sensitive to others. This information is valuable for designing and controlling the system. The authors also discuss the limitations of the study and the need for future work. The paper is organized as follows: Section 1 introduces the topic, Section 2 describes the methodology, Section 3 presents the results, and Section 4 concludes the study.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Helium in Metallen	5
2.1	Löslichkeit	6
2.2	Zustandsgleichung	7
2.3	Energien	9
2.4	Diffusion	10
2.4.1	Leerstellenmechanismus	12
2.4.2	Dissoziativer Mechanismus	13
2.5	Keimbildung und Wachstum von Blasen	13
2.5.1	Kalt-Implantation und Glühen	14
2.5.1.1	Wanderung und Koaleszenz	16
2.5.1.2	Ostwald-Reifung	16
2.5.2	Heiß-Implantation	18
2.5.2.1	Di-atomare Keimbildung	19
2.5.2.2	Multi-atomare Keimbildung	20
3	Simulationen	22
3.1	Grundlegende Annahmen und Gleichungen	22
3.2	Normierung	24
3.3	Numerische Techniken	26
3.4	Ergebnisse	30
3.4.1	Konstanter Gasgehalt	30
3.4.2	Konstante Gasproduktion	34

4 Experimente	41
4.1 Probenbehandlung	41
4.2 Heliumimplantation	42
4.3 Temperaturregelung	43
4.4 Transmissionselektronenmikroskopie	45
4.4.1 Probenpräparation	45
4.4.2 Eichungen	46
4.4.3 Blasenauswertung	48
4.5 Ergebnisse	49
4.6 Diskussion	56
4.6.1 Hochtemperaturbereich	57
4.6.2 Tieftemperaturbereich	61
5 Zusammenfassung	67
Anhang	72
A Differentialgleichungen bei Repopulation	72
A.1 Konstanter Gasgehalt	72
A.2 Konstante Gasproduktion	73
B Tabelle der Meßergebnisse	76
C Asymptotische Lösungen für C_B und $\bar{r}_B$ bei di-atomarer und multi-atomarer Keimbildung in Extremfällen	80
C.1 Di-atomare Keimbildung	81
C.2 Multi-atomare Keimbildung	83
Literaturverzeichnis	84
Abbildungsverzeichnis	88
Tabellenverzeichnis	91

Kapitel 1

Einleitung

Das Einbringen des Edelgases Helium in Metalle, entweder durch direkte Implantation von α -Teilchen oder aber durch Kernreaktionen vom Typ (n,α) , kann zu meist unerwünschten Veränderungen in den mechanischen Eigenschaften führen. Effekte, wie erhöhtes Schwellen [1] oder Hochtemperaturversprödung [2], die durch die Bildung von Heliumblasen zustande kommen, sind gerade im Hinblick auf die Entwicklung von Materialien für die erste Wand von zukünftigen Fusionsreaktoren interessant. Bei diesem Typ von Reaktor erwartet man eine nicht unerhebliche Belastung durch 14 MeV Neutronen aus der Deuterium-Tritium Fusionsreaktion. Die Bildung von Heliumblasen und deren, bei hohen Temperaturen erfolgreiches, Wachstum bis hin zu makroskopischen Hohlräumen ist auf die außerordentlich geringe Löslichkeit des Edelgases Helium in Metallen zurückzuführen. Um Einfluß auf die schädigenden Eigenschaften von Helium nehmen zu können, ist es daher besonders wichtig, die der Keimbildung und dem Wachstum von Blasen zugrundeliegenden Mechanismen zu verstehen. Zur Untersuchung des Diffusionsverhalten von Helium in Metallen sind besonders hochreine Metalle geeignet, damit die störenden Einflüsse durch andere Defekte möglichst ausgeschlossen werden können.

Es existieren hauptsächlich zwei Mechanismen, die die Blasendichte während des Ausscheidungsprozesses limitieren: (1.) die thermisch aktivierte Umlösung von Heliumgas und (2.) die Wanderung und Koagulation (WK) von Gasblasen. Bei gegebener Heliumkonzentration im Metall nennt man den ersten Mechanismus Ostwald-Reifung. Er kann durch Modifikationen der Lifshitz-Slyozov-Wagner

(LSW) Theorie [3, 4] beschrieben werden, während man den zweiten Mechanismus im Rahmen von Smoluchowskis Koagulationsgleichungen (SKG) [5] behandeln kann. Sowohl die LSW-Theorie [6, 7] als auch das SKG-Schema [8, 9] sind schon früher auf die Vergrößerung von Gasblasen in Metallen angewandt worden. Dabei ist es unter experimentellen Gesichtspunkten günstig, zwischen folgenden zwei Situationen zu unterscheiden: (A) Helium wird bei Raumtemperatur („Kalt-Implantation“, I_c) in das Metall implantiert und anschließend erfolgt die Temperung bei erhöhten Temperaturen, und (B) die Heliumimplantation erfolgt direkt bei erhöhten Temperaturen („Heiß-Implantation“, I_h). Das Einbringen von Helium ins Metall kann natürlich ebenso gut durch die oben erwähnten (n, α) -Reaktionen erfolgen. Für den Fall (A) und im Rahmen des SKG-Schemas hat Gruber [8] unter der Annahme, daß die Blasen ideales Gas enthalten, im thermischen Gleichgewicht sind sowie durch Oberflächendiffusion wandern, Rechnungen durchgeführt. Goodhew und Tylor [9] benutzten einfache Approximationen um die Blasenvergrößerung unter verschiedenen Annahmen über den Gaszustand in den Blasen und die Wanderungsmechanismen zu studieren.

Die Blasenentwicklung unter konstanter Gasproduktionsrate bei erhöhten Temperaturen (B) ist komplizierter in der Behandlung und auch noch nicht so gut untersucht, obwohl unter Fusionsreaktorbedingungen dieser Fall relevanter ist als Blasenvergrößerung während Temperung nach Kalt-Implantation. Unter konstanter Gasproduktionsrate ist generell eine Tendenz zur Sättigung der Blasendichte zu beobachten. Der umlösungskontrollierte Fall, die Ostwald-Reifung (1.), ist von Trinkaus [10, 11] im Rahmen von „dissoziationskontrollierter“ oder auch „multiatomarer“ Keimbildung diskutiert worden. Blasenwanderung und Koagulation in diesem Fall wurden von Preininger und Kaletta [12, 13] behandelt, die jedoch die etwas willkürliche Annahme machten, daß alles neu produzierte Gas sich in kleinen Blasen von endlicher Größe ausscheidet. Spezielle Annahmen in Bezug auf die Wanderung der Blasen wurden in Studien von Foreman und Singh [14] und Fell und Murphy [15] gemacht. In diesen Studien wurde die Vermutung geäußert, daß WK die Blasendichte auch unter Gasproduktion entscheidend beeinflussen könnte.

In der vorliegenden Arbeit wird eine umfassende und systematische numerische Studie über die Wanderung und Koagulation von Gasblasen, im Rahmen des SKG-

Schemas, sowohl für konstanten Gasgehalt im Metall als auch unter konstanter Gasproduktion durchgeführt. Dabei wird der Gaszustand durch die zwei Grenzfälle von idealem Gas in Gleichgewichtsblasen sowie Gas unter konstanter Dichte angenähert. Zusätzlich werden zwei Extremfälle der Wanderung diskutiert; einmal der „di-atomare“ Keimbildungsmechanismus [10, 11] und zum anderen der Fall, daß der Prozeß durch die Diffusion kleiner Gascluster und nicht einzelner Gasatome bestimmt wird. Die erhaltenen Ergebnisse werden mit kürzlich gewonnenen asymptotischen Lösungen verglichen [10, 11, 16], wobei besonderes Augenmerk auf die zeitliche Entwicklung der Blasendichte gelegt wird. Dieser Teil der Arbeit wird in Kapitel 3 beschrieben, nach einer Besprechung der grundlegenden Eigenschaften von Helium in Metallen in Kapitel 2.

Im technologisch wichtigen Temperaturbereich zwischen $0.3T_m$ und $0.5T_m$ der Schmelztemperatur T_m eines Metalls, sind speziell unter Bestrahlungsbedingungen bei erhöhten Temperaturen, bis heute leider nur sehr wenige systematische Daten zur Blasenbildung vorhanden. Edelstahl (SS) ist das einzige Metall, in dem die Blasenentstehung für beide oben genannten experimentellen Situationen detailliert studiert worden ist. Eine Sammlung von Daten findet sich in [17]. Diese Daten [17] weisen auf ein Verhalten hin, das, wie es scheint, auch durch die Daten für Kupfer, I_h -Experiment [18], sowie in Nickel, I_c -Experimente [19, 20], bestätigt wird: In beiden Arten von Experimenten (A,B) kann man zwei typische Temperaturbereiche unterscheiden, einen Hochtemperaturbereich mit hohen Aktivierungsenergien und einen Tieftemperaturbereich mit kleinen Aktivierungsenergien, sowohl für die gemessenen Blasendichten als auch die mittleren Blasenradien. Die Hochtemperaturdaten für Edelstahl [17] lassen den Schluß zu, daß der Blasenentwicklungsprozeß durch thermische Dissoziation von Gasatomen aus den Blasen bestimmt wird. Dies folgt aus beiden Arten von Experimenten. Aus der Temperaturabhängigkeit im Tieftemperaturbereich kann man folgern, daß die Diffusion von einzelnen Gasatomen oder kleinen Gasclustern die Blasenentwicklung bestimmt. Die relativ wenigen Daten in diesem Temperaturbereich lassen aber, außer in dem Fall für Aluminium, I_h -Experiment [21], keine definitiven Rückschlüsse auf die Blasenkinetik zu.

Kapitel 4 behandelt den experimentellen Teil der Arbeit. In hochreinem Nickel wurde nach Implantation von Helium bei erhöhten Temperaturen die entstehende

Blasenstruktur mit Hilfe der Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) systematisch untersucht. Von besonderem Interesse war dabei die Temperatur- sowie die Heliumproduktionsratenabhängigkeit. Der abgesteckte Parameterbereich umfaßte beide oben erwähnten Temperaturbereiche. Die erzielten Ergebnisse werden sowohl mit den in Kapitel 2 vorgestellten theoretischen Modellen als auch mit der Simulation verglichen. Zusätzlich erfolgt eine Gegenüberstellung mit den Daten für Edelstahl.

Kapitel 2

Helium in Metallen

Helium kann auf unterschiedliche Weise in ein Metall inkorporiert werden. Durch neutroneninduzierte Kernumwandlungen vom Typ (n, α) oder aber durch Tritiumzerfall in Metallen, in denen Tritium gelöst ist, wird Helium direkt im Inneren des Metalls erzeugt. Ein wesentlicher Unterschied zwischen diesen beiden Mechanismen ist, daß beim letzteren die Heliumerzeugung im Metall ohne Verlagerungsdefekte erfolgt, während (n, α) -Reaktionen mit hochenergetischen Neutronen immer auch mit der Produktion von Leerstellen (V) und Zwischengitteratomen (I) gekoppelt sind. Diese sogenannten Frenkelpaare werden immer dann erzeugt, wenn die Rück-

Tabelle 2.1: Typische Heliumproduktionsraten P_{He} in verschiedenen Prozessen.

Prozeß	Umgebung	P_{He}
(n, α)	Schneller Brüter	5 - 15 appm ¹ /a
	Fusionsreaktor	50 - 300 appm/a
$(T, {}^3He)$	Tritium Zerfall	bis zu 100 appm/d
(p, α)	Spallationsquellen	bis zu 100 appm/d
α	Implantation	bis zu einigen %/h

stoßenergie eines gestoßenen Teilchens die Schwellenenergie E_d für Produktion von

¹(atomic parts per million)

Frenkelpaaren übersteigt. Für Metalle beträgt E_d einige 10 eV.

Zum Studium der Eigenschaften von Helium in Metallen ist die direkte Implantation von α -Teilchen die effizienteste Methode, um in kurzer Zeit eine hohe Konzentration von Helium zu erzeugen. Durch Variation der Energie der α -Teilchen kann man sowohl mit als auch ohne gleichzeitige Produktion von Frenkeldefekten implantieren. Unter Hochenergieimplantation gilt für den Zusammenhang zwischen der Heliumproduktionsrate P_{He} und der Produktionsrate der Frenkelpaare P_F

$$P_F = \kappa P_{He} \quad (2.1)$$

mit κ als dem sogenannten "He/dpa"-Verhältnis (dpa = displacement per atom). In Tab. 2.1 sind typische Heliumproduktionsraten für die wichtigsten Prozesse zusammengefaßt.

2.1 Löslichkeit

Die thermodynamische Bedingung für das Gleichgewicht zwischen Helium in der Gasphase (g) und in Lösung im Metall (m) bei fester Temperatur T und konstantem Druck p_{He} ist die Gleichheit der chemischen Potentiale in den beiden Phasen

$$\mu_{He}^g = \mu_{He}^m. \quad (2.2)$$

Für ideales Gasverhalten bei nicht entartetem Grundzustand gilt [22]

$$\mu_{He}^{id} = kT \ln \left(\frac{p_{He}}{p_0} \right) \quad \text{mit} \quad p_0 = \frac{(2\pi m_{He})^{3/2} (kT)^{5/2}}{h^3}. \quad (2.3)$$

m_{He} ist die Masse eines Heliumatoms, k und h sind die Boltzmann-Konstante sowie das Planksche Wirkungsquantum. Das chemische Potential von Helium in der Metallphase hängt von den zur Verfügung stehenden Lösungsplätzen im Gitter ab. Für substitutionelles Helium und Helium auf Zwischengitterplätzen mit der vollen Punktsymmetrie des Gitters folgt mit G_{He}^F als der freien Lösungsenthalpie und $\hat{c}_{He}$ als Heliumkonzentration pro Metallatom

$$\mu_{He}^m = kT \ln \hat{c}_{He} + G_{He}^F. \quad (2.4)$$

Kombination von Gl. (2.2) und (2.4) liefert für $\hat{c}_{He}$ im thermischen Gleichgewicht mit $\mu_{He} \equiv \mu_{He}^g$ allgemein

$$\hat{c}_{He} = \exp[(\mu_{He} - G_{He}^F)/kT] \quad (2.5)$$

und bei idealem Gasverhalten

$$\hat{c}_{He}^{id} = \frac{p_{He}}{p_0} \exp(-G_{He}^F/kT). \quad (2.6)$$

Setzt man z.B. für Nickel einen Wert von 3.0 eV für G_{He}^F an, so erhält man bei einem Druck von 10 GPa und einer Temperatur von 1500 K einen Wert von nur 10^{-10} bzw. 10^{-4} appm für $\hat{c}_{He}^{id}$, also eine äußerst geringe atomare Löslichkeit.

2.2 Zustandsgleichung

Die Gleichgewichtsbedingung für eine Gasblase mit Radius r_B liefert für den Druck $\hat{p}_g$ in der Blase den Ausdruck

$$\hat{p}_g = 2\gamma/r_B \quad (2.7)$$

mit γ als der spezifischen Oberflächenenergie des Metalls. Gl. (2.7) zeigt, daß in sehr kleinen Blasen hohe Drücke herrschen müssen. Dabei ist zu beachten, daß für die hier betrachteten Bedingungen der Druck gemäß Gl. (2.7) nur eine untere Grenze darstellt (siehe später). Die Zustandsgleichung eines Gases der Teilchendichte ρ_g kann man mit Hilfe des Kompressibilitätsfaktors z schreiben als

$$z = \frac{\hat{p}_g}{\rho_g kT}. \quad (2.8)$$

Für ideales Gas ist $z = 1$; in Fällen, in denen die atomare Abstoßung überwiegt, ist $z > 1$ und hängt von der Dichte ab. Für die Dichte eines idealen Gases folgt aus Gl. (2.7) und (2.8)

$$\rho_g^{id} = 2\gamma/kTr_B. \quad (2.9)$$

Bei Drücken von einigen GPa in sehr kleinen Heliumblasen sind die ideale Gasgleichung und selbst die Van-der-Waals Gleichung für Helium schlechte Näherungen. Wir benötigen deshalb genauere Zustandsgleichungen. Die semi-empirische Zustandsgleichung von Trinkaus [23] erfüllt diesen Zweck. Für z gilt in dieser Nähe-

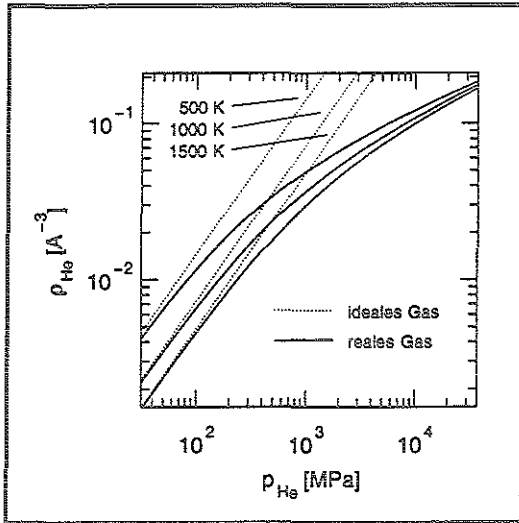


Abbildung 2.1: Druckabhängigkeit der Heliumdichte ρ_{He} bei idealem (gerade Linien) und realem Gasverhalten für drei Temperaturen.

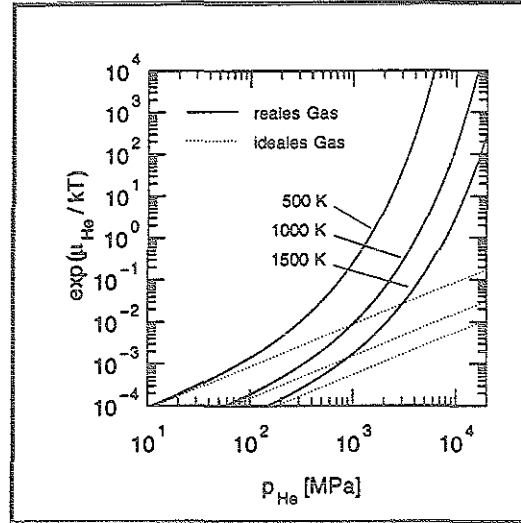


Abbildung 2.2: Druckabhängigkeit des chemischen Potentials von Helium bei idealem (gerade Linien) und realem Gasverhalten für drei Temperaturen.

rung

$$z = (1 - \rho)(1 + \rho - 2\rho^2) + (1 - \rho)^2 \rho B / v_l + (3 - 2\rho) \rho^2 z_l + (1 - \rho) \rho^2 z'_l v_l \quad (2.10)$$

mit

$$\begin{aligned} \rho &= v_l \rho_{He} \quad \text{reduzierte Heliumdichte} \\ v_l &= 56 T^{-1/4} \exp(-0.145 T^{1/4}) \quad \text{in } \text{\AA}^3 \\ z_l &= 0.1225 v_l T^{0.555} \\ B &= 170 T^{-1/3} - 1750 / T \quad \text{in } \text{\AA}^3 \\ z'_l v_l &\approx -50. \end{aligned}$$

Das chemische Potential ergibt sich daraus zu [7]

$$\begin{aligned} \mu_{He} / kT &= \mu_{He}^{id} / kT - (27 - 16\rho) \rho^2 / 6 + (6 - 9\rho + 4\rho^2) B / 3 \rho v_l \\ &\quad + (27 - 16\rho) \rho^2 z_l / 6 + (9 - 8\rho) \rho^2 z'_l v_l / 6. \end{aligned} \quad (2.11)$$

Abb. 2.1 zeigt als eine Anwendung der Zustandsgleichung, die Druckabhängigkeit der Heliumdichte ρ_{He} bei drei Temperaturen. Zum Vergleich sind auch die Kurven

eingetragen, die sich für ideales Gas ergeben würden. In Abb. 2.2 sind die Isothermen von $\exp(\mu_{He}/kT)$ dargestellt, die bei gegebener freien Lösungsenthalpie G_{He}^F nach Gl. (2.5) die Gleichgewichtskonzentration $\hat{c}_{He}$ des gelösten Heliums in der Matrix bestimmen. Man erkennt, daß ideales Gasverhalten nur bei Drücken unterhalb 100 MPa vorliegt. Dies entspricht Blasenradien von über 100 nm, wenn man für γ einen Wert von 2.0 N/m annimmt.

2.3 Energien

Daß Helium in der Matrix hauptsächlich substitutionell, also in Leerstellen gelöst ist, ergibt sich aus den in Abb. 2.3 dargestellten Energieverhältnissen. Wegen $\hat{c}_{HeI} =$

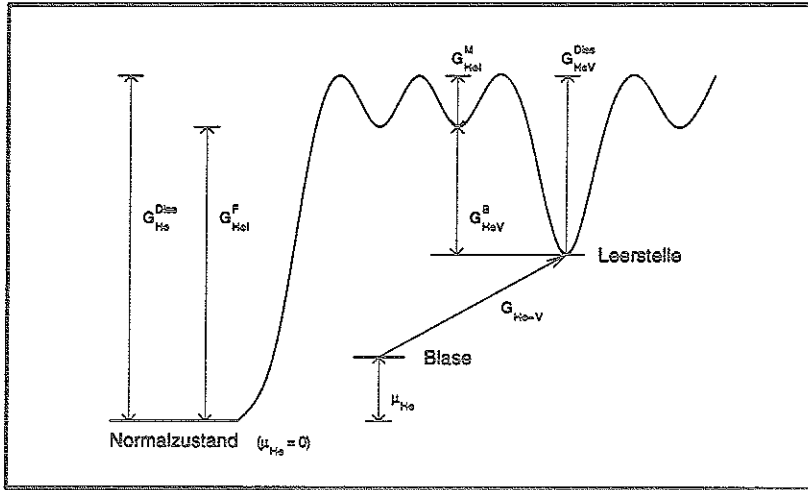


Abbildung 2.3: Energiezustände von Helium im Metall. Der Referenzzustand ist durch $\mu_{He} = 0$ eV definiert.

$\exp[(\mu_{He} - G_{HeI}^F)/kT]$ und $\hat{c}_{HeV} = \exp[(\mu_{He} - G_{HeV}^F)/kT]$ nach Gl. (2.5) folgt mit

$$G_{HeV}^F = G_{HeI}^F - G_{HeV}^B + G_V^F \quad (2.12)$$

für das Verhältnis der auf Zwischengitterplätzen (I) zu den in Leerstellen (V) gelösten atomaren Heliumkonzentration im thermischen Gleichgewicht

$$\frac{\hat{c}_{HeI}}{\hat{c}_{HeV}} = \exp(G_V^F - G_{HeV}^B) < 1. \quad (2.13)$$

Tabelle 2.2: Typische Energien eines Heliumatoms in Nickel. Werte mit * sind experimentell ermittelt, alle anderen stammen aus Computersimulationen [24].

Art der Energie	Symbol	Größe in eV
Interstitielle Lösungsenergie	E_{HeI}^F	3.8
Substitutionelle Lösungsenergie	E_{HeV}^F	2.7
Bindungsenergie an Leerstelle	E_{HeV}^B	2.8
Dissoziationsenergie von Leerstelle	E_{HeV}^{Dis}	2.3*, 3.0
Interstitielle Wanderungsenergie	E_{HeI}^M	0.25*, 0.45
effektive Wanderungsenergie	E_{eff}^M	0.81*
Bildungsenergie einer Leerstelle	E_V^F	1.84*
Wanderungsenergie einer Leerstelle	E_V^M	1.04*
Wanderungsenergie eines Zwischengitteratoms	E_I^M	0.15*

Das Verhältnis ist kleiner als 1, weil die Bindungsenergie E_{HeV}^B an eine Leerstelle größer als die Bildungsenergie E_V^F einer Leerstelle ist (siehe Tabelle 2.2). Für die freie Enthalpie G gilt dabei $G = H - TS \cong E - TS$ mit H als Enthalpie und S als Entropie des jeweiligen Prozesses. Der Druck innerhalb eines Metallgitters kann im allgemeinen vernachlässigt werden.

2.4 Diffusion

Allgemein wird die Diffusion in Festkörpern durch einen Diffusionskoeffizienten D beschrieben, der einem Arrheniusgesetz folgt [25]

$$D = D_0 \exp(-H^M/kT) \cong D_0 \exp(-E^M/kT), \quad (2.14)$$

wobei D_0 ein temperaturunabhängiger Vorfaktor ist und H^M bzw. E^M die Aktivierungsenthalpie bzw. -energie der Wanderung darstellt. Abgesehen von der reinen Zwischengitterdiffusion, die nur in defektfreien reinen Metallen bei tiefen Temperaturen vorkommen kann, gibt es generell zwei Mechanismen, durch die atomares Helium durch ein Metallgitter diffundieren kann (Abb. 2.4). Das Diffusionsverhal-

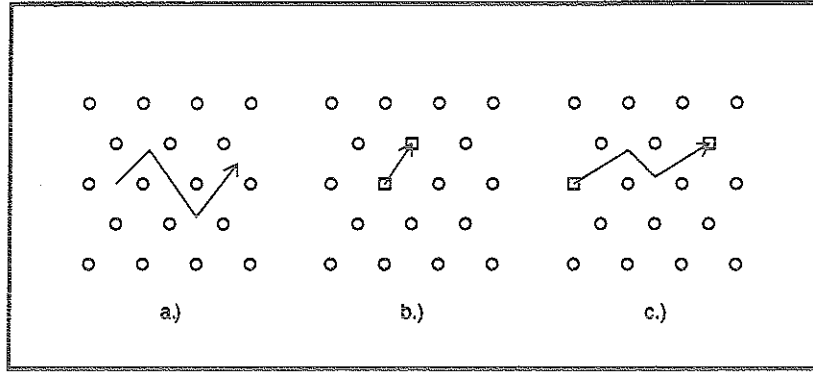


Abbildung 2.4: Heliumdiffusionsmechanismen im Metall: a.) reine Zwischengitterdiffusion, b.) Diffusion über Leerstellen und c.) durch Leerstellen behinderte Zwischengitterdiffusion.

ten bei beiden Mechanismen wird unter Bestrahlung auf Grund der Produktion von Leerstellen und Zwischengitteratomen zusätzlich beeinflusst. Man unterscheidet zum einen die substitutionelle Diffusion, die über den Leerstellenmechanismus erfolgt, und zum anderen die dissoziative Diffusion, bei der das Heliumatom einige Zeit in einer Leerstelle verweilt, dann aus der Leerstelle dissoziiert und über die Zwischengitterdiffusion solange durch das Metall diffundiert, bis es wieder in einer Leerstelle gebunden wird. Die Dissoziation kann 1.) durch thermische Aktivierung, 2.) durch Rekombination der das He-Atom enthaltenden Leerstelle mit einem Zwischengitteratom oder 3.) durch direkte Verlagerung unter Bestrahlung erfolgen. Durch Einführen eines effektiven Diffusionskoeffizienten [1, 26, 27] über

$$D_{He}^{eff} c_{He} = D_{HeI} c_{HeI} + D_{HeV} c_{HeV} \quad \text{mit} \quad c_{He} = c_{HeI} + c_{HeV} \quad (2.15)$$

und unter Berücksichtigung der Lösungen der quasistationären Ratengleichungen [26] für die atomaren Heliumkonzentrationen auf Zwischengitterplätzen, c_{HeI} , sowie in Leerstellen, c_{HeV} , kann man alle oben beschriebenen Mechanismen in der Größe D_{He}^{eff} erfassen [1]. D_{HeI} sowie D_{HeV} folgen der Arrheniusbeziehung (2.14) und sind die zu c_{HeI} bzw. c_{HeV} gehörigen Diffusionskoeffizienten.

2.4.1 Leerstellenmechanismus

Im Falle des Leerstellenmechanismus ist der effektive Diffusionskoeffizient, ähnlich wie bei der Selbstdiffusion durch

$$D_{He}^{eff} \approx D_V c_V \quad (2.16)$$

gegeben [14]. D_V ist der Diffusionskoeffizient der Leerstellen im Metall

$$D_V = D_{0V} \exp(-E_V^M/kT). \quad (2.17)$$

Für c_V gilt im thermischen Gleichgewicht

$$\hat{c}_V = \exp(-G_V^F/kT). \quad (2.18)$$

Damit folgt für die Aktivierungsenergie

$$E_{eff}^M = E_V^M + E_V^F. \quad (2.19)$$

Unter Bestrahlung ist die Leerstellenkonzentration im stationären Gleichgewicht durch die Produktionsrate P_F und die Rekombinationsrate $4\pi r_F D_I c_I (c_V + c_{HeV})/\Omega$ von Frenkelpaaren festgelegt [27], wobei r_F der Rekombinationsradius, Ω das Atomvolumen, sowie D_I und c_I der Diffusionskoeffizient und die atomare Konzentration von Zwischengitteratomen sind. Da im Mittel gleich viele Zwischengitteratome wie Leerstellen an Senken vernichtet werden kann man

$$D_I c_I = D_V (c_V - \hat{c}_V) \quad (2.20)$$

schreiben. Unter den Annahmen $c_V \gg \hat{c}_V$ und $c_V \gg c_{HeV}$ gilt für die Leerstellenkonzentration unter Bestrahlungsbedingungen

$$c_V = \left(\frac{\Omega P_F}{4\pi r_F D_V} \right)^{1/2} \quad (2.21)$$

und damit für die Aktivierungsenergie

$$E_{eff}^M = E_V^M/2. \quad (2.22)$$

2.4.2 Dissoziativer Mechanismus

Ohne Bestrahlung muß beim dissoziativen Mechanismus der Dissoziationsprozeß thermisch erfolgen. Seine Aktivierungsenergie ist gegeben durch [26, 27] (siehe Abb. 2.3)

$$E_{eff}^M = E_{HeV}^B + E_{HeI}^M - E_V^F = E_{HeV}^{Diss} - E_V^F. \quad (2.23)$$

Unter üblichen Bestrahlungsbedingungen überwiegen für Temperaturen zwischen $0.3T_m$ und $0.5T_m$, wobei T_m die Schmelztemperatur des Metalls ist, die durch Atomverlagerungen erzeugten Leerstellen die thermisch aktivierten und man erhält aus der Ratengleichung für c_{HeV} im kinetischen Gleichgewicht [27]

$$\frac{c_{HeI}}{c_{HeV}} = \frac{D_{ICl}}{D_{HeICV}}. \quad (2.24)$$

Aus Gl.(2.15) folgt mit $D_{HeI} \gg D_{HeV}$ und $c_{HeV} \gg c_{HeI}$

$$D_{He}^{eff} = D_{HeI} \frac{c_{HeI}}{c_{HeV}}. \quad (2.25)$$

Kombination der letzten beiden Gleichungen und Berücksichtigung von $D_{ICl} \cong D_{VcV}$ liefert für den Diffusionskoeffizienten des Rekombinationsmechanismus unter Bestrahlung

$$D_{He}^{eff} = D_V \quad (2.26)$$

mit E_V^M als Aktivierungsenergie.

In Tabelle 2.3 sind die wichtigsten Diffusionsmechanismen noch einmal zusammengefaßt.

2.5 Keimbildung und Wachstum von Blasen

Bei Temperaturen, wo Leerstellenbeweglichkeit vernachlässigbar ist, können sich kleine Helium-Leerstellencluster durch Ausstoß von einzelnen Zwischengitteratomen oder Versetzungsringen bilden [28]. Bei thermisch aktivierten Nukleationsprozessen sind immer zwei bewegliche Spezies (Heliumatome und Leerstellen) beteiligt. In diesen Fällen ist es nützlich, zwischen zwei experimentellen Situationen zu unterscheiden. Zum einen die Implantation unter Raumtemperatur mit anschließendem Tempern und zum anderen die Implantation unter erhöhten Temperaturen.

Tabelle 2.3: Effektive Aktivierungsenergien und Diffusionskoeffizienten für Heliumdiffusion in Extremfällen [14, 26, 27]. ψ und ϕ sind Konstanten.

Modus	Mechanismus	E_{eff}^M	D_{He}^{eff}
Interstitiell	Zwischengitterdiffusion	E_{HeI}^M	$D_{0HeI} e^{-E_{HeI}^M/kT}$
Dissoziativ	thermische Aktivierung	$E_{HeV}^B + E_{HeI}^M - E_V^F$	$D_{0He} e^{-E_{eff}^M/kT}$
	Rekombination mit Zwischengitteratomen	E_V^M	D_V
	direkte Verlagerung (Senken)	E_V^M	ψD_V
	direkte Verlagerung (Rekombination)	$E_V^M/2$	$\phi(P_F D_V)^{1/2}$
Substitutionell	Leerstellendiffusion (thermisch)	$E_V^M + E_V^F$	$D_V c_V$
	Leerstellendiffusion (Bestrahlung)	$E_V^M/2$	$D_V c_V$

2.5.1 Kalt-Implantation und Glühen

α -Teilchen werden bei Raumtemperatur bis zu einer Gesamtkonzentration c_{He}^{tot} implantiert. Es bildet sich eine hohe Dichte von kleinen unbeweglichen Helium-Leerstellenclustern aus. Anschließend wird die Temperatur erhöht. Schon nach kurzer Zeit wird die ursprüngliche Keimbildungsstruktur durch die einsetzenden Vergrößerungsmechanismen aufgehoben. Die atomare Heliumkonzentration c_{He} sowie die Blasendichte C_B nehmen ab und der mittlere Blasenradius $\bar{r}_B$ nimmt zu (Abb. 2.5). Prinzipiell kann die Blasenvergrößerung auf zwei Arten erfolgen, über den statistischen Prozeß der Wanderung und Koagulation von Blasen [29, 30] oder über einen Umlösungsprozeß, der sogenannten Ostwald-Reifung [4], wobei große Heliumblasen auf Kosten der Kleinen wachsen.

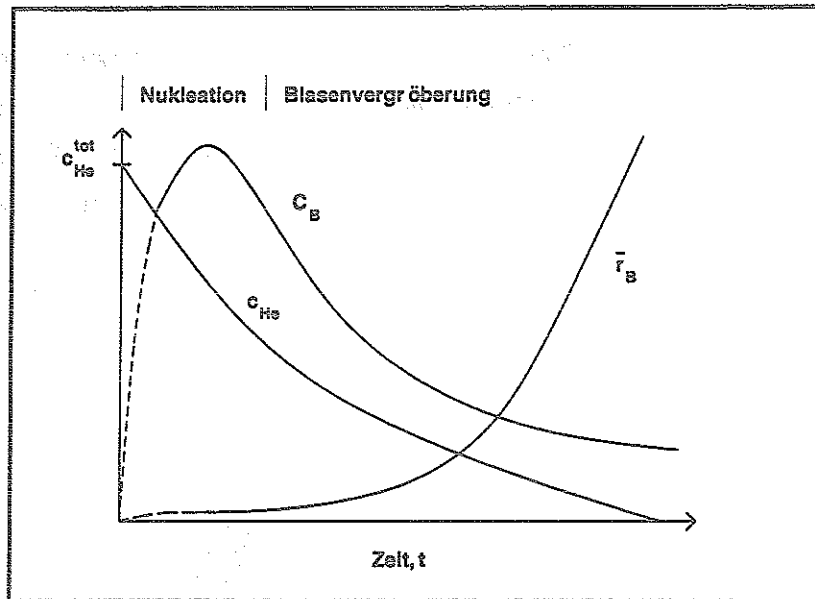


Abbildung 2.5: Blasenentwicklung beim Glühen nach Kalt-Implantation.

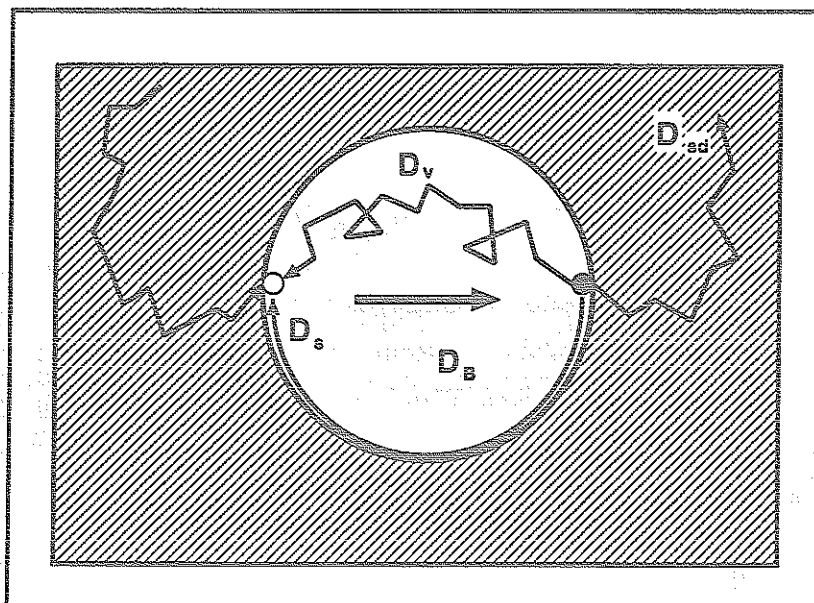


Abbildung 2.6: Wanderungsmechanismen von Heliumblasen.

2.5.1.1 Wanderung und Koaleszenz

Die Bewegung einer Blase als Ganzes erfolgt über Platzwechselvorgänge von Metallatomen auf der oder durch die Oberfläche der Blase (Abb. 2.6). Die möglichen Transportmechanismen sind Oberflächendiffusion mit einem druckabhängigen Diffusionskoeffizienten $D_s(p_{He})$, Volumendiffusion durch die Matrix mit einem Selbstdiffusionskoeffizienten D_{sd} und Gastransport über die Dampfphase mit einem Diffusionskoeffizienten D_v . Für alle diese Mechanismen kann man einen Blasendiffusionskoeffizienten D_B definieren [9, 31], der im folgenden für die verschiedenen Fälle aufgeführt ist:

$$\text{Oberflächendiffusion} \quad D_B = \frac{3\Omega^{4/3}D_s(p_{He})}{2\pi r_B^4} \quad (2.27)$$

$$\text{Volumendiffusion} \quad D_B = \frac{3\Omega D_{sd}}{4\pi r_B^3} \quad (2.28)$$

$$\text{über Dampfphase} \quad D_B = \frac{3\Omega^2 \alpha_v p_v D_v}{4\pi k T r_B^3}. \quad (2.29)$$

α_v gibt die Abweichung vom Gleichgewichtsdampfdruck p_v des Metalls an.

Asymptotisch lassen sich die mittleren Blasenradien $\bar{r}_B$ aus

$$\dot{\bar{N}} \propto \bar{r}_B D_B(\bar{r}_B) c_{He}^{tot} / \Omega \quad (2.30)$$

unter der Annahme, daß alle Heliumatome in Blasen vorhanden sind, bestimmen [11]. Dann gilt nämlich in guter Näherung

$$\bar{N} = c_{He}^{tot} / C_B \Omega = \rho_{He}[p_{He}(\bar{r}_B)] \bar{V}_B \quad (2.31)$$

wobei für $\rho_{He}(p_{He})$ eine geeignete Zustandsgleichung einzusetzen ist. $\bar{N}$ in obigen Gleichungen ist die mittlere Anzahl von Heliumatomen in einer Blase mit Volumen $\bar{V}_B(\bar{r}_B)$. Man erhält für die obigen Wanderungsmechanismen Potenzgesetze der Form $\bar{r}_B \propto t^{1/n}$ [9]. n nimmt ganzzahlige Werte zwischen 3 und 6 an. Hierauf wird in Kapitel 3 im Rahmen einer Simulation genauer eingegangen.

2.5.1.2 Ostwald-Reifung

Die auf Grund des Druckes höhere Heliumkonzentration in der Nähe kleiner Blasen im Vergleich zu größeren Blasen bedingt ein Konzentrationsgefälle, das die großen

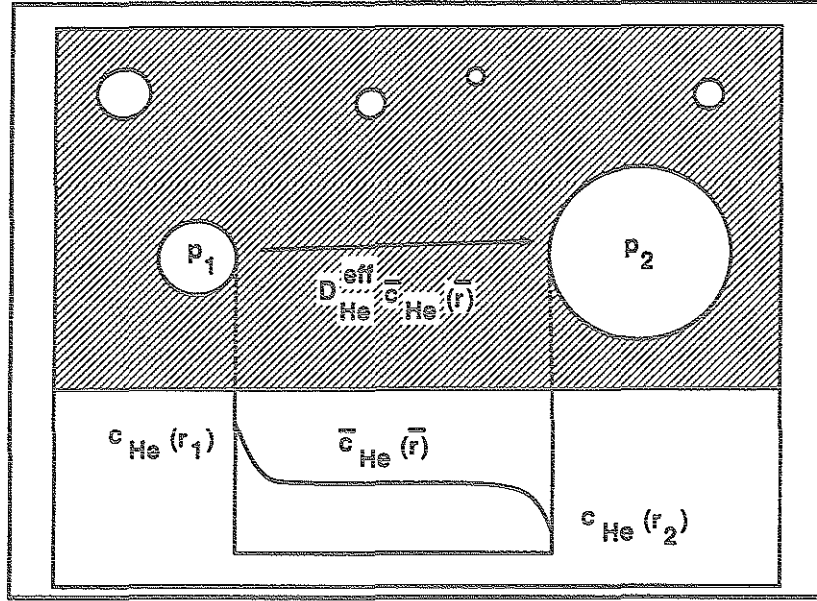


Abbildung 2.7: Vergrößerung von Heliumblasen auf Grund von Ostwald-Reifung.

Blasen auf Kosten der Kleinen wachsen läßt (Abb. 2.7). In diesem Fall läßt sich das Blasenwachstum asymptotisch durch

$$\dot{N} \propto \bar{r}_B D_{He}^{eff} \bar{c}_{He}(\bar{r}_B) / \Omega \quad (2.32)$$

beschreiben [11]. Gl. (2.31) gilt auch in diesem Fall. Im Gegensatz zur Blasenwanderung, wo metallspezifische Größen das Wachstum bestimmen, sind hier der Diffusionskoeffizient D_{He}^{eff} sowie die in der Matrix gelöste mittlere Heliumkonzentration $\bar{c}_{He}$ bei Anwesenheit von Blasen mit mittlerem Radius $\bar{r}_B$ maßgebend. Mit Gl. (2.9) folgt für ideales Gasverhalten

$$\bar{r}_B \propto \left[\frac{kT}{p_0 \Omega} D_{He}^{eff} t \exp(-G_{He}^F / kT) \right]^{1/2} \quad (2.33)$$

Entsprechend kann man für den Fall von Blasen mit konstantem Gesamtvolumen, d.h. konstanter Gasdichte zeigen [32], daß

$$\bar{r}_B \propto \left[\frac{\gamma v_{He}^2}{kT \Omega} D_{He}^{eff} c_{He}^0 t \exp(\mu_{He} / kT) \right]^{1/3} \quad (2.34)$$

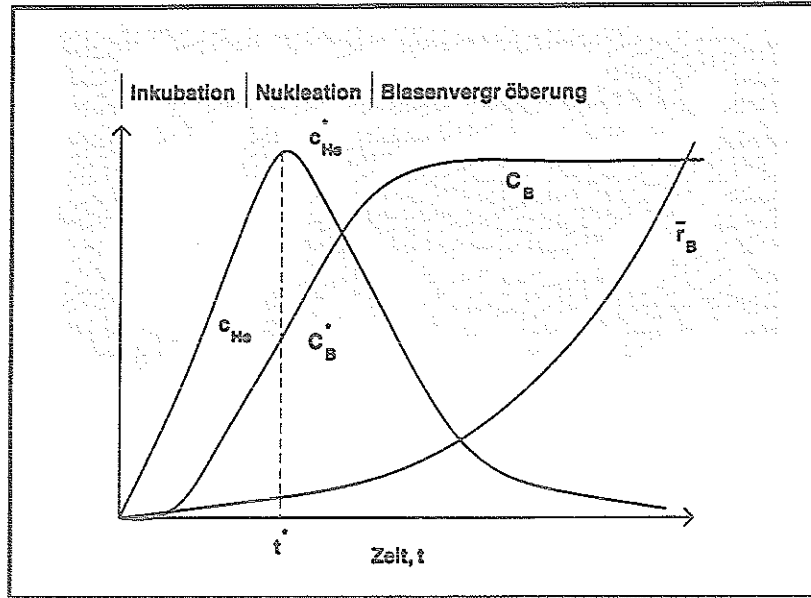


Abbildung 2.8: Blasenentwicklung unter Heiß-Implantation.

gilt. v_{He} ist das atomare Heliumvolumen und c_{He}^0 ist die bei $\mu_{He} = 0$ gelöste Heliumkonzentration in der Matrix. Die Zahl n im Wachstumsexponenten $1/n$ ist in diesen Grenzfällen ebenfalls ganzzahlig. Berücksichtigt man aber reales Gasverhalten [7], so geht n kontinuierlich von etwa 6 gegen den Wert 2 für ideales Gas.

2.5.2 Heiß-Implantation

Helium wird bei erhöhten Temperaturen mit einer gewissen Produktionsrate P_{He} in das Metall implantiert. In der sogenannten Inkubationsphase bildet sich ein quasi-stationäres kinetisches Gleichgewicht aus. Die Konzentration der Zwischengitteratome c_I und der Leerstellen c_V wird nahezu konstant, während die atomare Heliumkonzentration c_{He} zunimmt. In der Nukleationsphase erreichen c_{He} und damit die Clusterbildung ein Maximum (Abb. 2.8), wenn die Produktionsrate des Heliums gerade gleich der Ausscheidungsrate in Blasenkeimen ist. Zu diesem Zeitpunkt $t = t^*$ gilt, wenn man die Beweglichkeit der Blasenkeime vernachlässigt [11, 27]

$$P_{He} \approx 4\pi r_0 D_{He}^{eff} c_{He}^* C_B^* \quad (2.35)$$

r_0 ist der mittlere Heliumeinfangradius ($\simeq 1$ nm) und C_B^* die Volumenkonzentration der Blasenkeime (Größen zum Zeitpunkt t^* sind mit einem * gekennzeichnet). Für zwei Extremfälle, die anschließend vorgestellt werden, kann man eine Abschätzung der Größen bei maximaler Nukleationsrate vornehmen und wie in [10] gezeigt wird, ist damit auch die Blasendichte C_B für große Zeiten festgelegt. Für große Zeiten nimmt die Keimbildungsrate immer weiter ab und C_B kann einen Sättigungswert annehmen. Nach der Keimbildung geht die atomare Heliumkonzentration in der Matrix auf einen stationären kinetischen Gleichgewichtswert zurück und die vorhandenen Blasen wachsen unter Vernachlässigung von Wanderung und Ostwald-Reifung nur noch durch Absorption des neu implantierten Heliums. Auch hier kann man Gl. (2.31) benutzen, wenn man für c_{He}^{tot}

$$c_{He}^{tot} = P_{He}t \quad (2.36)$$

berücksichtigt.

Während Ostwald-Reifung bei kontinuierlicher Heliumproduktion generell unterdrückt sein sollte, kann man Wanderung und Koagulation nicht a priori ausschließen, z.B. unter der Annahme, daß die Blasendiffusion über die relativ schnelle Oberflächendiffusion erfolgt und die Heliumdiffusion über den langsamen Leerstellenmechanismus. Auch auf diesen Sachverhalt wird in Kapitel 3 näher eingegangen.

2.5.2.1 Di-atomare Keimbildung

Unter der Annahme, daß zwei Heliumatome einen stabilen Keim bilden, was z.B. bei tiefen Temperaturen und hohen Heliumproduktionsraten gerechtfertigt erscheint, ist die maximale Nukleationsrate durch die Bedingung gegeben, daß die Volumenkonzentrationen von Heliumatomen und Clustern vergleichbar werden [11]

$$C_B^* = c_{He}^*/\Omega. \quad (2.37)$$

Aus der Massenerhaltung

$$c_{He}^* + 2C_B^*\Omega = P_{He}t^* = c_{He}^{tot} \quad (2.38)$$

folgt für den Zeitpunkt t^*

$$t^* = 3\Omega C_B^*/P_{He}. \quad (2.39)$$

Kombination von Gl. (2.35) mit (2.37) liefert für die Blasendichte im Keimbildungsmaximum

$$C_B^* = \left(\frac{P_{He}}{4\pi r_0 \Omega D_{He}^{eff}} \right)^{1/2}. \quad (2.40)$$

Die Asymptotik kann aus den Ratengleichungen für c_{He} und C_B abgeschätzt werden

$$\dot{c}_{He} = P_{He} - 4\pi r_0 D_{He}^{eff} c_{He}^2 - 4\pi \bar{r}_B D_{He}^{eff} c_{He} C_B \quad (2.41)$$

$$\dot{C}_B = 4\pi r_0 D_{He}^{eff} c_{He}^2 / \Omega^2. \quad (2.42)$$

Aus 2.41 folgt mit $\dot{c}_{He} \rightarrow 0$ und $D_{He}^{eff} c_{He}^2 \rightarrow 0$

$$P_{He} = 4\pi \bar{r}_B D_{He}^{eff} c_{He} C_B \quad (2.43)$$

eine Beziehung, die der Gl. (2.35) entspricht, nur daß hier anstatt r_0 der mittlere Blasenradius $\bar{r}_B$ der Blasenverteilung steht. Mit Gl. (2.9) bei idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen folgt aus Gl. (2.31) für $\bar{r}_B$

$$\bar{r}_B = \left(\frac{3kT P_{He} t}{8\pi \gamma \Omega C_B} \right)^{1/2}. \quad (2.44)$$

Setzt man Gl. (2.43) und (2.44) in Gl. (2.42) ein, so kann man mit der Anfangsbedingung $C_B(t = 2t^*) \approx 2C_B^*$ [10] sofort integrieren und erhält

$$C_B = 2C_B^* \left[1 + \frac{4\pi \gamma r_0^2}{3kT} \ln \left(\frac{t}{2t^*} \right) \right]^{1/2}. \quad (2.45)$$

Dies ist gerade der Grenzfall zwischen kontinuierlicher und stark ausgeprägter Stoßnukleation [10]. Auf Grund des relativ langsam variierenden $\ln$ -Terms in Gl. (2.45) kann man $2C_B^*$ als die asymptotische Blasendichte ansehen. Die di-atomare Nukleation erfolgt diffusionskontrolliert, wie man der Aktivierungsenergie von C_B entnehmen kann

$$E_{C_B}^{act} = -E_{eff}^M / 2. \quad (2.46)$$

2.5.2.2 Multi-atomare Keimbildung

Bei hohen Temperaturen und kleinen Heliumproduktionsraten ist es wahrscheinlich, daß kleine Heliumcluster zerfallen, noch bevor sie durch Absorption von in der Matrix diffundierendem Helium stabilisiert werden. Gl. (2.35) kann auch in diesem Fall

verwendet werden, wenn anstatt des Einfangradius r_0 der kritische Clusterradius r_{cr} verwendet wird, oberhalb dem ein Cluster stabil bleibt. Wesentliche Nukleationsraten treten in diesem Fall nur auf, wenn die in der Matrix gelöste Heliumkonzentration einen kritischen Wert $\hat{c}_{He}^{cr}$ erreicht [10], der als thermische Gleichgewichtskonzentration bei Anwesenheit von Clustern mit kritischem Radius r_{cr} interpretiert werden kann. Für $\hat{c}_{He}^{cr}$ gilt nach Gl. (2.5)

$$\hat{c}_{He}^{cr} = \exp[(\mu_{He}^{cr} - G_{He}^F)/kT]. \quad (2.47)$$

Somit erhält man für diesen Fall zur Zeit

$$t^* = \hat{c}_{He}^{cr}/P_{He} \quad (2.48)$$

für den Wert von C_B im Keimbildungsmaximum

$$C_B^* = \frac{P_{He}}{4\pi r_{cr} D_{He}^{eff} \hat{c}_{He}^{cr}}. \quad (2.49)$$

Asymptotisch ist in diesem Fall die Blasendichte durch den Wert der Clusterdichte kurz nach dem Nukleationspeak festgelegt. Da der Peak extrem kurz und praktisch symmetrisch ist gilt für C_B

$$C_B = 2C_B^* = \frac{P_{He}}{2\pi r_{cr} D_{He}^{eff} \hat{c}_{He}^{cr}} \quad (2.50)$$

Die multi-atomare Nukleation erfolgt nach Gl. (2.50) dissoziationskontrolliert mit einer Aktivierungsenergie von C_B die dem negativen der Dissoziationsenergie eines Heliumatoms von einem Blasenkeim entspricht

$$E_{C_B}^{act} = -E_{He}^{Diss}. \quad (2.51)$$

Für den mittleren Blasenradius $\bar{r}_B$ folgt für Gleichgewichtsblasen und ideales Gas durch Kombination der Gleichungen (2.31), (2.50) und (2.9)

$$\bar{r}_B = \left(\frac{3kT \hat{c}_{He}^{tot} r_{cr} D_{He}^{eff} \hat{c}_{He}^{cr}}{4\gamma \Omega P_{He}} \right)^{1/2} \quad (2.52)$$

Kapitel 3

Simulationen

In diesem Kapitel wird die Wanderung und Koagulation (WK) von Gasblasen, die inertes Gas (g) enthalten, numerisch untersucht. Dabei werden beide im vorigen Kapitel erwähnten experimentellen Bedingungen simuliert.

- (A) WK während erhöhter Temperatur nach Raumtemperaturimplantation

$$c_g^{tot} = n_g^{tot} \Omega = \text{const.} \quad (3.1)$$

mit n_g^{tot} als implantierter Gasdichte.

- (B) WK während Heißimplantation

$$P_g = K_1 \Omega = \text{const.} \quad (3.2)$$

mit K_1 als Produktionsrate des Gases pro Atomvolumen Ω .

3.1 Grundlegende Annahmen und Gleichungen

Zur Beschreibung der Koagulation von Gasblasen kann man die Smoluchowskische Koagulationsgleichung verwenden [5, 33]. Sie stellt ein mathematisches Modell zur Beschreibung von irreversiblen Clusterprozessen dar und besteht aus einem unendlich dimensional System von gekoppelten Ratengleichungen für die Konzentrationen (Anzahl pro Atomvolumen) $c_n(t)$ der Blasen, bestehend aus n Gasatomen

$$\dot{c}_n = K_1 \delta_{1n} + \frac{1}{2} \sum_{m=1}^{n-1} K_{m,n-m} c_m c_{n-m} - c_n \sum_{m=1}^{\infty} K_{nm} c_m \quad (n = 1, \dots, \infty). \quad (3.3)$$

Der erste Term in Gl. (3.3) ist der Gasproduktionsterm. Mit der folgenden Definition für K_1

$$K_1 = \begin{cases} 0 & \text{im Fall (A)} \\ \text{const.} & \text{im Fall (B)} \end{cases} \quad (3.4)$$

kann man Gl. (3.3) zur Beschreibung beider experimentellen Situationen verwenden. Für das Kroneckersymbol δ_{1n} gilt die folgende Definition $\delta_{1n} = 1$ für $n = 1$ und 0 für $n \neq 1$. K_{nm} ist die Rate, mit der zwei Blasen, die eine Zufallsbewegung ausführen, koagulieren. Nach Chandrasekhar [34] gilt

$$K_{nm} = 4\pi(D_n + D_m)(r_n + r_m) \quad (3.5)$$

wobei D_n den Diffusionskoeffizienten einer n Gasatome enthaltenden Blase mit Radius r_n darstellt.

Die Anfangsbedingungen zur Integration des Gleichungssystems für die zwei Fälle sind

$$c_n(t=0) = \begin{cases} n_g^{\text{tot}} \delta_{1n} & \text{im Fall (A)} \\ 0 & \text{im Fall (B)} \end{cases} \quad (3.6)$$

Der Zusammenhang zwischen der Anzahl der Gasatome pro Blase n und dem Radius r_n (bei sphärischen Blasen) ist durch die Zustandsgleichung des Gases in der Blase gegeben. Für den Gaszustand betrachten wir die zwei Extremfälle

- (a) ideales Gas in Gleichgewichtsblasen

$$r_n = \left(\frac{3kTn}{8\pi\gamma} \right)^{1/2} \quad (3.7)$$

- (b) Blasen mit konstanter Gasdichte ρ_g

$$r_n = \left(\frac{3n}{4\pi\rho_g} \right)^{1/3} \quad (3.8)$$

Die Diffusionskoeffizienten D_n einer Blase für die drei denkbaren Wanderungsmechanismen sind durch die Gl. (2.27)-(2.29) gegeben

- (1) Oberflächendiffusion

$$D_n = \frac{3\Omega^{4/3}D_s}{2\pi r_n^4} \quad (3.9)$$

- (2) Volumendiffusion

$$D_n = \frac{3\Omega D_{sd}}{4\pi r_n^3} \quad (3.10)$$

- (3a) über Dampfphase (ideales Gas) [9], β_v eine Konstante

$$D_n = \frac{3\Omega^2 \alpha_v \beta_v p_v}{4\pi k T r_n^2} \quad (3.11)$$

- (3b) über Dampfphase (konstante Gasdichte)

$$D_n = \frac{3\Omega^2 \alpha_v p_v D_v}{4\pi k T r_n^3} \quad (3.12)$$

Streng genommen gelten diese Gleichungen nur für $n \gg 1$. Die qualitativen Ergebnisse der Simulation werden aber nicht beeinträchtigt, wenn man die Gleichungen für alle n benutzt.

Bei konstanter Produktionsrate (B) und dem Fall der Oberflächendiffusion (1) werden neben dem Standardfall, daß der Gasdiffusionskoeffizient in der Matrix $D_g \equiv D_1$ vergleichbar mit dem Oberflächendifusionskoeffizient D_s ist, also $D_g \cong D_s$ (i), zusätzlich noch die folgenden Fälle behandelt:

- (ii) Standard di-atomare Nukleation; die Gascluster sind unbeweglich, d.h. $D_g \gg D_s$
- (iii) Oberflächendifusion ist viel schneller als Gasdiffusion, d.h. $D_g \ll D_s$

3.2 Normierung

Führt man für die Konzentrationen c_n und die Zeit t dimensionslose Variablen ζ_n und τ wie folgt ein

$$\zeta_n = \begin{cases} n_g^{tot-1} c_n & \text{im Fall (A)} \\ (K_{11}/K_1)^{1/2} c_n & \text{im Fall (B)} \end{cases} \quad (3.13)$$

$$\tau = \begin{cases} n_g^{tot} K_{11} t & \text{im Fall (A)} \\ (K_1 K_{11})^{1/2} t & \text{im Fall (B)} \end{cases} \quad (3.14)$$

so kann man mit den Normierungen

Tabelle 3.1: Normierter Diffusionskoeffizient δ_n für die verschiedenen Wanderungsmechanismen in Abhängigkeit der zugrundegelegten Zustandsgleichung. Für den Fall (iii) wurde die Oberflächendiffusion als 10 mal schneller als die Gasdiffusion angesetzt.

δ_n	(a)	(b)
(1.i)	$\delta_n = n^{-2}$	$\delta_n = n^{-4/3}$
(1.ii)	$\delta_n = \delta_{1n}$	$\delta_n = \delta_{1n}$
(1.iii)	$\delta_1 = 1, \delta_{n>1} = 10 n^{-2}$	$\delta_1 = 1, \delta_{n>1} = 10 n^{-4/3}$
(2)	$\delta_n = n^{-3/2}$	$\delta_n = n^{-1}$
(3)	$\delta_n = n^{-1}$	$\delta_n = n^{-1}$

$$\rho_n = \frac{r_n}{r_1} = \begin{cases} n^{1/2} & \text{für (a)} \\ n^{1/3} & \text{für (b)} \end{cases} \quad (3.15)$$

$$\delta_n = \frac{D_n}{D_1} \quad (3.16)$$

sowie

$$\kappa_{nm} = \frac{K_{nm}}{K_{11}} = \frac{(\rho_n + \rho_m)(\delta_n + \delta_m)}{4}, \quad (3.17)$$

das Gleichungssystem (3.3) dimensionslos schreiben

$$\dot{\zeta}_n = \begin{Bmatrix} 0^{(A)} \\ \delta_{1n}^{(B)} \end{Bmatrix} + \frac{1}{2} \sum_{m=1}^{n-1} \kappa_{m,n-m} \zeta_m \zeta_{n-m} - \zeta_n \sum_{m=1}^{\infty} \kappa_{nm} \zeta_m \quad (n = 1, \dots, \infty). \quad (3.18)$$

Die Anfangsbedingungen (3.6) reduzieren sich dann auf

$$\zeta_n(\tau = 0) = \begin{cases} \delta_{1n} & \text{im Fall (A)} \\ 0 & \text{im Fall (B)} \end{cases}. \quad (3.19)$$

In der Tabelle 3.1 sind die normierten Diffusionskoeffizienten und in Tabelle 3.2 die Abhängigkeiten der reduzierten Zeit τ von der echten Zeit t für die verschiedenen Fälle angegeben. Aus den Gleichungen (3.10) und (3.12) folgt, daß diese beiden Fälle nach der Normierung äquivalent sind.

Tabelle 3.2: Zusammenhang der reduzierten Zeit τ mit der Zeit t für die zwei experimentellen Fälle (A) und (B) sowie die zwei Zustandsgleichungen (a) und (b) bei den drei möglichen Wanderungsmechanismen (1-3).

$\tau =$	(a)	(b)
(1)	$24\Omega^{4/3} D_s n_g^{tot} \left(\frac{8\pi\gamma}{3kT}\right)^{3/2} t$	$24\Omega^{4/3} D_s n_g^{tot} \left(\frac{4\pi\rho_g}{3}\right) t$
(A) (2)	$12\Omega D_{sd} n_g^{tot} \left(\frac{8\pi\gamma}{3kT}\right) t$	$12\Omega D_{sd} n_g^{tot} \left(\frac{4\pi\rho_g}{3}\right)^{2/3} t$
(3)	$(12\Omega^2 n_g^{tot} \alpha_v \beta_v p_v / kT) \left(\frac{8\pi\gamma}{3kT}\right)^{1/2} t$	$(12\Omega^2 D_v n_g^{tot} \alpha_v p_v / kT) \left(\frac{4\pi\rho_g}{3}\right)^{2/3} t$
(1)	$(24\Omega^{4/3} D_s K_1)^{1/2} \left(\frac{8\pi\gamma}{3kT}\right)^{3/4} t$	$(24\Omega^{4/3} D_s K_1)^{1/2} \left(\frac{4\pi\rho_g}{3}\right)^{1/2} t$
(B) (2)	$(12\Omega D_{sd} K_1)^{1/2} \left(\frac{8\pi\gamma}{3kT}\right)^{1/2} t$	$(12\Omega D_{sd} K_1)^{1/2} \left(\frac{4\pi\rho_g}{3}\right)^{1/3} t$
(3)	$(12\Omega^2 \alpha_v \beta_v p_v K_1 / kT)^{1/2} \left(\frac{8\pi\gamma}{3kT}\right)^{1/4} t$	$(12\Omega^2 D_v \alpha_v p_v K_1 / kT)^{1/2} \left(\frac{4\pi\rho_g}{3}\right)^{1/3} t$

3.3 Numerische Techniken

Für die numerische Integration des Gleichungssystems (3.18) muß man sich auf eine endliche Zahl N von Ratengleichungen beschränken, d.h. die Summation im letzten Term von Gl. (3.18) wird bei N abgebrochen

$$\dot{\zeta}_n = \left\{ \begin{matrix} 0^{(A)} \\ \delta_{1n}^{(B)} \end{matrix} \right\} + \frac{1}{2} \sum_{m=1}^{n-1} \kappa_{m,n-m} \zeta_m \zeta_{n-m} - \zeta_n \sum_{m=1}^N \kappa_{nm} \zeta_m \quad (n = 1, \dots, N). \quad (3.20)$$

Die Integrationszeitschritte $d\tau$ werden jeweils so festgelegt, daß die größte der Änderungen $\dot{\zeta}_n$ in der Verteilungsfunktion ζ_n , nämlich $\dot{\zeta}^{max}$, einen bestimmten Bruchteil ϵ des Maximums ζ^{max} der Verteilungen betragen

$$d\tau = \epsilon \frac{\zeta^{max}}{|\dot{\zeta}^{max}|} \quad (3.21)$$

Die Beschränkung auf ein endliches System hat nach einiger Integrationszeit einen Massenverlust im System zur Folge, weil durch Koagulation Blasen entstehen

Tabelle 3.3: Repopulation bei konstantem Gasgehalt (A).

r	Klassen							
0	1	2	3	4	5	6	7	8
		↘ ↓ ↗		↘ ↓ ↗		↘ ↓ ↗		↘ ↓
1		2		4		6		8
			↘	↓	↗		↘	↓
2				4				8

können, die oberhalb des Bereiches von N liegen. Wenn der Massenverlust signifikant wird, muß man durch ein geeignetes Repopulationsverfahren den Bereich von n vergrößern. In Anlehnung an das Verfahren von Gruber [8] kann man eine Klasseneinteilung n_i der Größenverteilung ζ_i vornehmen, wobei N jetzt die Maximalzahl der zu berücksichtigenden Klassen i darstellt. Der Größenbereich, den eine Klasse jeweils abdeckt, wird dann abhängig von der Repopulationstufe r , $n_i(r)$. Für $r = 0$ enthält jede Klasse i gerade die Blasen mit der der Klassennummer entsprechenden Anzahl von Atomen. Unter der Bedingung der Massenerhaltung kann man durch geeignete Kombination der Konzentrationen von benachbarten Klassen der ursprünglichen Verteilungsfunktion die jeweils neue Verteilungsfunktion konstruieren. In den Abbildungen 3.3 und 3.4 sind diese Vorgehensweisen für die zwei Fälle

Tabelle 3.4: Repopulation bei konstanter Gasproduktion (B).

r	Klassen							
0	1	2	3	4	5	6	7	8
	↓	↓ ↗	↘ ↓ ↗	↘ ↓ ↗	↘ ↓ ↗	↘ ↓ ↗	↘ ↓	↓
1	1	2		4		6		8
	↓	↓		↓	↗		↘	↓
2	1	2		4				8

(A) und (B) schematisch dargestellt. Die Pfeile $\searrow$ und $\swarrow$ sollen andeuten, daß jeweils die Hälfte der Konzentrationen aus der alten Verteilung in die Neue übernommen werden, während $\Downarrow$ für die Gesamtkonzentration steht. Im Fall (A) läuft die Repopulation auf eine Verdopplung der Klassenbreite hinaus während im Fall (B) der Produktion von einzelnen Gasatomen dadurch Rechnung getragen wird, daß die erste Klasse nicht repopuliert wird. Diese unterschiedlichen Repopulationsweisen führen dazu, daß im Fall (A) das Gleichungssystem (3.20) formal erhalten bleibt, während es im Fall (B) in Abhängigkeit von τ umgeschrieben werden muß. Der mathematische Formalismus unter Berücksichtigung von Repopulation ist im Anhang A genauer aufgeführt.

Aus der Verteilungsfunktion $\zeta_i(\tau)$ lassen sich alle wichtigen Größen berechnen. Der Mittelwert $\bar{n}$ und die Standardabweichung s ergeben sich zu

$$\bar{n} = \frac{\sum_{i=1}^N n_i \zeta_i}{\sum_{i=1}^N \zeta_i} \quad (3.22)$$

$$s = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (n_i - \bar{n})^2 \zeta_i}{\sum_{i=1}^N \zeta_i}} \quad (3.23)$$

Betrachtet man alle Gascluster mit $n \geq 2$ schon als Blasen, dann folgen für die reduzierte Blasendichte Z_B , die reduzierte Masse der Blasen M_B sowie den reduzierten mittleren Blasenradius $\bar{\rho}_B$ die Ausdrücke

$$Z_B = \sum_{i=2}^N \zeta_i \quad (3.24)$$

$$M_B = \sum_{i=2}^N n_i \zeta_i \quad (3.25)$$

und

$$\bar{\rho}_B = \frac{1}{Z_B} \sum_{i=2}^N \rho_i \zeta_i. \quad (3.26)$$

Für die theoretische Masse im System nach Ablauf der reduzierten Zeit τ gilt

$$M_{theo} = \begin{cases} 1 & \text{im Fall (A)} \\ \tau & \text{im Fall (B)} \end{cases} \quad (3.27)$$

während man aus der Verteilungsfunktion nach jedem Integrationsschritt einen Wert von

$$M_{Vert} = \sum_{i=1}^N n_i \zeta_i \quad (3.28)$$

erhält. Die Repopulation wird immer dann durchgeführt, wenn die Bedingung

$$\frac{\Delta M}{M_{Vert}} = \frac{M_{theo} - M_{Vert}}{M_{Vert}} > \epsilon' \quad (3.29)$$

erfüllt ist, wobei ϵ' eine Konstante darstellt. Anschließend wird die fehlende Masse ΔM als Konzentration auf die neue Verteilung aufaddiert. Diese Prozedur hat auf die Ergebnisse keine Auswirkung, kann aber zu einer Selbststeuerung der Repopulation verwendet werden, da man Gl. (3.29) immer wieder verwenden kann.

Die Rechnungen wurden im Falle des konstanten Gasgehalts (A) auf einer IBM und im Falle der konstanten Gasproduktion (B) auf einer Cray durchgeführt. In Tabelle 3.5 sind die verwendeten Parameter für die beiden Fälle angegeben. Im Falle (B) waren schon beträchtliche Rechenzeiten von bis zu 48 Stunden notwendig.

Tabelle 3.5: Parameter bei der Simulation.

	(A)	(B)
N	400	2400
ϵ	0.002	0.0006
ϵ'	$0.5 \cdot 10^{-2}$	$1 \cdot 10^{-6}$
τ	$\leq 1 \cdot 10^6$	$1 \cdot 10^3$ bis $1 \cdot 10^6$
r	≤ 12	1 bis 12

3.4 Ergebnisse

3.4.1 Konstanter Gasgehalt

Die Blasenverteilungen, die sich unter konstantem Gasgehalt entwickeln, zeigen schon nach kurzer Zeit ein Skalenverhalten in dem Sinne, daß sich ihre Form nicht mehr verändert. Mit wachsendem τ verbreitern sich die Verteilungen immer mehr, charakterisiert durch die Standardabweichung s , während der Mittelwert $\bar{n}$ immer weiter zunimmt. Nach einer reduzierten Zeit von $\tau \approx 10$ wird das Verhältnis von Standardabweichung zu Mittelwert $s/\bar{n}$ konstant und die Verteilungen werden selbstähnlich. Als Beispiel für diesen Sachverhalt sind in Abb. (3.1) die Verläufe von $\bar{n}$, s sowie $s/\bar{n}$ für den Fall der Oberflächendiffusion und idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen (1a) dargestellt.

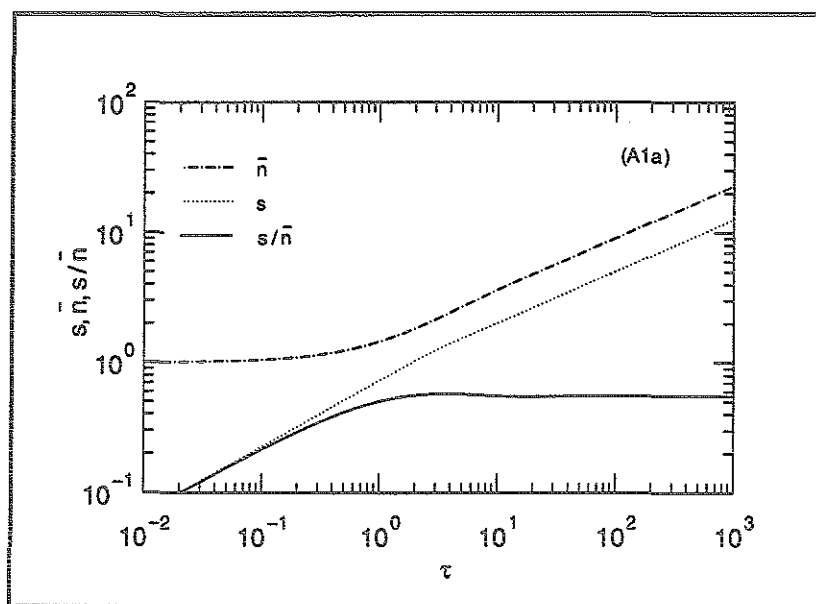


Abbildung 3.1: Zeitliche Entwicklung von $\bar{n}$, s sowie $s/\bar{n}$ für den Fall der Oberflächendiffusion und idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen (A1a).

Die zeitliche Entwicklung der reduzierten Blasendichten und mittleren Blasenradien, die sich aus den Verteilungsfunktionen nach Gl. (3.24) und (3.26) ergeben, kann

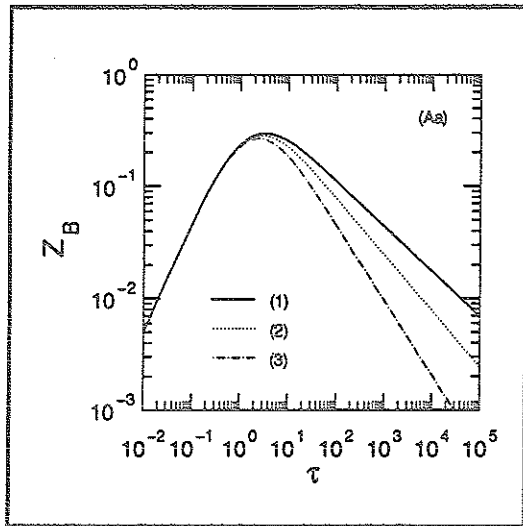


Abbildung 3.2: Zeitabhängigkeit von Z_B bei idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen für den Fall des konstanten Gasgehalts (Aa).

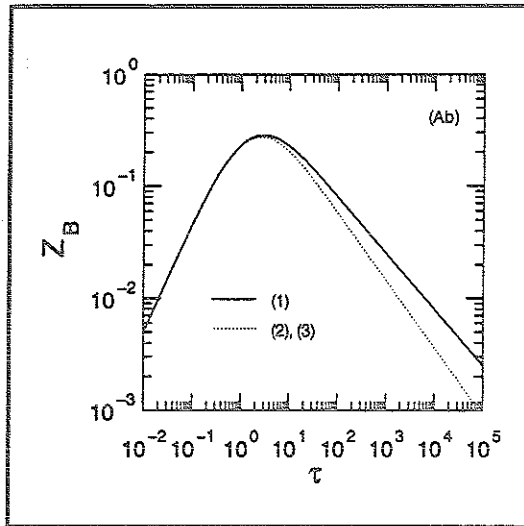


Abbildung 3.3: Zeitabhängigkeit von Z_B unter konstanter Gasdichte für den Fall des konstanten Gasgehalts (Ab).

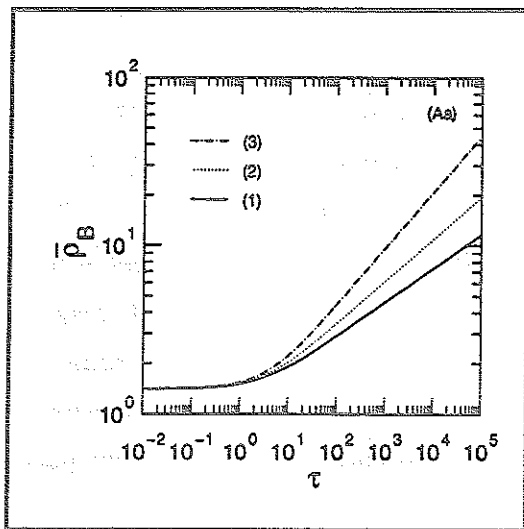


Abbildung 3.4: Zeitabhängigkeit von $\bar{p}_B$ bei idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen für den Fall des konstanten Gasgehalts (Aa).

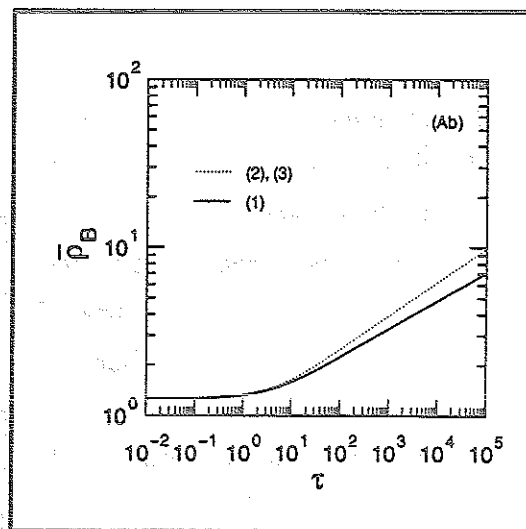


Abbildung 3.5: Zeitabhängigkeit von $\bar{p}_B$ unter konstanter Gasdichte für den Fall des konstanten Gasgehalts (Ab).

Tabelle 3.6: Asymptotische Zeitabhängigkeit des reduzierten mittleren Blasenradius $\bar{\rho}_B$, der reduzierten Blasendichte Z_B und der mittleren Gasatomanzahl pro Blase $\bar{n}$ unter konstantem Gasgehalt.

		(a)	(b)
$\bar{\rho}_B =$	(1)	$1.16 \cdot \tau^{1/5}$	$1.04 \cdot \tau^{1/6}$
	(2)	$1.09 \cdot \tau^{1/4}$	$0.99 \cdot \tau^{1/5}$
	(3)	$0.96 \cdot \tau^{1/3}$	$0.99 \cdot \tau^{1/5}$
$Z_B =$	(1)	$0.70 \cdot \tau^{-2/5}$	$0.80 \cdot \tau^{-1/2}$
	(2)	$0.77 \cdot \tau^{-1/2}$	$0.91 \cdot \tau^{-3/5}$
	(3)	$0.96 \cdot \tau^{-2/3}$	$0.91 \cdot \tau^{-3/5}$
$\bar{n} =$	(1)	$1.44 \cdot \tau^{2/5}$	$1.26 \cdot \tau^{1/2}$
	(2)	$1.29 \cdot \tau^{1/2}$	$1.10 \cdot \tau^{3/5}$
	(3)	$1.04 \cdot \tau^{2/3}$	$1.10 \cdot \tau^{3/5}$

man den Abbildungen 3.2 bis 3.5 entnehmen. Die asymptotischen Zeitabhängigkeiten folgen in allen betrachteten Fällen einfachen Potenzgesetzen. In Tabelle 3.6 sind diese zusammen mit den Ausdrücken für die mittlere Gasatomanzahl pro Blase, $\bar{n}$, für die drei behandelten Diffusionsmechanismen angegeben. Wie man dieser Tabelle entnehmen kann, ist auf der Basis von experimentellen Daten für die Zahl n im Wachstumsexponenten $1/n$ des mittleren Blasenradius kein definitiver Rückschluß auf den Blasen Zustand bzw. den zugrundeliegenden Diffusionsmechanismus möglich, da die ganzzahligen Werte von n in Tabelle 3.6 keine eindeutige Zuordnung zulassen. Entsprechende Aussagen gelten auch für die Blasendichte. Der Wertebereich zwischen 3 und 6, der im Wachstumsexponenten auftaucht, liegt zudem noch genau in dem Bereich, den die Ostwald-Reifung bei Berücksichtigung von realem Gasverhalten abdeckt [7], so daß anhand von n experimentell auch nicht zwischen den Hauptvergrößerungsmechanismen unterschieden werden kann.

Wie schon erwähnt, werden die Verteilungsfunktionen asymptotisch selbstähnlich. Das heißt, man kann für $\tau > 10$ für alle Diffusionsmechanismen durch geeignete Normierung Standardverteilungen angeben. In den Abbildungen 3.6 sowie

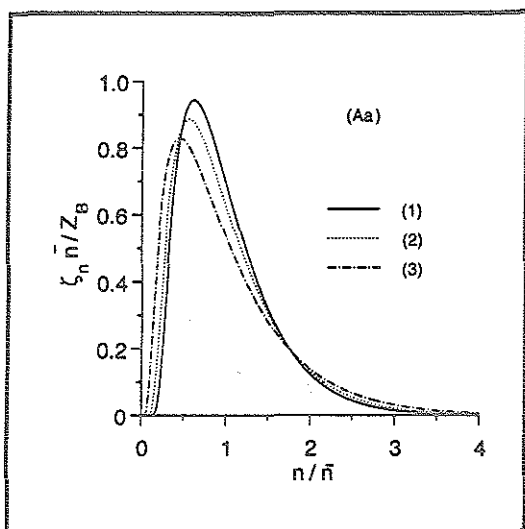


Abbildung 3.6: Normierte Verteilungsfunktionen bei idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen für den Fall des konstanten Gasgehalts (Aa).

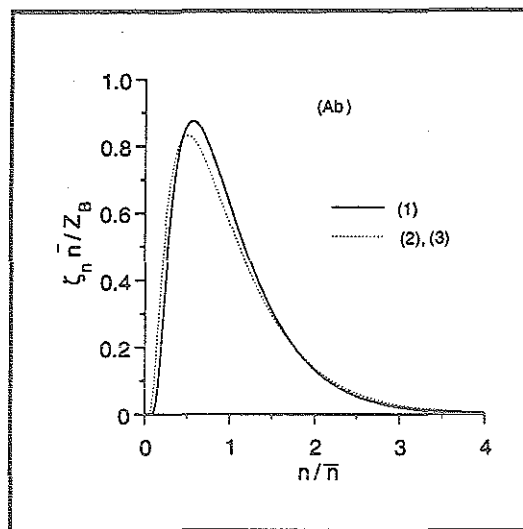


Abbildung 3.7: Normierte Verteilungsfunktionen unter konstanter Gasdichte für den Fall des konstanten Gasgehalts (Ab).

3.7 ist dies für die Fälle (a) und (b) durchgeführt. Dabei wurden die berechneten Verteilungen auf das Verhältnis $Z_B / \bar{n}$ normiert und gegen $n / \bar{n}$ aufgetragen. Die physikalischen Größenverteilungen erhält man hieraus, indem man die Gleichungen aus Tabelle 3.6 verwendet und die Ausdrücke für die reduzierten Zeiten aus Tabelle 3.2 berücksichtigt. Alle so erhaltenen Kurven sind sich sehr ähnlich. Sie fallen auf der Seite der kleinen Blasen relativ steil ab und haben einen langen Ausläufer auf der Seite der großen Blasen. Somit ist auch aus der Form der Verteilungen kein direkter Rückschluß auf den zugrundeliegenden Diffusionsmechanismus unter konstantem Gasgehalt möglich, da die relativ kleinen Abweichungen in der Höhe der Verteilungen experimentell nicht signifikant sein dürften. Im Vergleich dazu zeigen die Verteilungen, die sich nach der Lifshitz-Slyozov-Wagner Theorie bei Vergrößerung durch Ostwald-Reifung ergeben würden, ein umgekehrtes Verhalten [7]. Sie haben den langen Schwanz auf der Seite der kleinen Blasen und sind scharf abgeschnitten auf der Seite der großen Blasen. Genauere Theorien der Ostwald-Reifung [35] verwischen aber diesen Unterschied. Zur Unterscheidung der Mechanismen ist man demnach auf Hinweise aus den betrachteten Aktivierungsenergien angewiesen.

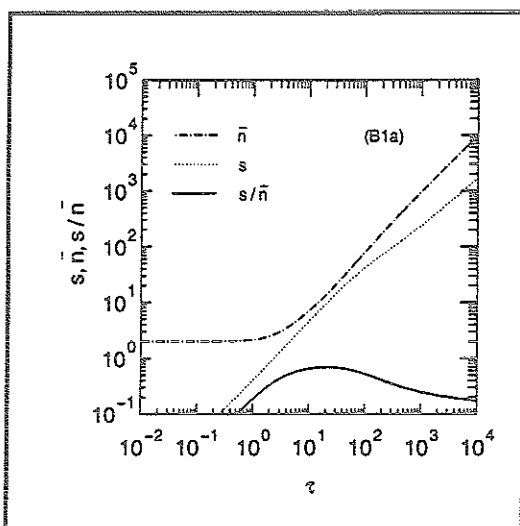


Abbildung 3.8: Zeitliche Entwicklung von $\bar{n}$, s sowie $s/\bar{n}$ für den Fall der Oberflächendiffusion und idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen (B1a).

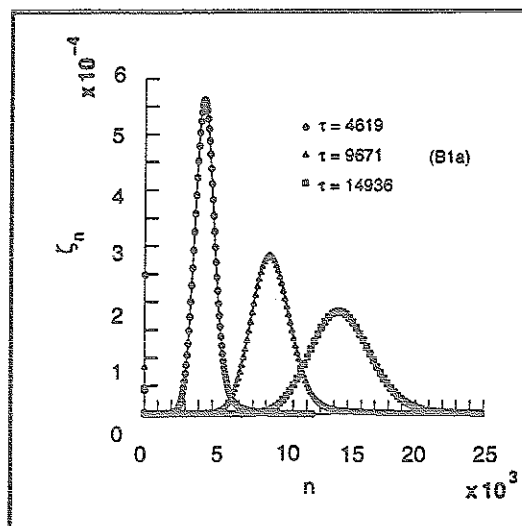


Abbildung 3.9: Zeitliche Entwicklung von ζ_n für den Fall der Oberflächendiffusion bei idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen (B1a).

3.4.2 Konstante Gasproduktion

Im Gegensatz zum Fall des konstanten Gasgehalts ist unter konstanter Gasproduktion in keinem der betrachteten Fälle ein zeitliches Skalierungsverhalten der Verteilungsfunktionen zu beobachten. Abb. 3.8 zeigt als typisches Beispiel die der Abb. 3.1 entsprechenden Verläufe von $\bar{n}$, s sowie $s/\bar{n}$ für den Fall der Oberflächendiffusion und idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen (1a). Die Verteilungsfunktionen sind auch unter konstanter Gasproduktion monomodal; sie verschieben sich mit wachsender Zeit zu höheren Werten, während sie gleichzeitig breiter werden. Für lange Zeiten τ überwiegt jedoch die Wachstumsrate gegenüber der Verbreiterungsrate; das Verhältnis $s/\bar{n}$ nimmt nach Passieren eines Maximums bei $\tau \approx 10$ immer weiter ab. In Abb. (3.9) ist die zeitliche Entwicklung der Verteilungsfunktion zu drei reduzierten Zeiten τ für den Fall (1a) als Beispiel dargestellt. Ein qualitativer Unterschied zu den Verteilungen im Fall (A) fällt sofort ins Auge. Der Peak der Größenverteilung ist fast symmetrisch und bei den angegebenen Zeiten τ in Abb. 3.9 ist immer noch eine nennenswerte Konzentration ζ_1 von einzelnen Gasatomen vor-

handen, im Verhältnis zu der Konzentration im Maximum des Peaks. Während bei konstantem Gasgehalt ζ_1 stetig abnimmt und schon nach einer reduzierten Zeit von $\tau \approx 10$ zu vernachlässigen ist, erfolgt unter konstanter Gasproduktion zuerst ein Anstieg bis zu einem Maximum bei $\tau \approx 1$ und erst dann nimmt ζ_1 asymptotisch ab (siehe Abb. 3.10). Wie jedoch aus Abb. 3.11 hervor geht, ist schon für reduzierte Zeiten um $\tau \approx 40$ etwa 99% des Gases in Blasen enthalten. Die Abbildung zeigt die zeitliche Entwicklung des Verhältnisses der Masse der Gasatome $\mu_1 \equiv \zeta_1$ zu der Gesamtmasse der Blasen M_B , berechnet nach Gl.(3.25).

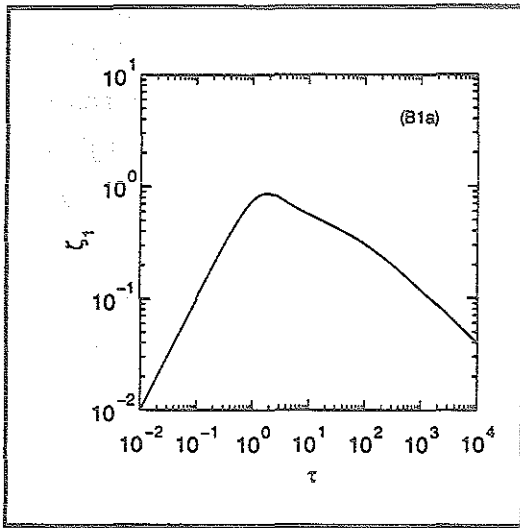


Abbildung 3.10: Zeitliche Entwicklung von ζ_1 für den Fall der Oberflächendiffusion bei idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen (B1a).

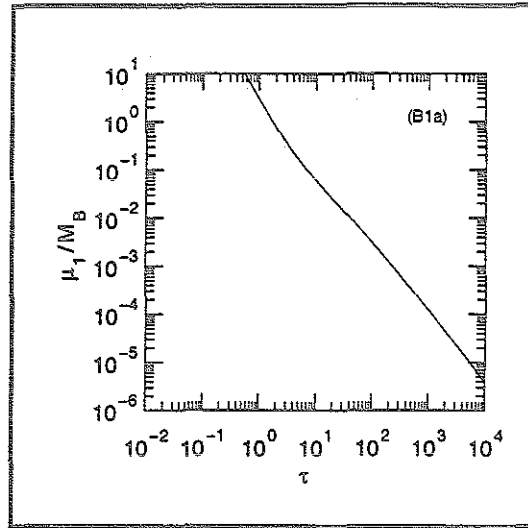


Abbildung 3.11: Zeitliche Entwicklung von μ_1/M_B für den Fall der Oberflächendiffusion bei idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen (B1a).

Preininger und Kaletta [12, 13] führten ebenfalls Simulationen zur Wanderung und Koagulation von Gasblasen unter Gasproduktion durch. Ihre bimodalen Verteilungsfunktionen mit jeweils einem Peak bei kleinen und bei großen Blasen stehen ganz im Gegensatz zu den monomodalen Verteilungen, die in dieser Arbeit berechnet wurden. Dies ist jedoch nicht verwunderlich, da in letzterer Arbeit die recht willkürliche Annahme gemacht wurde, daß sich das neu produzierte Gas nur in Gasblasen mit einer kleinen endlichen Größe ausscheidet, die einen unphysikalischen Peak bei kleinen Blasen darstellen.

In den Abbildungen 3.12 bis 3.15 sind sowohl die reduzierten Blasendichten Z_B als auch die reduzierten mittleren Blasenradien $\bar{p}_B$ in Abhängigkeit von der Zeit τ für die zwei betrachteten Gaszustände (a) und (b) für alle Diffusionsmechanismen aufgetragen. In allen Fällen steigt die Blasendichte, wie auch im Fall des konstanten Gasgehalts (A), nach einer kurzen Inkubationsphase sehr schnell an. In dieser Nukleationsphase erreicht sie bei $\tau \approx 10$ ein Maximum. Im Gegensatz zum Fall (A), wo die Blasendichten in allen Fällen nach Überschreiten des Maximums asymptotisch mit den typischen Potenzgesetzen abnehmen, variieren sie bei (B) nicht mehr so stark. Man erkennt, daß je nach Annahme über den Wanderungsmechanismus der Blasen und über den Gaszustand in den Blasen, verschiedenes Langzeitverhalten auftritt. Wenn man Oberflächendiffusion und ideales Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen annimmt, (1a), so erfolgt schon nach $\tau \approx 10^3$ eine Sättigung der Blasendichte auf einen Wert von $Z_B \approx 1$. In allen anderen Fällen liegen die simulierten reduzierten Zeiten noch nicht in dem Bereich, in denen die Kurven ihr asymptotisches Verhalten zeigen. Der Trend zur Sättigung, wobei die Endblasendichten alle tiefer als der Wert für (1a) liegen, ist bis auf den Fall der Diffusion durch die Gasphase unter Annahme von idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen (1c), schon zu erkennen. In letzterem Fall geht die Blasendichte, wie auch bei (A) gegen Null.

Die reduzierten mittleren Blasenradien $\bar{p}_B$ nehmen mit der Zeit, wie zu erwarten war, immer weiter zu. Dabei wachsen die Blasen, wenn man ideales Gas in Gleichgewichtsblasen annimmt (a), deutlich schneller als unter Annahme von konstanter Gasdichte (b). Dieses Verhalten ist sowohl unter konstantem Gasgehalt (A) als auch unter konstanter Gasproduktion (B) zu beobachten.

Bei den eben aufgeführten Fällen waren die Gasdiffusionskoeffizienten $D_g \equiv D_1$ immer vergleichbar mit den der Blasendiffusion zugrunde liegenden atomaren Diffusionskoeffizienten für die drei betrachteten Wanderungsmechanismen: D_s , D_{sd} bzw. D_v . Zusätzlich wurde exemplarisch, für den Fall der Oberflächendiffusion und idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen (1a), der Einfluß des Verhältnisses des Diffusionskoeffizienten von einzelnen Atomen und die der Blasendiffusion zugrunde liegenden Diffusionskoeffizienten auf die sich einstellende Endblasendichte studiert. Wie in Abb. 3.16 skizziert ist, kann die Cluster- bzw. Blasendiffusion prinzipiell auf

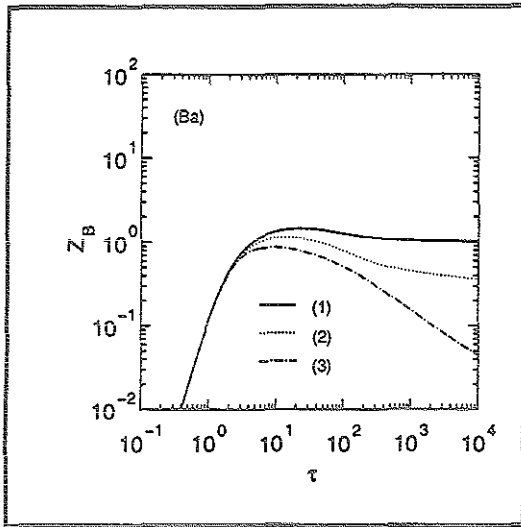


Abbildung 3.12: Zeitabhängigkeit von Z_B bei idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen für den Fall der konstanten Gasproduktion (Ba).

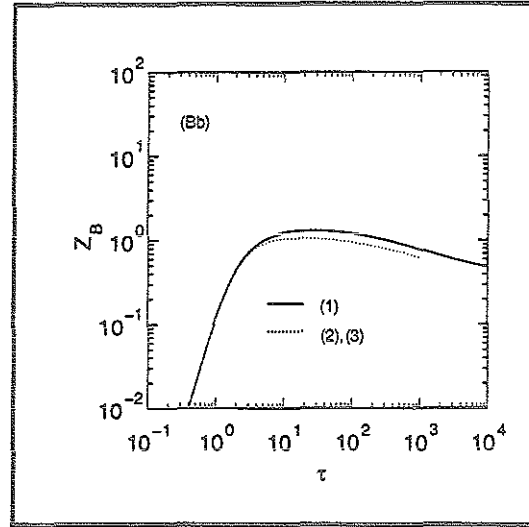


Abbildung 3.13: Zeitabhängigkeit von Z_B unter konstanter Gasdichte für den Fall der konstanten Gasproduktion (Bb).

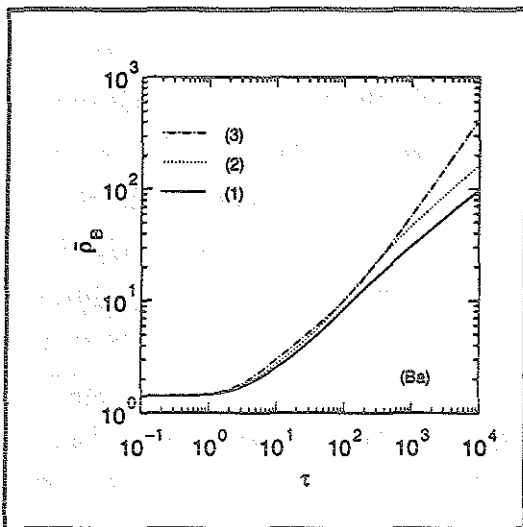


Abbildung 3.14: Zeitabhängigkeit von $\bar{\rho}_B$ bei idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen für den Fall der konstanten Gasproduktion (Ba).

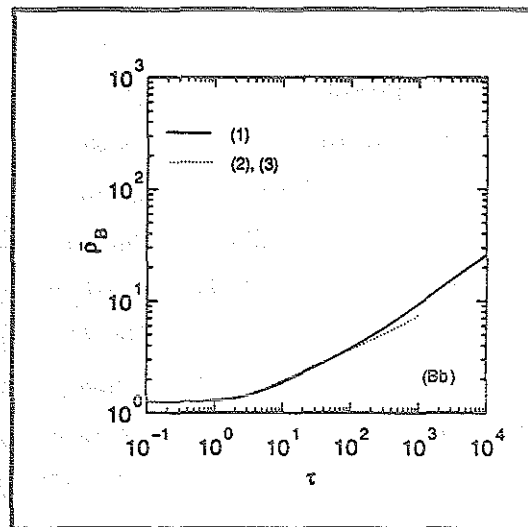


Abbildung 3.15: Zeitabhängigkeit von $\bar{\rho}_B$ unter konstanter Gasdichte für den Fall der konstanten Gasproduktion (Bb).

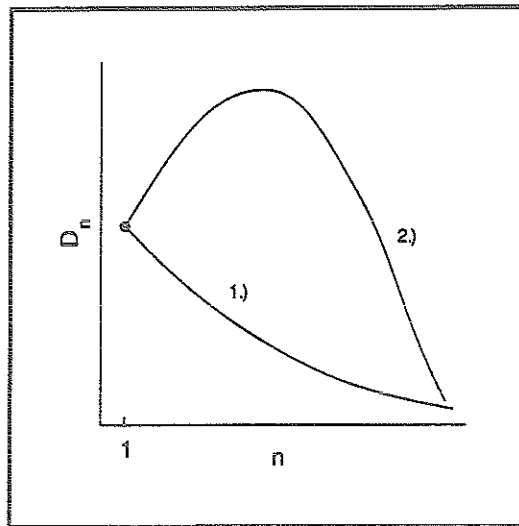


Abbildung 3.16: Schematische Abhängigkeit der Clusterdiffusivität D_n von der Clustergröße n . 1.) Monotone Abnahme mit der Clustergröße. 2.) Maximum bei einer bestimmten Clustergröße.

zwei Arten von der Größe der Cluster abhängen [17]. Wenn die Diffusivität D_n mit der Clustergröße n monoton abnimmt 1.), wird die „Nukleationsphase“ und auch die Endblasendichte durch die Diffusion der einzelnen Gasatome kontrolliert. Hat D_n aber ein Maximum bei der Größe n 2.), so kontrolliert die Diffusion dieser Cluster die Nukleation und damit die Endblasendichte. Der erstere Fall ist z.B. dann erfüllt, wenn die Gasatome über die reine Zwischengitterdiffusion oder über den relativ schnellen Rekombinationsmechanismus unter Bestrahlung (Gl.(2.26)) erfolgt. Als Extremfall werden in der Simulation für den Fall 1.) aus Abb. 3.16 alle Cluster mit $n \geq 2$ als unbeweglich angesehen (ii). Dies entspricht dem di-atomaren Nukleationsmodell, das in Kapitel 2 beschrieben wurde. Um den zweiten Fall zu simulieren, wurde der Oberflächendiffusionskoeffizient 10 mal schneller als der Gasdiffusionskoeffizient gewählt (iii). Diffundiert das Gas z.B. über den langsamen Leerstellenmechanismus, so könnte die Wanderung über Oberflächendiffusion in der Tat der die Blasenbildung bestimmende Vorgang sein.

In den Abbildungen 3.17 bis 3.20 sind die reduzierte Blasendichte sowie der reduzierte mittlere Blasenradius für die zwei Fälle (ii) und (iii) im Vergleich zu dem

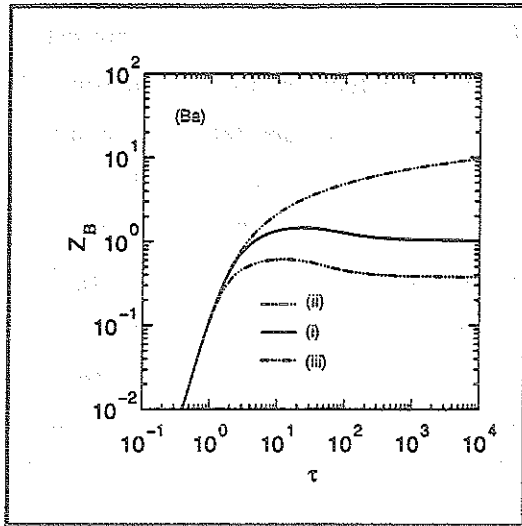


Abbildung 3.17: Zeitabhängigkeit von Z_B bei idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen für die Fälle (i-iii) (Ba).

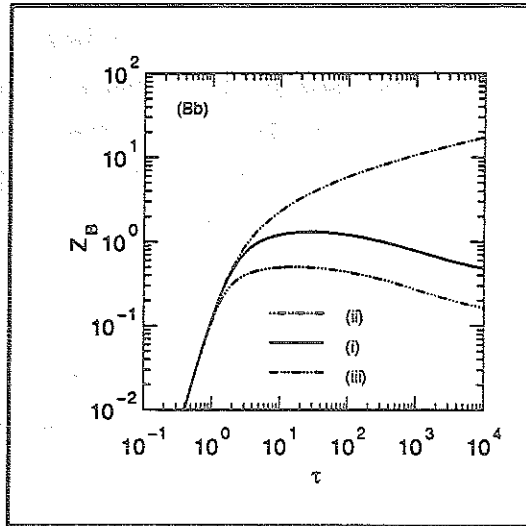


Abbildung 3.18: Zeitabhängigkeit von Z_B unter konstanter Gasdichte für die Fälle (i-iii) (Bb).

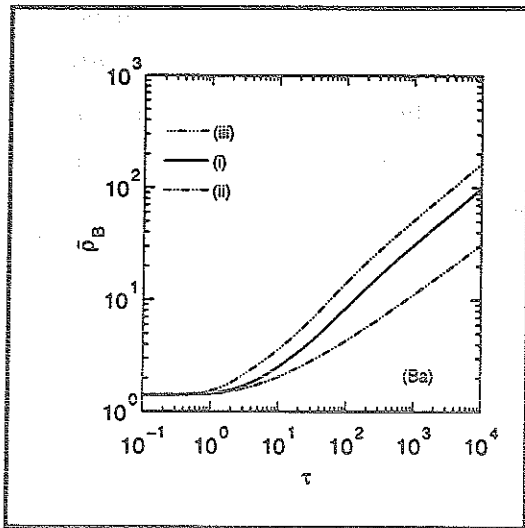


Abbildung 3.19: Zeitabhängigkeit von $\bar{p}_B$ bei idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen für die Fälle (i-iii) (Ba).

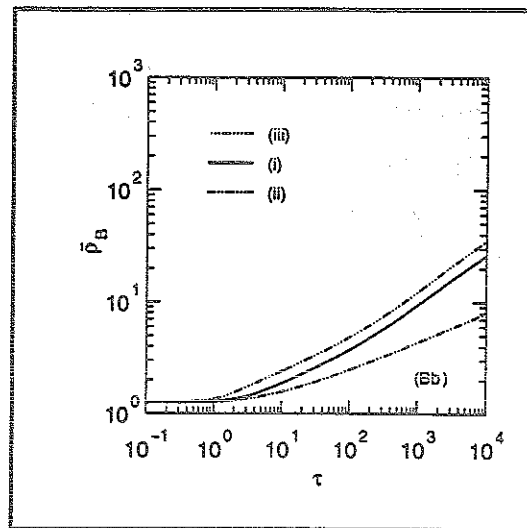


Abbildung 3.20: Zeitabhängigkeit von $\bar{p}_B$ unter konstanter Gasdichte für die Fälle (i-iii) (Bb).

Standardfall der Oberflächendiffusion, (i) $\equiv$ (1), für beide Grenzfälle (a) und (b) des Gaszustandes in den Blasen dargestellt. Zu beachten ist, daß in der normierten Darstellungsweise durch reduzierte Größen, die Form der Kurven nicht mehr von den Absolutwerten der Diffusionskoeffizienten D_s und D_g abhängt, sondern nur noch von dem Verhältnis D_s/D_g . Ein kontinuierlicher Anstieg der Blasendichte Z_B ist, wie in [10, 11] gezeigt wurde, nur für den di-atomaren Nukleationsfall möglich. Die asymptotischen Zeitabhängigkeiten für die zwei betrachteten Gaszustände ergeben sich dabei zu $Z_B \propto \ln^{1/2} \tau$ im Falle (a) (siehe auch Gl.(2.45)) und $Z_B \propto \tau^{1/7}$ im Falle (b). Die berechneten Kurven zeigen, daß dieses asymptotische Verhalten für $\tau = 10^4$ schon fast erreicht ist. Entsprechendes gilt auch für die reduzierten mittleren Blasenradien $\bar{\rho}_B$, die auf Grund der Massenbilanz mit den Blasendichten für große Zeiten gekoppelt sind; die Simulation liefert hier Zeitexponenten von 0.48 im Fall (a) und 0.28 im Fall (b) während die asymptotischen Lösungen 1/2 und 2/7 betragen. Sobald man aber Wanderung und Koagulation berücksichtigt, wird die Blasendichte limitiert. Im Falle (a) erfolgt wie schon erwähnt eine Sättigung, während im Falle (b) die Blasendichte bei den simulierten Zeiten immer noch weiter abnimmt.

Betrachtet man die Kurvenverläufe für $D_s = 10D_g$, so stellt man fest, daß die resultierenden Blasendichten bei den hier simulierten reduzierten Zeiten in beiden Fällen, (a) und (b), etwa um den Faktor 2.5 tiefer liegen als bei vergleichbaren Diffusionskoeffizienten D_s und D_g . Theoretische Abschätzungen [16] sagen einen asymptotischen Wert von 2.1 im Falle (a) und 2.0 im Falle (b) voraus. Diese Abhängigkeiten können zur Analyse von Daten herangezogen werden, die unter Implantationsbedingungen gewonnen worden sind. In Kapitel 4 wird hierauf noch einmal Bezug genommen.

Kapitel 4

Experimente

In diesem Kapitel wird über experimentelle Untersuchungen der Vergrößerung von Heliumgasblasen in Nickel unter Heiß-Implantationsbedingungen in Abhängigkeit der Temperatur T und der Heliumproduktionsrate P_{He} berichtet. Die insgesamt implantierte Heliumkonzentration c_{He} beträgt, mit Ausnahme von einer Probe, jeweils 100 appm. In Tabelle 4.1 ist der abgesteckte Parameterbereich angegeben.

Tabelle 4.1: Experimentelles Parameterfeld.

P_{He} [appm/h]	9	50	260
T [K]	523 - 1050		
c_{He} [appm]	100		
50 appm/h, 700 K, 1000 appm			

4.1 Probenbehandlung

Die Firma Goodfellow lieferte Nickelfolien von 50 μm Dicke und einer Reinheit von 99.999%. Daraus wurden mittels Funkenerosion Proben der endgültigen Form, die der Abb. 4.1 zu entnehmen sind, geschnitten. Nach einer gründlichen Reinigung erfolgte eine Temperung bei 1000°C in einem Vakuum, das besser als 10^{-5} Pa war. Dieses Vorgehen soll die Effekte des Kaltwalzen eliminieren und gleichzeitig

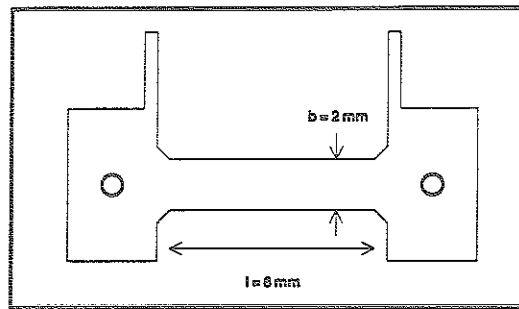


Abbildung 4.1: Probengeometrie und Abmessungen.

eine möglichst homogene Kornstruktur produzieren. Nach dieser Wärmebehandlung betrug die mittlere Korngröße $50 \mu\text{m}$ (Abb. 4.2).

4.2 Heliumimplantation

Die Implantation der Proben erfolgte am Jülicher Kompaktzyklotron durch einen 28 MeV α -Teilchenstrahl in der „In-beam“-Bestrahlungsapparatur [36, 37]. Der bestrahlte Bereich beschränkte sich dabei auf den Probensteg. Um eine möglichst homogene laterale Beladung der Proben zu erreichen, wurde der α -Strahl, nachdem er aus dem Zyklotron ausgetreten war, durch zwei senkrecht zueinander angebrachte Wobbelspulen, die mit Ablenkfrequenzen von einigen hundert Hertz arbeiten, horizontal und vertikal aufgeweitet. Anschließend erfolgte eine Energieabstufung des Strahls durch 24 unterschiedlich dicke Aluminiumfolien, die auf der Peripherie eines rotierenden Aluminiumrades montiert sind. Die Foliendicken wurden so ausgelegt, daß die daraus resultierenden α -Energien zu Eindringtiefen führten, die eine homogene Verteilung des implantierten Heliums über die gesamte Probendicke gewährleisteten. Zur Berechnung der Foliendicken wurde das Computerprogramm TRIM¹ [38] benutzt. Die Proben selber waren kurz hinter dem Degraderrad montiert, um die Effekte der Winkelaufweitung beim Durchgang des α -Teilchenstrahls durch die Aluminiumfolien zu minimieren. Der Gesamtverlauf des Ionenstrahls ist in Abb. 4.3 schematisch skizziert.

¹Transport of ions in matter

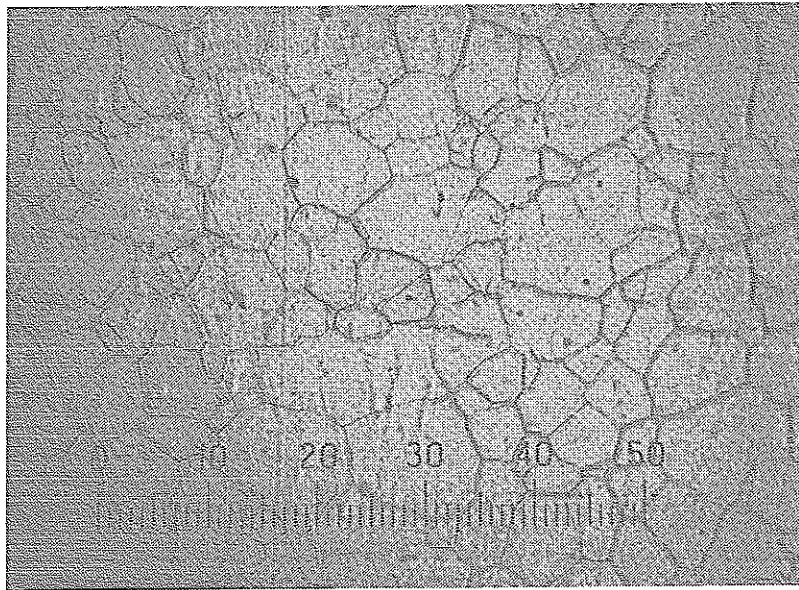


Abbildung 4.2: Kornstruktur von Nickel nach dem Tempern.
Die mittlere Korngröße beträgt $50\ \mu\text{m}$.

4.3 Temperaturregelung

Zur Erzielung der Implantationstemperaturen zwischen $523\ \text{K}$ und $1050\ \text{K}$ wurde zum einen die Ohmsche Verlustleistung eines Gleichstroms durch die Probe verwendet und zu einem kleineren Teil die Energiedeposition des α -Strahls. Strahlstromschwankungen können die Meßwerte beeinflussen, sodaß eine Probentemperaturregelung notwendig wird. Die Temperaturabhängigkeit des elektrischen Widerstandes kann zur Regelung ausgenutzt werden. Abb. 4.4 zeigt schematisch die Probentemperaturregelung [39]. Über einen PID-Regler wird das Verhältnis des Probenwiderstandes R_x zu einem Normalwiderstand R_N auf einem die gewünschte Temperatur repräsentierenden, konstanten Wert gehalten, indem je nach Bedarf der Heizstrom I erhöht oder erniedrigt wird. Zum Erreichen der Maximaltemperatur wurden Ströme von über $40\ \text{A}$ benötigt. Die eigentliche Temperaturmessung erfolgte mit einem berührungslos arbeitenden Infrarotpyrometer durch ein Fenster der Bestrahlungskammer. Im Gegensatz zu der integralen Bestimmung der Temperatur über die Widerstandsmessung ist es mit dem Pyrometer möglich, das gesamte Tem-

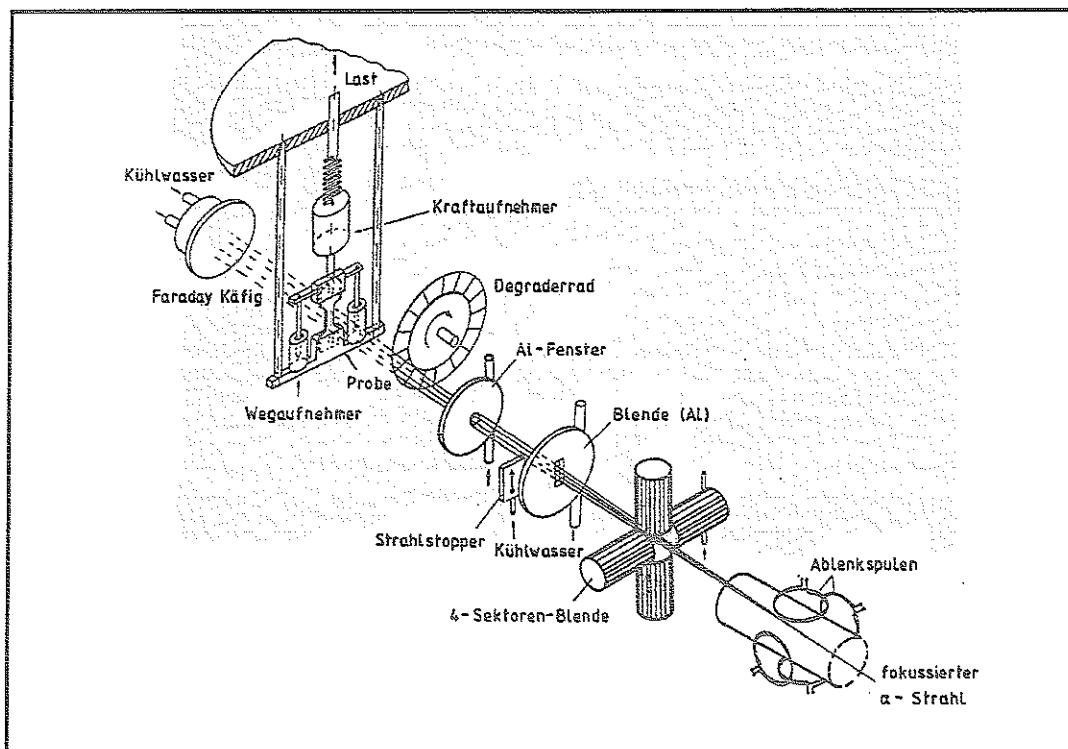


Abbildung 4.3: Schematischer Verlauf des α -Teilchenstrahls vom Zyklotron zur „In-beam“-Bestrahlungsapparatur.

peraturprofil auf der Oberfläche der Probe abzufahren, da das Pyrometer beweglich installiert ist.

Wie erwähnt sollte neben der Temperaturabhängigkeit auch die Abhängigkeit von der Heliumproduktionsrate P_{He} untersucht werden. Da die Strahlstrommessungen am Zyklotron auf Grund von Sekundärelektronen relativ ungenau sind, wurden die Produktionsraten aus der Differenz der Heizleistung mit und ohne α -Strahl, bei bekanntem Energieverlust in der Probe, ermittelt. Für die hohen Produktionsraten sind relativ hohe Strahlströme erforderlich, die eine leistungsfähige Wärmeabfuhr von der Probe voraussetzen. Um dies zu gewährleisten erfolgte die Implantation in einer Heliumgasatmosphäre. Die Proben konnten mittels eines Kompressors von beiden Seiten durch einzeln regulierbare Düsen mit Heliumgas angeblasen werden. Mit Hilfe des fahrbaren Pyrometers und der Düsen war es somit möglich, auch während der Bestrahlung ein möglichst homogenes Temperaturprofil über die gesamte Pro-

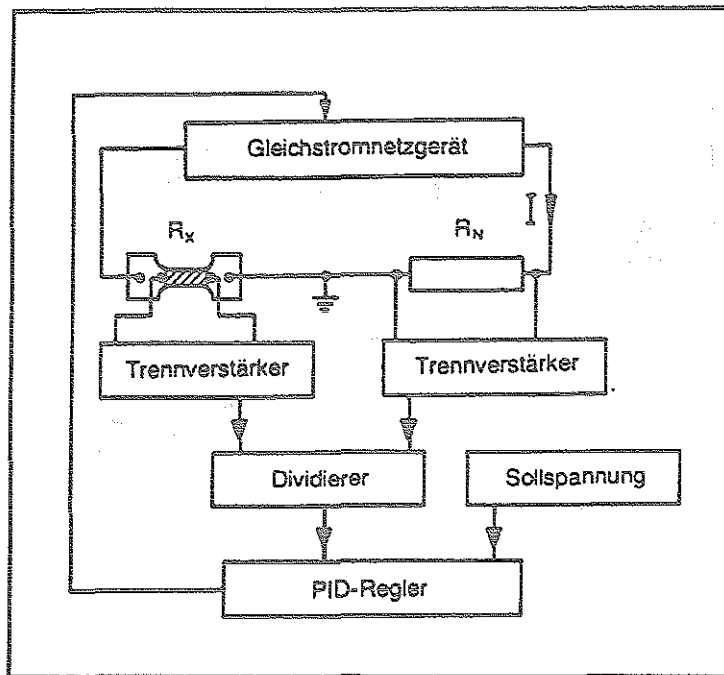


Abbildung 4.4: Schematische Darstellung der Probentemperaturregereinheit.

benoberfläche einzustellen. Die Unsicherheit in der Temperaturbestimmung im relevanten Probenbereich betrug $\pm 5^\circ\text{C}$. Da eine Oxidation der Probenoberfläche den Emissionsfaktor verändern, und somit die Temperaturmessung mittels des Pyrometers beeinflussen kann, wurde das extrem reine Heliumgas in einem Kühlkreislauf zusätzlich gekühlt sowie gereinigt. Der gesamte Heliumgas-Kreislauf [36, 37] ist in Abb. 4.5 dargestellt.

4.4 Transmissionselektronenmikroskopie

4.4.1 Probenpräparation

Nach der Implantation wurden zur Untersuchung in einem Transmissionselektronenmikroskop der Firma Philips (TEM-400, 120 keV Beschleunigungsspannung), aus den Probenstegen je eine Scheibe von 2.3 mm Durchmesser herausgestantzt. Damit

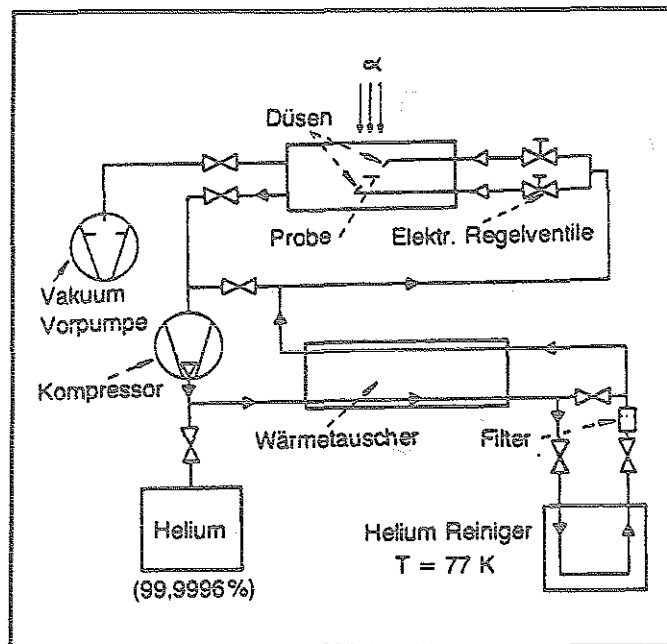
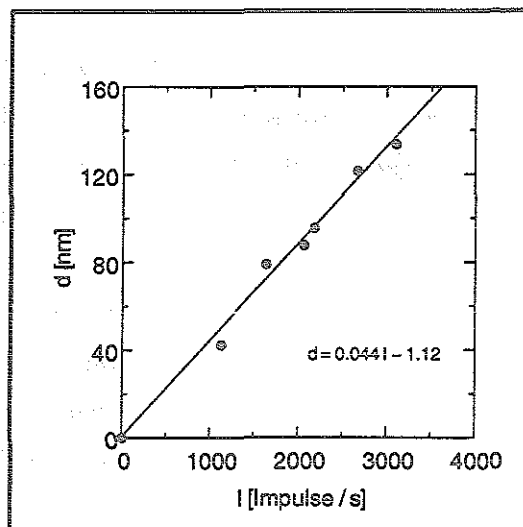


Abbildung 4.5: Schematische Darstellung des Heliumgas-Kreislaufs.

die Proben überhaupt untersucht werden konnten, mußte erst ein durchstrahlbarer Bereich geschaffen werden. Dazu wurden die Proben von beiden Seiten in einer elektrochemischen Polieranlage soweit abgedünnt, bis in der Mitte ein kleines Loch entstand. In der Nähe des Loches hat man dann einen keilförmig nach außen dicker werdenden Bereich, der von dem Elektronenstrahl des Mikroskops abgebildet werden kann. Die Wahl des richtigen Elektrolyten [40] und der richtigen Parameter während des Dünnvorgangs sind maßgebend für einen maximal großen Durchstrahlungsbereich. Mit der Beschleunigungsspannung von 120 keV des Mikroskops ist es möglich, eine maximale Probendicke von etwa 200 nm zu durchstrahlen.

4.4.2 Eichungen

Bevor mit Hilfe des Elektronenmikroskops Aufnahmen der Blasen gemacht werden, müssen einige Eichungen vorgenommen werden. Für die Vergrößerungseichung bis zu Vergrößerungen von 80000 wurde ein Kreuzgitter verwendet während für



Abbildungung 4.6: Eichkurve zur Dickenmessung nach der Methode der Röntgenfluoreszenz. d ist die Probendicke und I die Intensität der Gammaquanten.

höhere Vergrößerungen ein Katalase-Kristall mit bekannten Netzebenenabständen zur Verfügung stand.

Zur späteren Auswertung der Blasendichten ist neben der Vergrößerung, noch die Dicke der Proben an den photographierten Stellen zu ermitteln. Hierfür wurde das Röntgenstrahlenfluoreszenzverfahren [41] angewendet. Demnach sind die von der Probe in einen Halbleiterdetektor zurückgestreuten Gammaquanten, unter immer gleichen Bedingungen am Mikroskop, im wesentlichen der Probendicke d proportional. Die Eichung erfolgte mittels einer Probe, bei der eine geeignete Korngrenze vorhanden war, so daß an mehreren Stellen dieser Korngrenze Dickenmessungen nach den üblichen Verfahren (z.B. Projektionsmethode oder Streifenkontrastverfahren [42]) durchgeführt werden konnten. Die so gewonnene Eichkurve ist in Abb. 4.6 abgebildet. Während des Untersuchungszeitraums wurde diese Kurve mehrmals nachgemessen, sie änderte sich aber nicht.

4.4.3 Blasenauswertung

Von jeder Probe wurde in einem geeigneten Vergrößerungsbereich möglichst der gesamte durchstrahlbare Bereich mit Photos abgedeckt. Die Blasen wurden in den meisten Fällen unterfokussiert abgebildet [43] nur bei sehr hohen Vergrößerungen wurde zusätzlich auch eine Aufnahme in Überfokus gemacht, um die kleinen Blasen auf den Photos besser erkennen zu können. Bei einer unterfokussierten Abbildung erscheinen die Blasen hell mit einem dunklen Kreis als Begrenzung, und bei Überfokussierung als schwarze Kreise mit einem hellen Streifen als Begrenzung. Nach jedem Bild erfolgte eine Dickenmessung nach der im vorigen Abschnitt beschriebenen Methode. Es wurde darauf geachtet, daß die Bilder möglichst innerhalb eines Korns entstanden. Blasen an Korngrenzen sind in der Untersuchung nicht berücksichtigt worden. Zwischen Blasen an Versetzungen und in der reinen Matrix wurde dagegen keine Unterscheidung gemacht. Pro Probe wurden circa 30 Photos gemacht, die anschließend auf DIN A2 vergrößert wurden. Mit Hilfe eines halbautomatischen Größenanalysators, der an einen Rechner angeschlossen ist, erfolgte die Auswertung der Photos. Indem man einen Lichtfleck auf den Durchmesser jeder einzelnen Blase fokussiert, konnte sowohl ihre Größe als auch ihre Anzahl bestimmt werden. Pro Probe wurden mehr als 1000 Blasen gezählt und in einem Histogramm mit N_{KI} Klassen als Blasengrößenverteilungen angeordnet. Der mittlere Blasenradius $\bar{r}_B$ ergibt sich aus der Verteilung nach der Formel

$$\bar{r}_B = \frac{\sum_{i=1}^{N_{KI}} r_i N_i}{\sum_{i=1}^{N_{KI}} N_i} \quad (4.1)$$

r_i ist der mittlere Radius in der i -ten Klasse des Histogramms und N_i die Häufigkeit, mit der die Blasen in dieser Klasse vorkommen. Die Blasendichte schließlich läßt sich aus der Gesamtanzahl N_B^{tot} der Blasen, der photographierten Gesamtfläche sowie der gemessenen Probendicken bestimmen

$$C_B = \frac{N_B^{tot}}{V_{ges}} \quad (4.2)$$

V_{ges} stellt das gesamte untersuchte Probenvolumen dar. Aus den Werten des mittleren Blasenradius und der Blasendichte läßt sich eine untere Grenze nach

$$\Delta V = C_B \frac{4}{3} \pi \bar{r}_B^3 \quad (4.3)$$

für das Schwellen ΔV der Proben ausrechnen.

Systematische Fehler in der Auswertung treten hauptsächlich bei den höchsten und niedrigsten Vergrößerungen auf. Im ersteren Fall werden die Blasendichten unterschätzt, weil das Elektronenmikroskop nur ein endliches Auflösungsvermögen hat. Im zweiten Fall kann es passieren daß die Blasen schon durch die Oberfläche der Probe gestoßen sind und somit für die Radienbestimmung, als auch die Dichtebestimmung, nur noch bedingt geeignet sind. Bei facettierten Blasen gilt es zusätzlich den kreisförmigen Lichtstrahl flächengleich zu projizieren so daß ebenfalls die Radienbestimmung leidet. Ein anderer systematischer Fehler beim Auszählen der Blasen wird beim Fokussieren gemacht. Jede Person hat ein etwas anderes subjektives Empfinden und bringt den Leuchtfleck im Vergleich zu einer anderen Person immer etwas unterschiedlich mit den Blasen zur Deckung. Der wohl größte Fehler liegt in der Dickenbestimmung der Probe und damit bei der Blasendichtebestimmung. Die relativen statistischen Fehler werden als $\pm 5\%$ für die mittleren Blasenradien sowie $\pm 10\%$ für die Blasendichte angenommen.

4.5 Ergebnisse

Alle aufgenommenen Blasenverteilungen sind monomodal. In den Abbildungen 4.7 und 4.8 sind als Beispiel für die Heliumproduktionsrate von 9 appm/h für zwei Temperaturen, 700 K und 900 K, sowohl die Verteilungsfunktionen als auch je ein dazugehöriges Blasenbild gezeigt. Für Temperaturen höher als 700 K haben die Blasen eine kubische Form. Die Oberflächen sind parallel zu den $\{100\}$ -Ebenen des Metalls (Abb. 4.8b). Für tiefere Temperaturen verhindert das begrenzte Auflösungsvermögen des Elektronenmikroskops eine genaue Aussage über die Form der Blasen.

Die implantierte totale Heliumkonzentration c_{He}^{real} , die man aus den Blasenverteilungen mit Hilfe der realen Zustandsgleichung für Helium, Gl. (2.10), unter der Annahme von Gleichgewichtsblasen ausrechnen kann, ist in Abb. 4.9 für alle untersuchten Heliumproduktionsraten P_{He} eingetragen. Die zugehörigen Zahlenwerte finden sich, zusammen mit den Werten die nach der idealen Gasgleichung berechnet worden sind, in Anhang B tabellarisch aufgelistet. Man erkennt einen leichten Abfall von etwa 50 appm zu 25 appm mit steigender Temperatur. Als Mittelwert

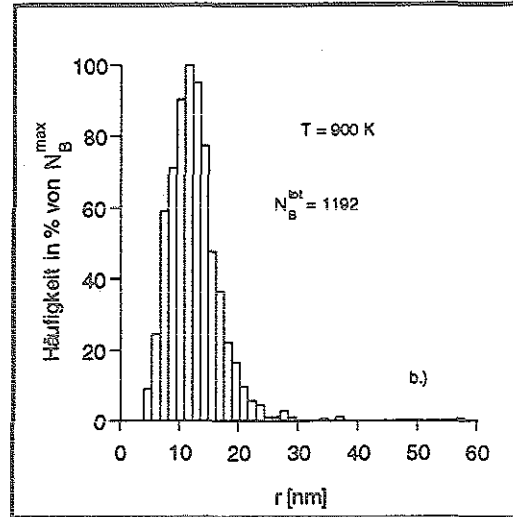
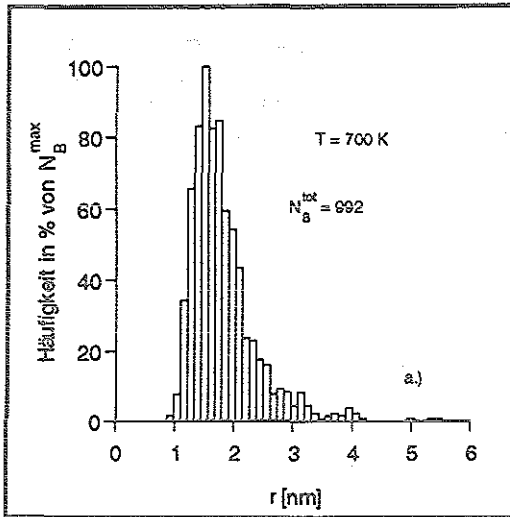


Abbildung 4.7: Verteilungsfunktionen bei einer Heliumproduktionsrate von $P_{He} = 9$ appm/h für zwei Temperaturen, a) 700 K und b) 900 K. N_B^{tot} ist die Gesamtanzahl der Blasen und N_B^{max} das Klassenmaximum.

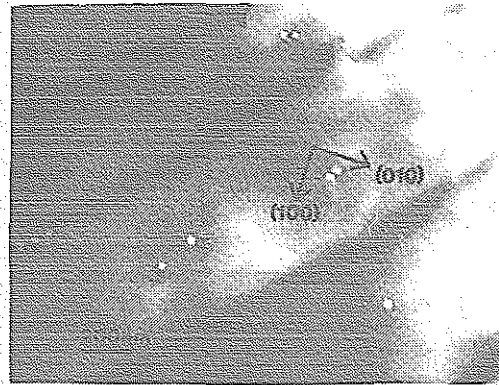
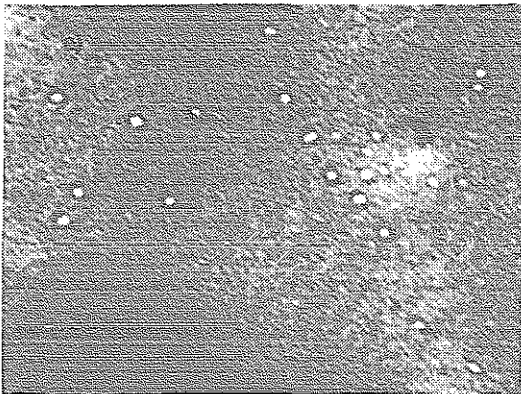


Abbildung 4.8: Zu den Verteilungsfunktionen aus Abb. 4.7 gehörige TEM-Bilder.

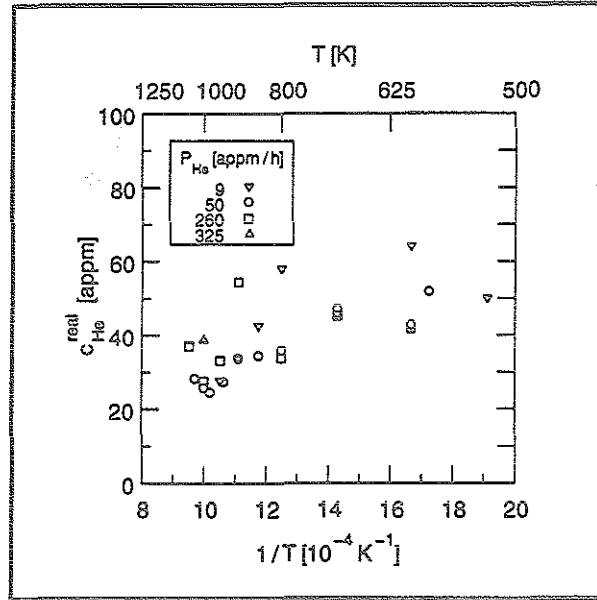


Abbildung 4.9: Implantierte totale Heliumkonzentration c_{He}^{real} berechnet aus den Verteilungsfunktionen nach der realen Zustandsgleichung für Helium in Gleichgewichtsblasen.

über alle Proben erhält man einen Wert von $\bar{c}_{He}^{real} = 40$ appm. Zum Vergleich sind in der folgenden Tabelle 4.2 für vier Proben der Heliumgehalt c_{He}^{des} angegeben, der sich durch Entgasungsmessungen [44] ergeben hat. Dabei werden die Proben zum Schmelzen gebracht und das entweichende Gas wird mittels eines Massenspektrometers nachgewiesen. Der Mittelwert der vier Proben beträgt $\bar{c}_{He}^{des} = 106$ appm. Auf den Unterschied in diesen Werten wird im nächsten Kapitel eingegangen.

In den beiden Abbildungen 4.10 und 4.11 sind die Temperaturabhängigkeiten für die Blasendichte C_B sowie den mittleren Blasenradius $\bar{r}_B$, wie sie sich nach den Gleichungen (4.2) und (4.1) aus den gemessenen Verteilungen ergeben, für alle untersuchten Proben abgebildet. Die numerischen Daten aller Meßreihen finden sich ebenfalls in Anhang B wieder. C_B und auch $\bar{r}_B$ sind in Arrheniusweise gegen $1/T$ aufgetragen. In beiden Fällen lassen sich zwei typische Bereiche unterscheiden. Ein Tieftemperaturbereich mit einer kleinen effektiven Aktivierungsenergie und ein Hochtemperaturbereich mit einer hohen effektiven Aktivierungsenergie. Paßt man

für alle Heliumproduktionsraten in den beiden Bereichen eine Arrheniusbeziehung der Form

$$y = y_0 \exp(-E_y^{act}/kT) \quad \text{mit} \quad y = \begin{cases} C_B \\ \bar{r}_B \end{cases} \quad (4.4)$$

an die Daten an, so erhält man die in der Tabelle 4.3 angegebenen Werte für die Aktivierungsenergien E_y^{act} und die Vorfaktoren y_0 . Mittelt man die Aktivierungsenergien jeweils über die drei Heliumproduktionsraten, so ergeben sich die folgenden Werte für den Hoch- bzw. Tieftemperaturbereich

$$(C_B): \quad \overline{E}_{C_B}^{act, hoch} = -2.30 \pm 0.13 \text{ eV} \quad (4.5)$$

$$(C_B): \quad \overline{E}_{C_B}^{act, tief} = -0.45 \pm 0.06 \text{ eV} \quad (4.6)$$

$$(\bar{r}_B): \quad \overline{E}_{\bar{r}_B}^{act, hoch} = 0.97 \pm 0.08 \text{ eV} \quad (4.7)$$

$$(\bar{r}_B): \quad \overline{E}_{\bar{r}_B}^{act, tief} = 0.16 \pm 0.01 \text{ eV} \quad (4.8)$$

Für die Übergangstemperaturen T_{tr} zwischen den zwei Regimen, berechnet als der Schnittpunkt der Geraden für die jeweilige Produktionsrate in den Abbildungen 4.10 und 4.11, ergeben sich die Werte der Tabelle 4.4. Die Übergangstemperatur nimmt also mit wachsender Heliumproduktionsrate P_{He} von etwa 800 K auf etwa 900 K zu.

Die zwei Temperaturbereiche manifestieren sich auch in der Produktionsratenabhängigkeit von C_B und $\bar{r}_B$. Trägt man die experimentellen Daten doppeltlogarithmisch auf, so erhält man die zwei Abbildungen 4.12 und 4.13. Die Steigungen der an die Daten angepaßten Geraden, die auch in den Abbildungen zu finden sind,

Tabelle 4.2: Heliumkonzentration in den Proben aus Entgasungsmessungen.

Probe	c_{He}^{des} [appm]
#11	112
#30	87
#38	106
#T1 ₂	117

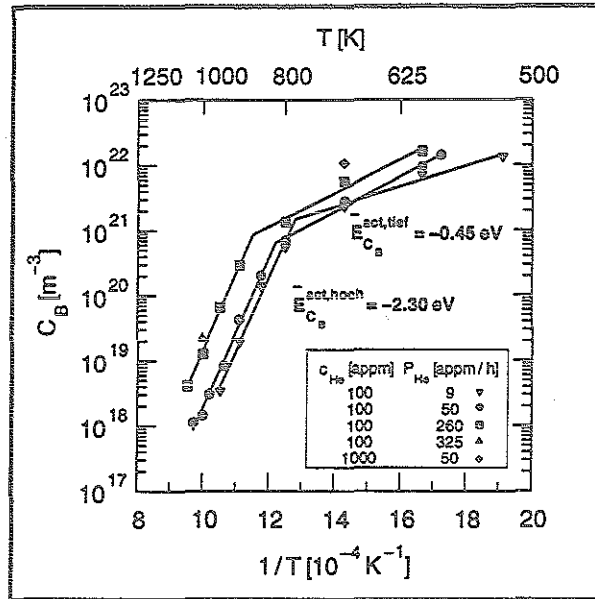


Abbildung 4.10: Temperaturabhängigkeit der Blasendichte C_B für die verschiedenen Heliumproduktionsraten.

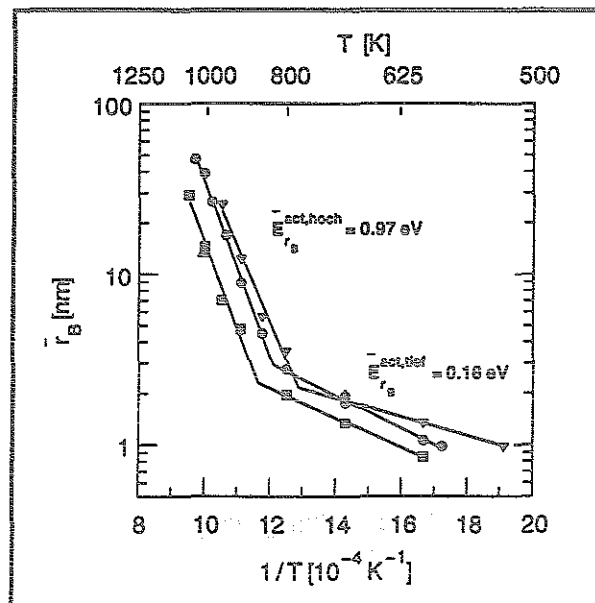


Abbildung 4.11: Temperaturabhängigkeit des mittleren Blasenradius $\bar{r}_B$ für die verschiedenen Heliumproduktionsraten. Symbole siehe Abb.4.10.

Tabelle 4.3: Aktivierungsenergien E_y^{act} und Vorfaktoren y_0 nach Fitten einer Arrheniusbeziehung an die Daten aus Abb. 4.10 und 4.11.

Bereich	P_{He} [appm/h]	C_{B_0} [m ⁻³]	$E_{C_B}^{act}$ [eV]	$\bar{r}_{B_0}$ [nm]	$E_{\bar{r}_B}^{act}$ [eV]
hoch	9	$4.74 \cdot 10^6$	-2.25	$1.05 \cdot 10^6$	0.88
hoch	50	$5.08 \cdot 10^6$	-2.29	$4.91 \cdot 10^6$	1.02
hoch	260	$2.14 \cdot 10^7$	-2.35	$1.67 \cdot 10^6$	1.00
tief	9	$1.49 \cdot 10^{19}$	-0.31	10.90	0.11
tief	50	$3.55 \cdot 10^{17}$	-0.53	41.65	0.19
tief	260	$9.70 \cdot 10^{17}$	-0.51	23.13	0.17

repräsentieren dabei die Exponenten einer Potenzabhängigkeit von C_B und $\bar{r}_B$ von der Heliumproduktionsrate P_{He} . Mittelt man die Steigungen in den jeweiligen Bereichen, so erhält man die folgenden Produktionsratenabhängigkeiten

$$(C_B) : C_B^{hoch} \propto P_{He}^{1.03 \pm 0.16} \quad (4.9)$$

$$(C_B) : C_B^{tief} \propto P_{He}^{0.25 \pm 0.07} \quad (4.10)$$

$$(\bar{r}_B) : \bar{r}_B^{hoch} \propto P_{He}^{-(0.42 \pm 0.04)} \quad (4.11)$$

$$(\bar{r}_B) : \bar{r}_B^{tief} \propto P_{He}^{-(0.14 \pm 0.02)} \quad (4.12)$$

Tabelle 4.4: Übergangstemperaturen T_{tr} in Abhängigkeit der Heliumproduktionsrate für C_B und $\bar{r}_B$.

T_{tr} [K]	(C_B)	$(\bar{r}_B)$
9	780	780
(P_{He}) 50	820	830
260	870	860

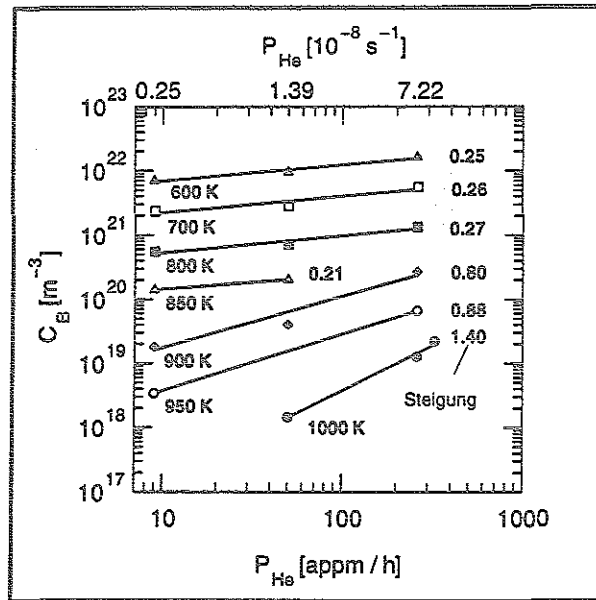


Abbildung 4.12: Produktionsratenabhängigkeit der Blasendichte C_B bei den gemessenen Temperaturen T .

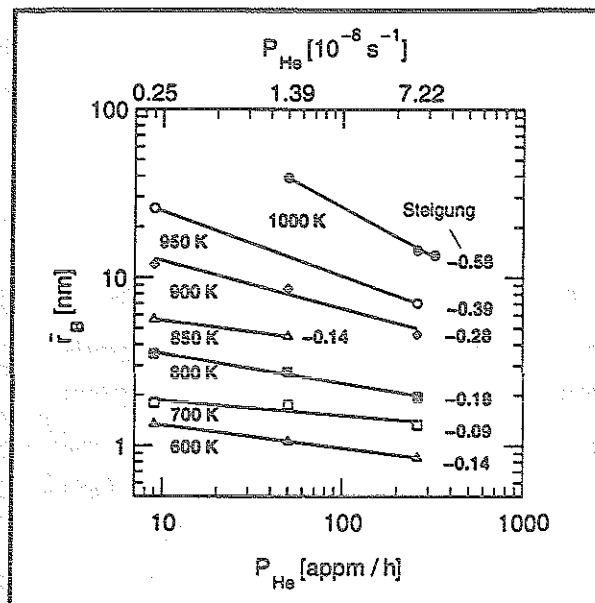


Abbildung 4.13: Produktionsratenabhängigkeit des mittleren Blasenradius $\bar{r}_B$ bei den gemessenen Temperaturen T .

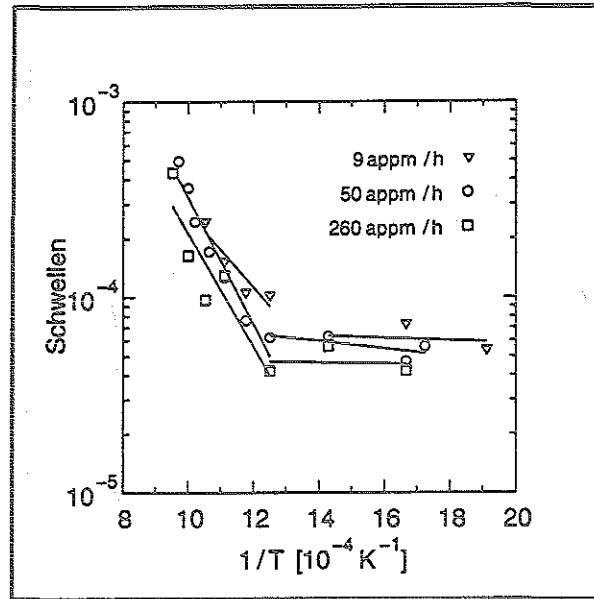


Abbildung 4.14: Schwellen der Proben in Abhängigkeit der Temperatur für die verschiedenen Heliumproduktionsraten.

Das Schwellen der Proben auf Grund der Akkumulation des Heliumgases in Blasen ist in Abb. 4.14 dargestellt. Die Werte sind nach Gl.(4.3) berechnet.

4.6 Diskussion

Nach den Werten für die insgesamt implantierte Heliumkonzentration c_{He}^{des} , die sich aus den Entgasungen ergeben haben (Tabelle 4.2), kann man davon ausgehen, daß wirklich $c_{He}^{tot} \approx 100$ appm Helium in den Proben vorhanden ist. Daß die aus den Blasenverteilungen berechneten Werte (Abb. 4.9) soweit unterhalb des nominellen Wertes liegen, hat andere Gründe, auf die weiter unten eingegangen wird (S. 61 und 63).

Um die Mechanismen zu identifizieren, die für die Blasenentstehung verantwortlich sind, bietet es sich an, die Diskussion für die zwei in Kapitel 4.5 beschriebenen Temperaturbereiche getrennt durchzuführen. Wie in Kapitel 2 beschrieben wurde, sollte bei tiefen Temperaturen der di-atomare Nukleationsmechanismus (2.5.2.1)

vorherrschen, während bei hohen Temperaturen der multi-atomare Nukleationsmechanismus (2.5.2.2) operativ sein sollte [10]. Da die Experimente unter Bestrahlungsbedingungen durchgeführt wurden, werden für die Heliumdiffusion der unter Bestrahlung beschleunigte Leerstellenmechanismus (2.4.1) und der Rekombinationsmechanismus (2.4.2) in Betracht gezogen. Der Heliumgaszustand in den Blasen wird dabei durch die folgenden zwei Extremfälle angenähert: (a) Gleichgewichtsblasen die ideales Gas enthalten und (b) Blasen die Heliumgas von konstanter Dichte enthalten.

4.6.1 Hochtemperaturbereich

Der die Blasendichte limitierende Prozeß im Hochtemperaturbereich sollte die thermische Dissoziation von Gasatomen aus den Blasen sein. Normalerweise würde man erwarten, daß bei Temperaturen von $T > 800$ K die Blasen in der Nähe des Gleichgewichtes sind. Um diese Vorstellungen zu testen, vergleichen wir die aus den gemessenen Aktivierungsenergien der Blasendichte C_B und des mittleren Blasenradius $\bar{r}_B$ unter Annahme von multi-atomarer Nukleation berechneten Dissoziationsenergien $E_{He_{exp}}^{Diss}$ eines Heliumatoms aus einer Blase, mit dem Literaturwert von $E_{He_{lit}}^{Diss} = 2.40$ eV [45], der aus Heliumdiffusionsexperimenten gewonnen wurde.

Nach Gl. (2.50) und (2.52) gelten für die Abhängigkeiten der Blasendichte C_B und des mittleren Blasenradius $\bar{r}_B$ von der Temperatur T und der Heliumproduktionsrate P_{He} unter Annahme von idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen die Ausdrücke $C_B \propto D_{He}^{eff-1} \hat{c}_{He}^{-1} P_{He}$ und $\bar{r}_B \propto (D_{He}^{eff} \hat{c}_{He} P_{He}^{-1})^{1/2}$. Mit $D_{He}^{eff} \hat{c}_{He} \propto \exp(-E_{He}^{Diss}/kT)$ folgen die in Tabelle 4.5 angegebenen Zusammenhänge. Die entsprechenden Abhängigkeiten unter Annahme einer konstanten Heliumdichte in den Gasblasen, Fall (b), sind ebenfalls angegeben. Die vollständigen asymptotischen Ausdrücke für C_B und $\bar{r}_B$ sind in Anhang C aufgeführt.

Wie man der Tabelle entnehmen kann, stimmt die Produktionsratenabhängigkeit für die Blasendichte ($\propto P_{He}^{1.03}$) sehr gut mit dem theoretischen Ausdruck von $\propto P_{He}$ überein, während die Abhängigkeit im Falle des mittleren Blasenradius keine eindeutige Schlußfolgerung auf den Gaszustand in den Blasen zuläßt, da der gemessene Exponent von -0.42 genau zwischen den theoretischen Werten für die beiden Extremfälle (a) und (b) liegt, nämlich -0.5 für (a) und -0.33 für (b).

Bei den Aktivierungsenergien kann man ähnliches feststellen. Auch hier stimmt die Dissoziationsenergie eines Heliumatoms aus einer Blase, wie sie aus der Aktivierungsenergie der Blasendichte folgt, nämlich 2.30 eV, sehr gut mit dem Literaturwert für die Dissoziation eines He-Atoms aus einer Leerstelle von 2.40 eV überein. Die aus der Temperaturabhängigkeit der Radien folgenden Werte lassen wieder keine eindeutige Schlußfolgerung auf den Gaszustand zu; er scheint aber zwischen den beiden Grenzfällen (a) und (b) zu liegen. Mittelt man alle erhaltenen Werte der Dissoziationsenergien für die beiden Gaszustände, so erhält man als Endergebnis

$$\overline{E}_{He_{exp}}^{Diss} = 2.4 \text{ eV.} \quad (4.13)$$

In Kaltimplantationsexperimenten bei anschließendem Tempern in Nickel [19] wurden Werte im Bereich zwischen 2.2 eV und 4.4 eV für die Dissoziationsenergie gefolgert. Diese Werte sind somit kompatibel mit dem in dieser Arbeit gefundenen Wert.

Da in dem Hochtemperaturbereich das Verhältnis C_B/P_{He} unabhängig von P_{He} sein sollte (siehe Gl. (2.50)), sind in Abb. 4.15 die gemessenen Hochtemperaturdaten (Fall I_h) für die Blasendichte C_B , normiert auf eine Heliumproduktionsrate von 1 appm s^{-1} , zusammen mit Daten aus Referenz [19, 20], wo Helium bei Raumtemperatur implantiert worden ist und anschließend getempert wurde (Fall I_c), aufgetragen. Im I_c -Fall erfolgte die Normierung auf eine effektive Produktionsrate $P_{He}^{eff} = c_{He}^{tot}/t_a$ mit t_a als Temperzeit. Aus Gl. (2.34) folgt nämlich für die Blasendichte [17, 32]

$$C_B \approx \frac{kT c_{He}^{tot}}{4\gamma v_{He} D_{He}^{eff} c_{He}^0 t_a \exp(\mu_{He}/kT)} \quad (4.14)$$

und somit sollte C_B/P_{He}^{eff} ebenfalls unabhängig von der Heliumproduktionsrate sein. Zusätzlich sind in Abb. 4.15 zum Vergleich auch die Resultate für kommerzielle Edeltähle (SS), wie in Referenz [17] gesammelt, eingetragen. Genau wie bei den Daten für SS verschmälert sich das Datenband aus Abb. 4.10 durch diese Normierungsprozedur; die Daten fallen fast alle auf eine Gerade. Die Werte für die Aktivierungsenergien für Nickel, die sich durch Arrheniusanpassungen ergeben (2.3 eV für I_c und 2.5 eV für I_h), liegen dabei etwas unterhalb der zugehörigen Werte für SS (2.8 eV für I_c und 2.7 eV für I_h).

Wie schon in Kapitel 2.5.2.1 erwähnt wurde, bezieht sich die Blasendichte $C_B(I_h)$ auf den embryonischen Blasen Zustand, während $C_B(I_c)$ den Blasen Zustand nach dem

Tabelle 4.5: Vergleich der aus dem Experiment folgenden Dissoziationsenergien E_{Heexp}^{Diss} und den Produktionsratenabhängigkeiten von C_B und $\bar{r}_B$ mit den Literaturwerten und den theoretischen Vorhersagen bei multi-atomarer Nukleation.

Multi-atomare Nukleation				
	(a) ideales Gas, Gleichgewichtsblasen		(b) konstante Gasdichte	
	C_B	$\bar{r}_B$	C_B	$\bar{r}_B$
$\propto$	$(D_{He}^{eff} \hat{c}_{He}^{cr})^{-1}$	$(D_{He}^{eff} \hat{c}_{He}^{cr})^{1/2}$	$(D_{He}^{eff} \hat{c}_{He}^{cr})^{-1}$	$(D_{He}^{eff} \hat{c}_{He}^{cr})^{1/3}$
Dissoziativer Mechanismus: $D_{He}^{eff} \hat{c}_{He}^{cr} \propto \exp(-E_{He}^{Diss}/kT)$				
$\Rightarrow$	$E_{C_B}^{act} = -E_{He}^{Diss}$	$E_{\bar{r}_B}^{act} = \frac{E_{He}^{Diss}}{2}$	$E_{C_B}^{act} = -E_{He}^{Diss}$	$E_{\bar{r}_B}^{act} = \frac{E_{He}^{Diss}}{3}$
	$\Downarrow$	$\Downarrow$	$\Downarrow$	$\Downarrow$
$E_{Heexp}^{Diss} =$	2.30 eV	1.94 eV	2.30 eV	2.91 eV
$E_{Helit}^{Diss} =$	2.40 eV			
	C_B	$\bar{r}_B$	C_B	$\bar{r}_B$
	P_{He}	$P_{He}^{-1/2}$	P_{He}	$P_{He}^{-1/3}$
Exp.	$P_{He}^{1.03}$	$P_{He}^{-0.42}$	$P_{He}^{1.03}$	$P_{He}^{-0.42}$

Tempern darstellt. Benutzt man c_{He}^{tot}/t_a als eine effektive Heliumimplantationsrate P_{He}^{eff} für den I_c -Fall, so reduziert sich das normierte Verhältnis $C_B(I_c)/C_B(I_h)$ auf eine Exponentialfunktion, die die Differenz der chemischen Potentiale in dem embryonischen Zustand und dem Endzustand enthält [17]. Aus den Gleichungen (2.50) und (4.14) folgt nämlich unter Berücksichtigung von $c_{He}^0 = \exp(-G_{He}^F/kT)$

$$\frac{C_B^c t_a / c_{He}^{tot}}{C_B^h / P_{He}} = \frac{\pi r_{cr} kT}{2 v_{He}^c \gamma} \exp[(\mu_{He}^{cr,h} - \mu_{He}^c)/kT]. \quad (4.15)$$

Das bedeutet, der Abstand der I_c - und I_h -Linien von $\approx 10^{2.5}$ für Nickel und $\approx 10^4$ für SS ist auf Druckunterschiede in den beiden verschiedenen Blasen Zuständen zurückzuführen, da das chemische Potential über die Zustandsgleichung von Helium Gl. (2.10) mit dem Druck verknüpft ist. Setzt man für $r_{cr} \approx 1$ nm, $v_{He}^c \approx \Omega \approx 10^{-29}$

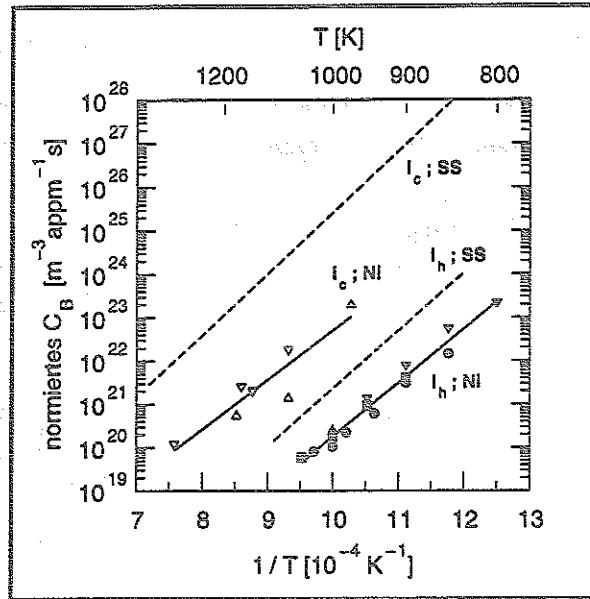


Abbildung 4.15: Temperaturabhängigkeit von C_B normiert auf eine Heliumproduktionsrate von 1 appm s^{-1} in Nickel und in kommerziellen Edelstählen (SS) (gestrichelte Linien aus Referenz [17]) unter verschiedenen Implantationsbedingungen: Kalt-Implantation gefolgt von Temperung I_c und Heiß-Implantation I_h . Die vollen Symbole sind aus dieser Arbeit und entsprechen den Symbolen aus Abb. 4.10. Die Symbole $\triangle$ entsprechen Werten aus Referenz [19] und die Symbole ∇ Werten aus Referenz [20].

m^3 und $\gamma = 2 \text{ N/m}$ in obige Formel ein und nimmt als typische Temperatur für den Hochtemperaturbereich $T = 1000 \text{ K}$ an, so erhält man für den Faktor vor der Exponentialfunktion einen Wert von ungefähr 1. Berücksichtigt man nun noch die reale Zustandsgleichung für Helium (siehe auch Abb. 2.2) und die Tatsache, daß der Druck in Blasen unter Temperung gegen einen Wert von ca. 3 GPa konvergiert [46], so erhält man Werte von $p_{\text{He}} \approx 10 \text{ GPa}$ in Blasenkeimen in Nickel. Dieser Wert ist etwas kleiner als der Wert von $p_{\text{He}} \approx 15 \text{ GPa}$, der für SS abgeschätzt wurde [17].

Die Tatsache, wie in der Diskussion der Temperatur- und Produktionsratenabhängigkeit ausgeführt, daß der Gaszustand in den Blasen im Hochtemperaturbereich nach dem Experiment nicht wie erwartet durch ideales Gasverhalten angenähert werden kann, deutet darauf hin, daß die Blasen unter Überdruck stehen.

Diese Vermutung wird auch durch die in den Proben enthaltene Heliumkonzentration c_{He}^{real} bestätigt, die nach der realen Gasgleichung unter Gleichgewichtsbedingung berechnet wurden (Tabelle in Anhang B). Diese liegen deutlich unter der Konzentration, die durch Ausgasung gemessen wurde.

4.6.2 Tieftemperaturbereich

Im Tieftemperaturbereich wird erwartet, daß selbst kleine Heliumcluster stabil sind (z.B. Di-Heliumcluster), so daß die sich einstellende Blasenstruktur entweder durch die Diffusion von einzelnen Gasatomen oder von kleinen Gasclustern limitiert wird, je nachdem welcher Prozeß der schnellere ist. Unter der Annahme des ersteren Falles (Di-atomare Nukleation), sind in Tabelle 4.6 sowohl für den Leerstellenmechanismus als auch für den Rekombinationsmechanismus die theoretischen Abhängigkeiten von der Temperatur T und der Heliumproduktionsrate P_{He} (siehe Kapitel 2.4.1, 2.4.2 sowie 2.5.2.1) für beide betrachteten Gaszustände angegeben (vollständige Ausdrücke für C_B und $\bar{\tau}_B$ sind ebenfalls in Anhang C aufgeführt).

Die aus den Aktivierungsenergien von C_B und $\bar{\tau}_B$ folgenden Werte für die Wanderungsenergie $E_{V_{exp}}^M$ einer Leerstelle in Nickel werden dabei mit dem Literaturwert von $E_{V_{int}}^M = 1.04$ eV [24] verglichen, um zwischen den beiden Diffusionsmechanismen unterscheiden zu können. Man findet, daß die Aktivierungsenergien im Falle des Rekombinationsmechanismus unter Annahme von konstanter Gasdichte in den Blasen konsistent mit dem Literaturwert von $E_{V_{int}}^M = 1.04$ eV sind. Dies folgt sowohl aus der Blasendichte ($E_{V_{exp}}^M = 1.05$ eV) als auch aus dem mittleren Blasenradius ($E_{V_{exp}}^M = 1.12$ eV). Die Werte die sich im Falle des Leerstellenmechanismus für die Wanderungsenergie E_V^M ergeben würden, liegen dagegen unakzeptabel hoch. Betrachtet man die Produktionsratenabhängigkeiten, so stimmt der Exponent, der aus $\bar{\tau}_B$ für den Rekombinationsmechanismus und den Fall (b) folgt, nämlich -0.14 , mit dem theoretischen Wert überein, während der Exponent von 0.43 aus C_B von dem theoretischen Wert von 0.25 abweicht. Einzig und alleine die gemessene Ratenabhängigkeit von C_B und $\bar{\tau}_B$ würden den Leerstellenmechanismus favorisieren, aber auf Grund der limitierten Genauigkeit in der Messung von C_B und $\bar{\tau}_B$ ist der abgedeckte Produktionsratenbereich zwischen 9 appm/h und 260 appm/h immer noch viel zu eng, um nur aus der Ratenabhängigkeit der beiden verlässliche Aussagen

Tabelle 4.6: Vergleich der aus dem Experiment folgenden Wanderungsenergien $E_{V_{exp}}^M$ und den Produktionsratenabhängigkeiten von C_B und $\bar{r}_B$ mit den Literaturwerten und theoretischen Vorhersagen bei di-atomarer Nukleation.

Di-atomare Nukleation				
$\propto$	(a) ideales Gas, Gleichgewichtsblasen		(b) konstante Gasdichte	
	C_B $(D_{He}^{eff-1} P_{He})^{1/2}$	$\bar{r}_B$ $(D_{He}^{eff} P_{He}^{-1})^{1/4}$	C_B $(D_{He}^{eff-1} P_{He})^{3/7}$	$\bar{r}_B$ $(D_{He}^{eff} P_{He}^{-1})^{1/7}$
Leerstellenmechanismus: $D_{He}^{eff} = D_V c_V$ $c_V \propto (P_{He}/D_V)^{1/2}$				
$\Rightarrow \propto$	$D_V^{-1/4}$	$D_V^{1/8}$	$D_V^{-3/14}$	$D_V^{1/14}$
$\Rightarrow$	$E_{C_B}^{act} = -\frac{E_V^M}{4}$	$E_{\bar{r}_B}^{act} = \frac{E_V^M}{8}$	$E_{C_B}^{act} = -\frac{3E_V^M}{14}$	$E_{\bar{r}_B}^{act} = \frac{E_V^M}{14}$
	$\Downarrow$	$\Downarrow$	$\Downarrow$	$\Downarrow$
$E_{V_{exp}}^M =$	1.80 eV	1.28 eV	2.10 eV	2.24 eV
$E_{V_{lit}}^M =$	1.04 eV			
$\propto$	C_B $P_{He}^{1/4}$	$\bar{r}_B$ $P_{He}^{-1/8}$	C_B $P_{He}^{3/14}$	$\bar{r}_B$ $P_{He}^{-1/14}$
Exp.	$P_{He}^{0.25}$	$P_{He}^{-0.14}$	$P_{He}^{0.25}$	$P_{He}^{-0.14}$
Rekombinationsmechanismus: $D_{He}^{eff} = D_V$ $D_V = \exp(-E_V^M/kT)$				
$\Rightarrow \propto$	$D_V^{-1/2}$	$D_V^{1/4}$	$D_V^{-3/7}$	$D_V^{1/7}$
$\Rightarrow$	$E_{C_B}^{act} = -\frac{E_V^M}{2}$	$E_{\bar{r}_B}^{act} = \frac{E_V^M}{4}$	$E_{C_B}^{act} = -\frac{3E_V^M}{7}$	$E_{\bar{r}_B}^{act} = \frac{E_V^M}{7}$
	$\Downarrow$	$\Downarrow$	$\Downarrow$	$\Downarrow$
$E_{V_{exp}}^M =$	0.90 eV	0.64 eV	1.05 eV	1.12 eV
$E_{V_{lit}}^M =$	1.04 eV			
$\propto$	C_B $P_{He}^{1/2}$	$\bar{r}_B$ $P_{He}^{-1/4}$	C_B $P_{He}^{3/7}$	$\bar{r}_B$ $P_{He}^{-1/7}$
Exp.	$P_{He}^{0.25}$	$P_{He}^{-0.14}$	$P_{He}^{0.25}$	$P_{He}^{-0.14}$

machen zu können. Wir folgern daraus, daß der Rekombinationsmechanismus der zu Grunde liegende Diffusionsmechanismus ist. Durch Mittelung der beiden Werte für $E_{V_{exp}}^M$ erhält man

$$\overline{E}_{V_{exp}}^M = 1.1 \text{ eV} \quad (4.16)$$

Der Mechanismus der Rekombination einer von einem Heliumatom besetzten Leerstelle mit einem Zwischengitteratom wurde auch im Falle von Heiß-Implantation in Aluminium [21] als der dominierende identifiziert.

Auch im Tieftemperaturbereich stimmt nach der Tabelle im Anhang B die aus der realen Gasgleichung unter Gleichgewichtsbedingung berechnete insgesamt implantierte Heliumkonzentration c_{He}^{real} nicht mit der bei der Entgasung bestimmten überein, was wiederum auf Überdruckblasen hinweist. In diesem Fall spricht einiges für Überdruckblasen, da sowohl die Temperaturabhängigkeit als auch die Produktionsratenabhängigkeit auf den Gaszustand (b) hinweisen, nämlich auf Heliumgas unter konstanter Dichte. Ein weiterer Hinweis folgt nach Abb. 4.14 aus den Daten für das Schwellen. In diesem Bereich ist das Schwellen der Proben nahezu unabhängig von der Temperatur, was im Idealfall nur für Blasen gilt, die Gas unter konstanter Dichte enthalten.

Der Übergang zwischen den Gebieten von di-atomarer Nukleation zu multi-atomarer Nukleation sollte stattfinden, wenn die Dissoziationsrate eines zweiatomigen Clusters vergleichbar mit seiner Gasabsorptionsrate wird. Nach [17] gilt für die Übergangstemperatur T_{tr}

$$T_{tr} \propto \ln^{-1}(P_{He}^{-1}), \quad (4.17)$$

wie man durch Elimination der Blasendichten C_B aus den Gleichungen (2.45) und (2.50) erhält. Sie steigt also mit wachsender Heliumproduktionsrate an. Dieses Verhalten wird qualitativ durch die Werte aus Tabelle 4.4 bestätigt.

Zum Schluß soll noch getestet werden, ob auch die Absolutwerte der gemessenen Blasendichten bzw. mittleren Blasenradien realistisch sind. Exemplarisch wird dies am Beispiel der Meßreihe mit $P_{He} = 50 \text{ appm/h}$ für die Blasendichte C_B durchgeführt. Wie in den Kapiteln 2.5.2.1 und 2.5.2.2 ausgeführt wurde, sollte die Endblasendichte zwischen dem Wert der Blasendichte im Nukleationsmaximum C_B^* und dem asymptotischen Wert C_B liegen. Benutzt man für den Fall der di-atomaren

Tabelle 4.7: Tabelle der in der Diskussion benutzten Zahlenwerte.

Größe	Zahlenwert	Einheit
Ω	10.94	$\text{\AA}^3$
$\rho_{He} = \Omega^{-1}$	0.91	$\text{\AA}^{-3}$
r_0	1	nm
r_F	1	nm
κ	100	
c_{He}^{tot}	100	appm
P_{He}	50	appm/h
$D_V = D_{0V} \exp(-E_V^M/kT)$		m^2/s
D_{0V}	$0.92 \cdot 10^{-4}$	m^2/s
E_V^M	1.04	eV
γ	2	N/m
$D_{sd} = D_{0sd} \exp(-E_{sd}/kT)$		m^2/s
D_{0sd}	$8 \cdot 10^{-8}$	m^2/s
E_{sd}	0.8	eV
D_{0He}	$6.3 \cdot 10^{-7}$	m^2/s

Nukleation unter konstanter Gasdichte und des Rekombinationsmechanismus die Gleichung (2.40) mit $D_{He}^{eff} = D_V$ für C_B^* und Gl. (C.13) aus dem Anhang für C_B und setzt die Zahlenwerte aus Tabelle 4.7 ein, so ergeben sich die beiden gestrichelten Geraden in Abb. 4.16. Man erkennt, daß alle Meßwerte zwischen diesen beiden Geraden liegen. Rechnet man dagegen C_B für den Fall des Leerstellenmechanismus aus, so ergibt sich die gepunktete Gerade, die um Größenordnungen von den Meßwerten abweicht. D.h. man kann den Leerstellenmechanismus als den die Blasendichte limitierenden Diffusionsmechanismus auch auf Grund der Absolutwerte der Messungen ausschließen. Führt man dieselben Rechnungen für den Fall des idealen Gasverhaltens in Gleichgewichtsblasen durch (Gleichungen siehe Anhang D), so erhält man immer Geraden, die oberhalb der entsprechenden für konstante Gasdichte liegen. Das bedeutet, wie schon bei der Diskussion der Temperaturabhängigkeit ge-

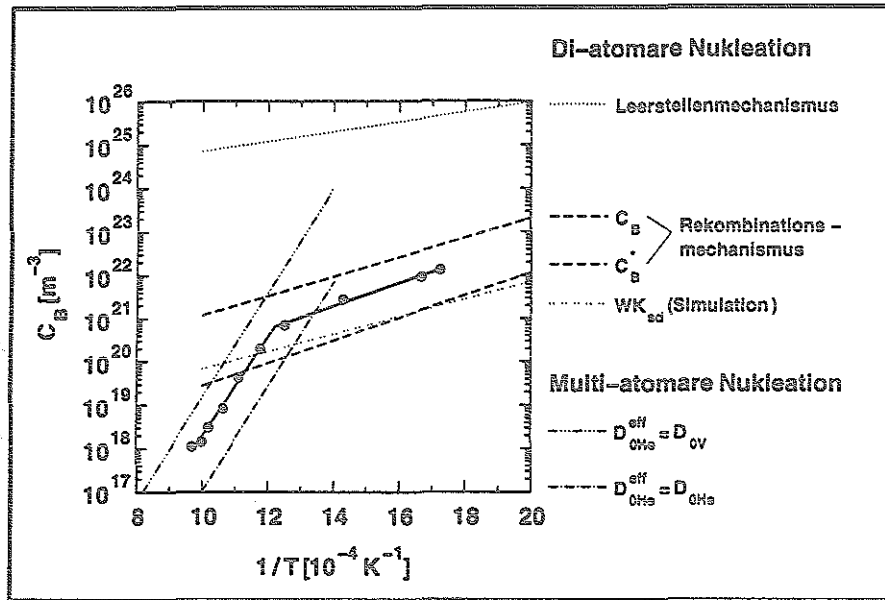


Abbildung 4.16: Vergleich der gemessenen Absolutwerte der Blasendichte C_B mit Extremfällen.

funden wurde, daß der Blasenzustand im Tieftemperaturbereich auf keinen Fall durch ideales Gas angenähert werden kann.

Um zu untersuchen, ob die Wanderung der Blasen auf Grund von Oberflächendiffusion (WK_{sd}) eine limitierende Rolle spielt, bei konstanter Gasdichte in den Blasen, ist in Abb. 4.16 im Tieftemperaturbereich die aus der Simulation folgende Blasendichteabhängigkeit als doppelt-punktierte Linie eingezeichnet. Für den Oberflächendiffusionskoeffizient D_{sd} wurde dabei die Beziehung

$$D_{sd} = D_{0sd} \exp(-E_{sd}/kT) \quad (4.18)$$

benutzt, mit D_{0sd} als Vorfaktor und E_{sd} als Aktivierungsenergie. Die Literaturwerte für D_{0sd} und E_{sd} (Tabelle 4.7) sind der Referenz [47] entnommen. Man erkennt, daß der Wanderungsmechanismus Werte für die Blasendichte C_B liefert, die etwa eine Größenordnung unterhalb der gemessenen Daten liegen, so daß er auch ausgeschlossen werden kann. Außerdem sollte die Blasenwanderung wie in [32] gezeigt wurde, bei den hohen Drücken in den Blasen weitgehend unterdrückt sein. Dies sollte auch noch in dem Hochtemperaturbereich gelten, wie die Werte der Drücke in den kleinen

Blasen vermuten lassen.

Die letzten zwei strich-punktierten Kurven im Hochtemperaturbereich in Abb. 4.16 sind nach Gl. (2.50) berechnet worden, wobei für $D_{He}^{eff} \hat{c}_{He}^{cr}$ nach Gl. (2.51) folgende Beziehung benutzt wurde

$$D_{He}^{eff} \hat{c}_{He}^{cr} = D_{0He}^{eff} \exp(-E_{He}^{Diss}/kT), \quad (4.19)$$

mit D_{0He}^{eff} als Vorfaktor. Da dieser Vorfaktor nicht genau bekannt ist, werden zwei plausible Werte als Näherung verwendet; einmal der Vorfaktor $D_{0V} = 0.92 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2/\text{s}$ für die Leerstellendiffusion im Metall und zum anderen der Vorfaktor aus der allgemeinen Beziehung für Heliumdiffusion in Nickel [45], $D_{0He} = 6.3 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$. Die dreifach strich-punktierte Kurve wurde dabei mit $D_{0He}^{eff} = D_{0V}$ und die einfach strich-punktierte Kurve mit $D_{0He}^{eff} = D_{0He}$ aufgetragen. Die kritische Clustergröße r_{cr} wurde unter der Annahme berechnet, daß die Cluster aus 10 Leerstellen bestehen ($\approx 10\Omega$) [27]. Die gemessenen Blasendichten liegen genau zwischen den Werten, die aus obigen Annahmen folgen. Bedenkt man, die relativ große Unsicherheit in der Bestimmung von Vorfaktoren, so sind die gemessenen Werte plausibel.

Normalerweise sollte man unter Heiß-Implantationsbedingungen für große Zeiten eine Sättigung der Blasendichte erwarten, solange die direkte Verlagerung von Heliumatomen aus den Blasen zu vernachlässigen ist. Wie man aus Abb. 4.10 für die zwei Meßwerte bei $T = 700 \text{ K}$ und einer Heliumproduktionsrate von $P_{He} = 50 \text{ appm/h}$ für die zwei implantierten Heliumkonzentrationen von 100 bzw. 1000 appm erkennt, erfolgt immer noch ein Anstieg der Blasendichte. Dieses Phänomen ist nicht verstanden, aber die Statistik bei nur einem Meßpunkt läßt auch keine verlässliche Aussage zu.

Kapitel 5

Zusammenfassung

Helium hat als Edelgas eine extrem geringe Löslichkeit in Metallen. Die daraus resultierende Tendenz, sich bei höheren Temperaturen in Form von Gasblasen auszuscheiden, hat für die Fusionstechnologie Konsequenzen. Es müssen Materialien entwickelt werden, speziell für die innerste Wand zukünftiger Reaktoren, die gegen Schwellen oder auch Verspröden, als Folge der Heliumblasen, resistent sind. Unter anderem ist dafür ein detailliertes Verständnis der Vorgänge, die zur Entwicklung von Heliumblasen bei höheren Temperaturen führen, notwendige Voraussetzung.

In der vorliegenden Arbeit wurde im ersten Teil eine Simulationsstudie auf der Basis von Smoluchowskis Koagulationsgleichungen zur Wanderung und Koagulation von Gasblasen, die neben der Ostwald-Reifung eine der beiden Hauptvergrößerungsmechanismen darstellt, durchgeführt. Dies erfolgte sowohl unter der experimentellen Bedingung, daß die Vergrößerung (A) bei konstantem Gasgehalt im Metall unter erhöhten Temperaturen vor sich geht (nach Implantation von Helium bei Raumtemperatur), als auch (B) unter konstanter Gasproduktion bei höheren Temperaturen (Heißimplantation). Für die Bewegung der Blasen wurde angenommen, daß sie entweder durch Oberflächendiffusion, durch Volumendiffusion oder aber durch Diffusion durch die Gasphase von auf der Oberfläche der Blasen sitzenden Metallatomen verursacht wird. Der Gaszustand in den Blasen wurde durch die zwei Extremfälle (a) ideales Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen sowie (b) Blasen mit Gas unter konstanter Dichte angenähert. Durch Einführung von normierten Größen konnte das Differentialgleichungssystem dimensionslos geschrieben werden. Die Anzahl der

zu berücksichtigenden Ratengleichungen konnte ebenfalls durch geeignete Repopulationsverfahren für die zwei Fälle beschränkt werden. Die Integrationen ergaben die zeitliche Entwicklung der Blasengrößenverteilungen, aus denen wiederum für das Experiment wichtige Größen wie Blasendichten C_B und mittlere Blasenradien $\bar{r}_B$ folgten. Die wesentlichen Ergebnisse der Rechnungen sind im folgenden kurz aufgeführt:

- In allen gerechneten Fällen sind die Blasengrößenverteilungen monomodal. Im Falle des konstanten Gasgehalts (A) entwickeln sich asymptotisch selbstähnliche (forminvariante) Verteilungsfunktionen, während bei (B) kein Skalenverhalten vorliegt und für lange Zeiten die Wachstumsrate gegenüber der Verbreiterungsrate überwiegt. Die Form der Verteilungen ist bei (A) umgekehrt wie die theoretischen zur Ostwald-Reifung. Die Verteilungen steigen bei kleinen Blasengrößen steil an und fallen nach einem Maximum wieder langsam ab. Im Fall (B) erhält man fast symmetrische Verteilungen.
- Im Falle des konstanten Gasgehalts (A) kann man auf Grund des Skalenverhaltens normierte Standardverteilungen für die verschiedenen Wanderungsmechanismen und die zwei betrachteten Gaszustände angeben. Die Form der Verteilungen sind in allen Fällen so ähnlich, daß man aus experimentell gemessenen Verteilungen keine Rückschlüsse auf den zu Grunde liegenden Diffusionsmechanismus ziehen kann.
- Die asymptotischen Zeitabhängigkeiten der Blasendichte sowie des mittleren Blasenradius im Falle (A) folgen einfachen Potenzgesetzen, dabei ist die Zuordnung zwischen den Potenzen und den Diffusionsmechanismen, in Abhängigkeit des Gaszustandes nicht eindeutig, so daß auch hieraus keine definitiven Schlüsse zur Interpretation experimenteller Daten gezogen werden können. Die Zeitexponenten bei Vergrößerung durch Ostwald-Reifung, decken zudem auch denselben Bereich ab, falls eine reale Gasgleichung bei der Berechnung verwendet wird.
- Im Falle (B) ist die berechnete Blasendichte für die Zeiten, bis zu denen die Simulation durchgeführt wurde, nur im Falle der Oberflächendiffusion für Blasen, die ideales Gas im Gleichgewicht enthalten, in der Asymptotik. Es erfolgt

eine Sättigung, während in allen anderen Fällen die Blasendichte noch weiter langsam abnimmt, im Gegensatz zu (A), wo die Abnahme relativ schnell erfolgt.

- Nur für den Spezialfall, der ebenfalls simuliert wurde, nämlich daß alle Gascluster mit mehr als zwei Gasatomen unbeweglich sind (Di-atomarer Keimbildungsmechanismus), ist eine Zunahme in der Blasendichte unter konstanter Gasproduktion zu verzeichnen. Die asymptotischen Zeitabhängigkeiten für die Gaszustände (a) und (b) stimmen dabei recht gut mit theoretischen Abschätzungen überein.
- Unter der Annahme, daß die Oberflächendiffusion von Metallatomen 10 mal schneller ist als die Diffusion von einzelnen Gasatomen (denkbar, wenn die Gasatomdiffusion über den langsamen Leerstellenmechanismus verläuft), erhält man im Vergleich zur normalen Oberflächendiffusion eine Absenkung der Blasendichte um einen Faktor von ungefähr 2, ebenfalls in Übereinstimmung mit kürzlich durchgeführten asymptotischen Abschätzungen.

Im zweiten Teil der Arbeit wurde die Blasenentwicklung in hochreinem Nickel nach Heliumimplantation mit konstanter Produktionsrate bei höheren Temperaturen mit Hilfe eines Transmissionselektronenmikroskops untersucht. Die Experimente entsprechen also dem Fall (B) der Simulation. Für drei verschiedene Heliumproduktionsraten (9, 50 und 260 appm h^{-1}) wurde die Temperatur in einem Bereich zwischen 523 K und 1050 K variiert. Die insgesamt implantierte Heliumkonzentration betrug dabei nominell 100 appm. Eine Auszählung der photographierten Heliumblasen mittels eines halbautomatischen Größenanalysators lieferte Histogramme der Blasengrößenverteilung für die 33 Proben. Die Zählstatistik wurde so hoch gewählt, daß die relativen Fehler für die aus den Verteilungen berechneten Blasendichten sowie mittleren Blasenradien 10% bzw. 5% betrugen. Die Schlußfolgerungen, die aus den Daten dieser Experimente gezogen wurden, sind im folgenden ebenfalls kurz zusammengefaßt.

- Alle ausgewerteten Blasenverteilungen sind monomodal.
- Für Temperaturen $T > 700$ K haben die Blasen eine kubische Form und die Oberflächen des Kubus verlaufen parallel zu den $\{100\}$ -Ebenen des Metalls.

- Die gemessenen Blasendichten und mittleren Blasenradien zeigen in zwei deutlich unterscheidbaren Temperaturbereichen jeweils ein Arrheniusverhalten, in einem Tieftemperaturbereich mit kleinen Aktivierungsenergien und in einem Hochtemperaturbereich mit hohen Aktivierungsenergien. Die Übergangstemperatur zwischen den zwei Gebieten nimmt mit wachsender Heliumproduktionsrate zu, wie nach theoretischen Vorhersagen zu erwarten ist.
- Im Hochtemperaturbereich ist der multi-atomare Keimbildungsmechanismus als der die Blasendichte bestimmende Prozeß identifiziert worden. Dies folgt sowohl aus den Aktivierungsenergien der Blasendichte und des mittleren Blasenradius als auch aus den gemessenen Produktionsratenabhängigkeiten der beiden Meßgrößen. Aus den gemessenen Aktivierungsenergien läßt sich ein Wert für die Dissoziationsenergie eines Heliumatoms aus einer Leerstelle ableiten, der hervorragend mit dem Literaturwert von $E_{He_{lit}}^{Diss} = 2.4 \text{ eV}$ übereinstimmt:

$$\overline{E}_{He_{exp}}^{Diss} = 2.4 \text{ eV}$$

- Im Tieftemperaturbereich folgt aus den gemessenen Aktivierungsenergien und den Produktionsratenabhängigkeiten, daß der die Blasenentwicklung bestimmende Prozeß die Diffusion von Heliumgas über den Rekombinationsmechanismus ist, wobei ein Zwischengitteratom mit einer von einem Heliumatom besetzten Leerstelle rekombiniert. Aus den Aktivierungsenergien von C_B und $\overline{r}_B$ kann auf eine Energie von

$$\overline{E}_{V_{exp}}^M = 1.1 \text{ eV}$$

für die Wanderungsenergie einer Leerstelle geschlossen werden, wobei dieser Wert ebenfalls in sehr guter Übereinstimmung mit dem Literaturwert von $E_{V_{lit}}^M = 1.04 \text{ eV}$ ist. Diffusion von Helium über den Leerstellenmechanismus kann ausgeschlossen werden.

- Aus dem Vergleich der Hochtemperaturdaten für die auf eine Heliumproduktionsrate von 1 appm s^{-1} normierte Blasendichte mit Daten für Nickel aus Experimenten des Typs (A) kann auf sehr hohe Drücke von ca. 10 GPa geschlossen werden, die in Blasenkeimen herrschen müssen. Diese Werte liegen

in der gleichen Größenordnung wie die Drücke, die mittels einer realen Zustandsgleichung für Helium aus experimentellen Daten für Edelstahl gefolgert wurden (ca. 15 GPa).

- Die Absolutwerte der gemessenen Blasendichten und mittleren Blasenradien liegen im Vergleich mit den für die oben identifizierten Mechanismen zu erwartenden Werte, in der richtigen Größenordnung. Blasenwanderung über Oberflächendiffusion sowie Heliumdiffusion über den Leerstellenmechanismus können auf Grund der Absolutwerte als die Blasendichte limitierende Prozesse ausgeschlossen werden.
- Im Tieftemperaturbereich folgt sowohl aus der Temperatur- und Produktionsratenabhängigkeit als auch aus den Daten für das Schwellen der Probe und den mittels einer realen Gasgleichung für Helium berechneten implantierten Gesamtkonzentrationen, daß die Heliumblasen einen Überdruck aufweisen müssen. Aus letzteren Daten folgt dies auch für Blasen im Hochtemperaturbereich.

Anhang A

Differentialgleichungen bei Repopulation

Bei gegebener Repopulationstufe r ($r = 0, \dots$) und fester Klassenzahl N werden die neuen Konzentrationen in Klasse i durch geeignete Kombination aus den Klassen der Verteilungsfunktion vor der Repopulation gebildet. Man kann den Repopulationsprozeß durch Einführen des Repopulationsoperators $\mathcal{R}$ formal folgendermaßen beschreiben

$$\zeta_i(r) = \mathcal{R}\{\zeta_i(r-1)\} \quad i = 1, \dots, N \quad (\text{A.1})$$

Die Anzahl der Gasatome pro Klasse werden dann abhängig von r

$$n_i = n_i(r) \quad i = 1, \dots, N \quad (\text{A.2})$$

und das Differentialgleichungssystem muß entsprechend umgeschrieben werden.

$$\dot{\zeta}_i(r) = \mathcal{R}\{\dot{\zeta}_i(r)\} \quad i = 1, \dots, N \quad (\text{A.3})$$

Das Repopulationsverfahren ist so gemacht, daß die Gesamtmasse in dem System erhalten bleibt.

A.1 Konstanter Gasgehalt

Unter konstantem Gasgehalt gelten bei fester Klassenzahl N in Abhängigkeit der Repopulation r die folgenden Gleichungen:

- Gasatome pro Klasse für $r \geq 0$:

$$n_i(r) = 2^r \cdot i \quad i = 1, \dots, N \quad (\text{A.4})$$

- Anfangsbedingung:

$$\zeta_i(r=0) = \delta_{1i} \quad i = 1, \dots, N \quad (\text{A.5})$$

- Repopulation für $r \geq 1$:

$$\begin{aligned} \zeta_i(r) &= \zeta_{2i}(r-1) + \frac{1}{2}[\zeta_{2i-1}(r-1) + \zeta_{2i+1}(r-1)] & i = 1, \dots, \frac{N}{2} - 1 \\ \zeta_i(r) &= \zeta_N(r-1) + \frac{1}{2}\zeta_{N-1}(r-1) & i = \frac{N}{2} \\ \zeta_i(r) &= 0 & i = \frac{N}{2} + 1, \dots, N \end{aligned} \quad (\text{A.6})$$

- Differentialgleichungen für $r \geq 0$:

$$\dot{\zeta}_i(r) = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{i-1} \kappa_{j,i-j} \zeta_j(r) \zeta_{i-j}(r) - \zeta_i(r) \sum_{j=1}^N \kappa_{ij} \zeta_j(r) \quad i = 1, \dots, N \quad (\text{A.7})$$

- Rücktransformierte Verteilungsfunktion für $r \geq 0$:

$$\zeta_i = \frac{\zeta_i(r)}{2^r} \quad i = 1, \dots, N \quad (\text{A.8})$$

A.2 Konstante Gasproduktion

Unter konstanter Gasproduktion gelten bei fester Klassenzahl N in Abhängigkeit der Repopulation r die folgenden Gleichungen:

- Gasatome pro Klasse für $r \geq 0$:

$$n_i(r) = \begin{cases} 2^{i-1} & i = 1, \dots, r+2 \\ (i-r) \cdot 2^r & i = r+3, \dots, N \end{cases} \quad (\text{A.9})$$

- Anfangsbedingung:

$$\zeta_i(r=0) = 0 \quad i = 1, \dots, N \quad (\text{A.10})$$

• Repopulation:

Für $r \leq N - 1$ gilt:

$$\begin{aligned} \zeta_i(r) &= \zeta_i(r-1) & i &= 1, \dots, r \\ \zeta_i(r) &= \zeta_{r+1}(r-1) + \frac{1}{2}\zeta_{r+2}(r-1) & i &= r+1 \\ & & (r &\leq N-2) \\ \zeta_{r+i}(r) &= \zeta_{r+(2i-1)}(r-1) + \frac{1}{2}[\zeta_{r+2(i-1)}(r-1) + \zeta_{r+2i}(r-1)] & i &= 2, \dots, N-4 \\ & & (r &\leq N-4) \end{aligned}$$

Zusätzlich

wenn r gerade:

$$\begin{aligned} \zeta_{\frac{N+r}{2}+1}(r) &= \frac{1}{2}\zeta_N(r-1) & (r &\leq N-2) \\ \zeta_i(r) &= 0 & i &= \left(\frac{N+r}{2} + 1\right) + 1, \dots, N \end{aligned}$$

wenn r ungerade:

$$\begin{aligned} \zeta_{\frac{N+r+1}{2}}(r) &= \zeta_N(r-1) + \frac{1}{2}\zeta_{N-1}(r-1) & (r &\leq N-3) \\ \zeta_i(r) &= 0 & i &= \frac{N+r+1}{2} + 1, \dots, N \end{aligned}$$

Für $r > N - 1$ gilt:

$$\zeta_i(r) = \zeta_i(r-1) \quad i = 1, \dots, N \quad (\text{A.11})$$

• Differentialgleichungen:

$$\dot{\zeta}_1^{(r)} = 1 - \zeta_1(r) \sum_{j=1}^N \kappa_{1j} \zeta_j(r) \quad (r \geq 0)$$

$$\begin{aligned} \dot{\zeta}_i^{(r)} &= \sum_{j=1}^r 2^{j-r-1} \kappa_{j,i-1} \zeta_j \zeta_{i-1} + \sum_{j=1}^r (1 - 2^{j-r-1}) \kappa_{ji} \zeta_j \zeta_i \\ &\quad + \sum_{j=r+1}^{\text{int}(\frac{i+r}{2})} (\kappa_{j,i+r-j} \zeta_j \zeta_{i+r-j} - 2^{-1} \kappa_{\text{int}(\frac{i+r}{2}), \text{int}(\frac{i+r}{2})} \zeta_{\text{int}(\frac{i+r}{2})}^2 \delta_{j,i+r-j}) \\ &\quad - \zeta_i \sum_{j=1}^N \kappa_{ij} \zeta_j \quad i = 3, \dots, N \quad (r \leq i-2) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\dot{\zeta}_i^{(r)} &= \sum_{j=1}^{i-2} 2^{1+j-i} \kappa_{j,i-1} \zeta_j \zeta_{i-1} + \sum_{j=1}^r (1 - 2^{j-i}) \kappa_{ji} \zeta_j \zeta_i \\ &\quad + 2^{-1} \kappa_{i-1,i-1} \zeta_{i-1}^2 \\ &\quad - \zeta_i \sum_{j=1}^N \kappa_{ij} \zeta_j \quad i = 2, \dots, N \quad (r \geq i-1) \quad (\text{A.12})\end{aligned}$$

• Rücktransformierte Verteilungsfunktion für $r \geq 0$:

$$\begin{aligned}\zeta_1 &= \zeta_1(r) \\ \zeta_i &= \frac{\zeta_i(r)}{1.5 \cdot 2^{i-2}} \quad i = 2, \dots, r+1 \\ \zeta_i &= \frac{\zeta_i(r)}{2^r} \quad i = r+2, \dots, N\end{aligned} \quad (\text{A.13})$$

Anhang B

Tabelle der Meßergebnisse

In diesem Abschnitt sind die Meßergebnisse für die verschiedenen Meßreihen aufgeführt. Die Tabellen gliedern sich dabei folgendermaßen: In der ersten Spalte ist die Bezeichnung der Probe aufgeführt, die zweite Spalte enthält die Temperatur T bei der die Bestrahlung durchgeführt wurde. In Spalte 3 und 4 stehen die aus den Histogrammen der Verteilungsfunktionen nach Gl. (4.1) bzw. (4.2) berechneten mittleren Blasenradien $\bar{r}_B$ bzw. Blasendichten C_B . Die zweite Zahl in der Spalte des mittleren Blasenradius ist die Standardabweichung der Verteilung. In der Spalte 5 ist die insgesamt implantierte Heliumkonzentration eingetragen, wie sie aus den Verteilungen unter Annahme von idealem c_{He}^{ideal} bzw. realem Gasverhalten c_{He}^{real} folgt. Die Berechnung erfolgte unter Ausnutzung der Gleichungen (2.8), (2.9) und (2.10). In der letzten Spalte schließlich ist angegeben, wieviele Heliumblasen auf wievielen Bildern insgesamt gezählt bzw. ausgewertet wurden.

Meßreihe : $c_{He} = 100$ appm, $P_{He} = 9$ appm/h					
Probe	T [K]	$\bar{r}_B$ [nm]	C_B [$10^{18} m^{-3}$]	$c_{He}^{real} (c_{He}^{ideal})$ [appm]	Anzahl (Bilder)
#36	523	0.98 ± 0.12	13576.00	49.99 (300.49)	1647 (9)
#23	600	1.33 ± 0.36	10757.00	96.01 (408.56)	1363 (29)
#21	600	1.39 ± 0.27	4277.40	39.75 (170.75)	706 (13)
#23 + #21	600	1.35 ± 0.33	7091.30	64.18 (274.03)	2069 (42)
#22	700	1.80 ± 0.56	2371.10	45.70 (144.00)	992 (29)
#20	800	4.01 ± 1.49	447.87	62.79 (122.43)	1245 (21)
#35	800	3.19 ± 1.13	654.48	52.03 (111.92)	1883 (18)
#20 + #35	800	3.53 ± 1.36	552.95	58.04 (118.22)	3128 (39)
#10	850	5.65 ± 2.02	140.60	42.56 (71.30)	1113 (29)
# 6	900	12.32 ± 4.34	19.48	33.69 (44.24)	1192 (41)
#30	950	19.21 ± 4.71	6.09	24.83 (29.94)	1884 (38)
#34	950	45.48 ± 11.03	0.97	34.79 (37.62)	524 (30)
#19	950	30.30 ± 5.67	2.22	23.38 (26.48)	79 (6)
#30 + #34 + #19	950	25.75 ± 12.90	3.41	27.67 (31.35)	2487 (74)
					12628 (263)

Meßreihe: $c_{He} = 100$ appm, $P_{He} = 50$ appm/h					
Probe	T [K]	$\bar{r}_B$ [nm]	C_B [$10^{18}m^{-3}$]	$c_{He}^{real} (c_{He}^{ideal})$ [appm]	Anzahl (Bilder)
#T1 ₂	580	0.98 ± 0.10	14321.00	51.89 (288.15)	287 (2)
# 8	600	1.08 ± 0.16	10327.00	48.60 (245.35)	806 (15)
#31	600	1.05 ± 0.13	8918.90	38.51 (198.94)	935 (15)
# 8 + #31	600	1.06 ± 0.15	9519.70	42.82 (218.75)	1741 (30)
# 7	700	1.86 ± 0.49	3918.00	76.97 (246.49)	326 (2)
#24	700	1.73 ± 0.43	2362.60	38.60 (128.55)	533 (13)
#32	700	1.71 ± 0.37	2887.90	44.14 (150.43)	535 (14)
# 7 + #24 + #32	700	1.75 ± 0.42	2821.60	47.14 (156.62)	1394 (29)
#39	800	2.68 ± 0.77	777.07	37.47 (90.25)	2457 (29)
# 5	800	2.86 ± 0.71	627.04	34.31 (81.49)	1961 (20)
#39 + # 5	800	2.76 ± 0.75	702.46	35.90 (85.89)	4418 (49)
# 4	850	4.48 ± 1.49	202.20	34.45 (63.40)	1374 (24)
# 2	900	8.87 ± 2.56	43.08	33.67 (48.73)	928 (18)
# 1	940	16.91 ± 5.26	8.42	27.36 (33.57)	447 (14)
# 3	980	26.56 ± 6.15	3.09	24.50 (28.02)	216 (15)
#38	1000	39.06 ± 9.55	1.45	25.71 (28.03)	513 (32)
#T2 ₂	1030	47.32 ± 8.98	1.12	28.27 (30.27)	332 (17)
					11650 (230)

Meßreihe : $c_{He} = 100$ appm, $P_{He} = 260$ appm/h					
Probe	T [K]	$\bar{r}_B$ [nm]	C_B [$10^{18}m^{-3}$]	$c_{He}^{real} (c_{He}^{ideal})$ [appm]	Anzahl (Bilder)
#17	600	0.85 ± 0.12	16478.00	41.83 (243.95)	2542 (28)
#11	700	1.33 ± 0.29	5643.00	45.24 (177.16)	1651 (29)
#12	800	1.95 ± 0.79	1361.40	33.82 (89.61)	1365 (28)
#13	900	4.73 ± 1.52	292.00	54.39 (95.83)	1156 (29)
#25	950	7.05 ± 3.00	66.17	33.09 (48.65)	923 (29)
#26	1000	14.51 ± 3.99	12.70	27.52 (34.39)	1340 (29)
#16	1050	29.19 ± 4.63	4.17	36.96 (41.48)	721 (28)
					9698 (200)

Meßreihe : $c_{He} = 100$ appm, $P_{He} = 325$ appm/h					
#27	1000	13.57 ± 2.22	21.97	38.71 (49.64)	743 (14)

Meßreihe : $c_{He} = 1000$ appm, $P_{He} = 50$ appm/h					
#37	700	2.02 ± 0.89	11650.00	357.71 (973.20)	3677 (12)

					38590 (719)
--	--	--	--	--	-------------

Anhang C

Asymptotische Lösungen für C_B und $\bar{\tau}_B$ bei di-atomarer und multi-atomarer Keimbildung in Extremfällen

Entsprechend dem Vorgehen in den Kapiteln 2.5.2.1 und 2.5.2.2 kann man aus den Ratengleichungen für c_{He} und C_B die asymptotischen Lösungen für die Blasendichte C_B berechnen [10]. Der mittlere Blasenradius $\bar{\tau}_B$ ist asymptotisch durch die Annahme, daß das implantierte Gas sich in Blasen befindet durch die Massenerhaltung Gl. (2.31) mit der Blasendichte C_B verknüpft. Im folgenden sind die asymptotischen Lösungen für die di-atomare und multi-atomare Nukleation unter Annahme von idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen sowie Gas unter konstanter Dichte angegeben, wobei einmal der Leerstellenmechanismus und einmal der Rekombinationsmechanismus der dominierende ist.

C.1 Di-atomare Keimbildung

Ideales Gas, Gleichgewichtsblasen

Leerstellenmechanismus

$$D_{He}^{eff} = D_V c_V = \left(\frac{\Omega D_V \kappa P_{He}}{4\pi r_F} \right)^{1/2} \quad (C.1)$$

Asymptotik

$$C_B^* = \left(\frac{P_{He}}{4\pi r_0 \Omega D_{He}^{eff}} \right)^{1/2} \quad (C.2)$$

$$t^* = 3 \left(\frac{\Omega}{4\pi r_0 D_{He}^{eff} P_{He}} \right)^{1/2} \quad (C.3)$$

$$C_B = 2C_B^* \left[1 + \frac{4\pi\gamma r_0^2}{3kT} \ln \left(\frac{t}{2t^*} \right) \right]^{1/2} = \left(\frac{4r_F P_{He}}{\pi \kappa r_0^2 \Omega^3 D_V} \right)^{1/4} \left[1 + \frac{4\pi\gamma r_0^2}{3kT} \ln \left(\frac{t}{2t^*} \right) \right]^{1/2} \quad (C.4)$$

$$\bar{r}_B = \left(\frac{3kT}{8\pi^{1/2}\gamma} \right)^{1/2} \left(\frac{\kappa r_0^2 c_{He}^{tot 4} D_V}{4\pi r_F \Omega P_{He}} \right)^{1/8} \left[1 + \frac{4\pi\gamma r_0^2}{3kT} \ln \left(\frac{t}{2t^*} \right) \right]^{-1/4} \quad (C.5)$$

Rekombinationsmechanismus

$$D_{He}^{eff} = D_V \quad (C.6)$$

Asymptotik

$$C_B = 2C_B^* \left[1 + \frac{4\pi\gamma r_0^2}{3kT} \ln \left(\frac{t}{2t^*} \right) \right]^{1/2} = \left(\frac{P_{He}}{\pi r_0 \Omega D_V} \right)^{1/2} \left[1 + \frac{4\pi\gamma r_0^2}{3kT} \ln \left(\frac{t}{2t^*} \right) \right]^{1/2} \quad (C.7)$$

$$\bar{r}_B = \left(\frac{3kT}{8\pi^{1/2}\gamma} \right)^{1/2} \left(\frac{r_0 c_{He}^{tot 2} D_V}{\Omega P_{He}} \right)^{1/4} \left[1 + \frac{4\pi\gamma r_0^2}{3kT} \ln \left(\frac{t}{2t^*} \right) \right]^{-1/4} \quad (C.8)$$

Konstante Gasdichte

Leerstellenmechanismus

$$D_{He}^{eff} = D_V c_V = \left(\frac{\Omega D_V \kappa P_{He}}{4\pi r_F} \right)^{1/2} \quad (C.9)$$

Asymptotik

$$C_B = \left(\frac{14^3 \pi^{1/2} \rho_{He}^2 r_0^3 c_{He}^{tot}}{36 \Omega^{11/2}} \right)^{1/7} \left(\frac{r_F P_{He}}{\kappa D_V} \right)^{3/14} \quad (C.10)$$

$$\bar{r}_B = \left(\left(\frac{3}{4} \right)^{7/3} \frac{36^{1/3} c_{He}^{tot 2}}{14 \pi^{5/2} r_0 \rho_{He}^3} \right)^{1/7} \left(\frac{\kappa D_V}{\Omega r_F P_{He}} \right)^{1/14} \quad (C.11)$$

Rekombinationsmechanismus

$$D_{He}^{eff} = D_V \quad (C.12)$$

Asymptotik

$$C_B = \left(\frac{7^3 \rho_{He}^2 r_0^3 P_{He}^3 c_{He}^{tot}}{36 \pi \Omega^4 D_V^3} \right)^{1/7} \quad (C.13)$$

$$\bar{r}_B = \left(\left(\frac{3}{4} \right)^{7/3} \frac{36^{1/3} D_V c_{He}^{tot 2}}{7 \pi^2 r_0 \rho_{He}^3 \Omega P_{He}} \right)^{1/7} \quad (C.14)$$

C.2 Multi-atomare Keimbildung

Asymptotik

$$C_B^* = \frac{P_{He}}{4\pi r_{cr} D_{He}^{eff} \hat{c}_{He}^{cr}} \quad (C.15)$$

$$t^* = \frac{\hat{c}_{He}^{cr}}{P_{He}} \quad (C.16)$$

$$C_B = 2C_B^* = \frac{P_{He}}{2\pi r_{cr} D_{He}^{eff} \hat{c}_{He}^{cr}} \quad (C.17)$$

$$\hat{c}_{He}^{cr} = \exp[(\mu_{He}^{cr} - G_{He}^F)/kT] \quad (C.18)$$

Ideales Gas, Gleichgewichtsblasen

$$\bar{r}_B = \left(\frac{3kT c_{He}^{tot} r_{cr} D_{He}^{eff} \hat{c}_{He}^{cr}}{4\gamma\Omega P_{He}} \right)^{1/2} \quad (C.19)$$

Konstante Gasdichte

$$\bar{r}_B = \left(\frac{3c_{He}^{tot} r_{cr} D_{He}^{eff} \hat{c}_{He}^{cr}}{2\rho_{He}\Omega P_{He}} \right)^{1/3} \quad (C.20)$$

Literaturverzeichnis

- [1] L.K. Mansur, E.H. Lee, P.J. Maziasz und A.P. Rowcliffe, J. Nucl. Mater. 141-143 (1986) 633
- [2] H. Schroeder, W. Kesternich und H. Ullmaier, Nucl. Eng. Des./Fusion 2 (1985) 65
- [3] I.M. Lifshitz und V.V. Slyozov, J. Phys. Chem. Solids 19 (1961) 35
- [4] C. Wagner, Z. El. Chemie 65 (1961) 581
- [5] von Smoluchowski, Z. Phys. Chem 92 (1917) 129; Physik. Z. 17 (1916) 585
- [6] A.J. Markworth, Metall. Trans. 4 (1973) 2651
- [7] P.F. Fichtner, H. Schroeder und H. Trinkaus, Acta metall. mater. 39 No.8 (1991) 1845
- [8] E.E. Gruber, J. Appl. Phys. 38 (1966) 243
- [9] P.J. Goodhew und S.K. Tyler, Proc. R. Soc. Lond. A377 (1981) 151
- [10] H. Trinkaus, J. Nucl. Mater. 133-134 (1985) 105
- [11] H. Trinkaus, Radiat. Eff. 101 (1986) 91
- [12] D. Preininger und D. Kaletta, J. Nucl. Mater. 117 (1983) 117
- [13] D. Preininger und D. Kaletta, J. Nucl. Mater. 122-123 (1984) 520
- [14] A.J.E. Foreman und B.N. Singh, J. Nucl. Mater. 141-143 (1986) 672
- [15] M. Fell und S.M. Murphy, J. Nucl. Mater. 172 (1990) 1

- [16] H. Trinkaus, wird veröffentlicht
- [17] B.N. Singh und H. Trinkaus, J. Nucl. Mater. **186** (1992) 153
- [18] B.N. Singh, M. Eldrup und A. Möslang, Effects of Radiation on Materials: 16th International Symposium, ASTM STP 1175, A.S. Kumar, D.S. Gelles und R.K. Nanstad, Eds., American Society for Testing and Materials, Philadelphia, (1993)
- [19] V.N. Chernikov, H. Trinkaus, P. Jung und H. Ullmaier, J. Nucl. Mater. **170** (1990) 31
- [20] J. Laakmann, Löslichkeit und Blasenwachstum von Helium in Metallen unter hohem Druck, Jül-2007 (1985) ISSN-0366-0885
- [21] F. Paschoud, M. Victoria und R. Gotthardt, Fundamental Aspects of Inert Gases in Solids, Eds. S.E. Donnelly and J.H. Evans, Plenum Press, New York, (1991) 321
- [22] R.B. McLellan, Solution thermodynamics, in Treatise on Material Science and Technology, Vol. 5, Academic Press, New York (1974) 2-41
- [23] H. Trinkaus, Radiat. Eff. **78** (1983) 189
- [24] H. Ullmaier, Atomic Defects in Metals, Landoldt-Börnstein, New Series III/25, Edt. H. Ullmaier, Springer Verlag (1991) 202 und Referenzen darin
- [25] G.E. Murch und A.S. Nowick, Diffusion in Crystalline Solids, Academic Press, Inc, London (1984)
- [26] N.M. Ghoniem, S. Sharafat, J.M. Williams und L.K. Mansur, J. Nucl. Mater. **117** (1983) 96
- [27] H. Trinkaus, J. Nucl. Mater. **118** (1983) 39
- [28] G.W. Greenwood, A.J.E. Foreman und D.E. Rimmer, J. Nucl. Mater. **1** (1959) 305
- [29] R.S. Barnes und D.J. Mazey, Proc. Roy. Soc **A275** (1963) 47

- [30] M.V Speight, J. Nucl. Mater. **12** (1964) 216
- [31] F.A. Nichols, J. Nucl. Mater. **30** (1969) 143
- [32] H. Trinkaus, Scripta. Met. **23** (1989) 1773
- [33] P.G.J. van Dongen und M.H. Ernst, Journal of Statistical Physics **50**, Nos.1/2 (1988) 295
- [34] S. Chandrasekhar, Rev. Mod. Phys. **15** (1943) 1
- [35] P.W. Voorhees und M.E. Glicksman, Acta metall. **32** Vol.11 (1984) 2013
- [36] H. Schroeder und P. Batfalsky, J. Nucl. Mater. **103-104** (1981) 839
- [37] H. Schroeder, J. Nucl. Mater. **141-143** (1986) 476
- [38] J.P. Biersack und L.G. Haggmark, Nucl. Instr. und Meth. **174** (1980) 257
- [39] P. Jung, J. Viehweg und C. Schwaiger, Nucl. Instr. and Meth. **154** (1978) 207
- [40] M. Paulus, Y. Dai, J. Deutz und H. Schroeder, Großflächiges Polieren von AISI-316-L Stahlproben, Praktische Metallographie **26** (1992)
- [41] W. Kesternich, Proc. 8th Eur. Congr. on Electron Microscopy, Budapest (1984), 837
- [42] M.v. Heimendahl, Einführung in die Elektronenmikroskopie, Friedr. Vieweg + Sohn GmbH, Verlag, Braunschweig, ISBN 3 528 07700 X, (1970)
- [43] J.W. Edington, Monographs in Practical Electron Microscopy in Materials Science, 4. Typical Electron Microscop Investigations, The Macmillan Press LTD, London and Basingstoke (1976)
- [44] V. Sciani und P. Jung, Radiat. Eff. **78** (1983) 87
- [45] V. Philipps, K. Sonnenberg und J.M. Williams, J. Nucl. Mater. **107** (1982) 271
- [46] Qiang-Li, W. Kesternich, H. Schroeder, D. Schwahn und H. Ullmaier, Acta metall. mater. **12** (1990) 2383

- [47] G. Neumann und G.M. Neumann, Surface Self-Diffusion in Metals, Diffusion Information Center, Bay Village and Solothurn, (1972)

Abbildungsverzeichnis

2.1	Druckabhängigkeit der Heliumdichte ρ_{He} bei idealem (gerade Linien) und realem Gasverhalten für drei Temperaturen.	8
2.2	Druckabhängigkeit des chemischen Potentials von Helium bei idealem (gerade Linien) und realem Gasverhalten für drei Temperaturen. . .	8
2.3	Energiezustände von Helium im Metall.	9
2.4	Heliumdiffusionsmechanismen im Metall.	11
2.5	Blasenentwicklung beim Glühen nach Kalt-Implantation.	15
2.6	Wanderungsmechanismen von Heliumblasen.	15
2.7	Vergrößerung von Heliumblasen auf Grund von Ostwald-Reifung. . .	17
2.8	Blasenentwicklung unter Heiß-Implantation.	18
3.1	Zeitliche Entwicklung von $\bar{n}$, s sowie $s/\bar{n}$ für den Fall der Oberflächen- diffusion und idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen (A1a). .	30
3.2	Zeitabhängigkeit von Z_B bei idealem Gasverhalten in Gleichgewichts- blasen für den Fall des konstanten Gasgehalts (Aa).	31
3.3	Zeitabhängigkeit von Z_B unter konstanter Gasdichte für den Fall des konstanten Gasgehalts (Ab).	31
3.4	Zeitabhängigkeit von $\bar{\rho}_B$ bei idealem Gasverhalten in Gleichgewichts- blasen für den Fall des konstanten Gasgehalts (Aa).	31
3.5	Zeitabhängigkeit von $\bar{\rho}_B$ unter konstanter Gasdichte für den Fall des konstanten Gasgehalts (Ab).	31
3.6	Normierte Verteilungsfunktionen bei idealem Gasverhalten in Gleich- gewichtsblasen für den Fall des konstanten Gasgehalts (Aa).	33
3.7	Normierte Verteilungsfunktionen unter konstanter Gasdichte für den Fall des konstanten Gasgehalts (Ab).	33

3.8	Zeitliche Entwicklung von $\bar{n}$, s sowie $s/\bar{n}$ für den Fall der Oberflächendiffusion und idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen (B1a).	34
3.9	Zeitliche Entwicklung von ζ_n für den Fall der Oberflächendiffusion bei idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen (B1a).	34
3.10	Zeitliche Entwicklung von ζ_1 für den Fall der Oberflächendiffusion bei idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen (B1a).	35
3.11	Zeitliche Entwicklung von μ_1/M_B für den Fall der Oberflächendiffusion bei idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen (B1a).	35
3.12	Zeitabhängigkeit von Z_B bei idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen für den Fall der konstanten Gasproduktion (Ba).	37
3.13	Zeitabhängigkeit von Z_B unter konstanter Gasdichte für den Fall der konstanten Gasproduktion (Bb).	37
3.14	Zeitabhängigkeit von $\bar{p}_B$ bei idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen für den Fall der konstanten Gasproduktion (Ba).	37
3.15	Zeitabhängigkeit von $\bar{p}_B$ unter konstanter Gasdichte für den Fall der konstanten Gasproduktion (Bb).	37
3.16	Schematische Abhängigkeit der Clusterdiffusivität D_n von der Clustergröße n .	38
3.17	Zeitabhängigkeit von Z_B bei idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen für die Fälle (i-iii) (Ba).	39
3.18	Zeitabhängigkeit von Z_B unter konstanter Gasdichte für die Fälle (i-iii) (Bb).	39
3.19	Zeitabhängigkeit von $\bar{p}_B$ bei idealem Gasverhalten in Gleichgewichtsblasen für die Fälle (i-iii) (Ba).	39
3.20	Zeitabhängigkeit von $\bar{p}_B$ unter konstanter Gasdichte für die Fälle (i-iii) (Bb).	39
4.1	Probengeometrie und Abmessungen.	42
4.2	Kornstruktur von Nickel nach dem Tempern.	43
4.3	Schematischer Verlauf des α -Teilchenstrahls vom Zyklotron zur „In-beam“-Bestrahlungsapparatur.	44
4.4	Schematische Darstellung der Probestemperaturereinheit.	45
4.5	Schematische Darstellung des Heliumgas-Kreislaufs.	46

4.6	Eichkurve zur Dickenmessung nach der Methode der Röntgenfluoreszenz.	47
4.7	Verteilungsfunktionen bei einer Heliumproduktionsrate von $P_{He} = 9$ appm/h für zwei Temperaturen, a) 700 K und b) 900 K.	50
4.8	TEM-Bilder bei einer Heliumproduktionsrate von $P_{He} = 9$ appm/h für zwei Temperaturen, a) 700 K und b) 900 K.	50
4.9	Implantierte totale Heliumkonzentration c_{He}^{real} berechnet aus den Verteilungsfunktionen nach der realen Zustandsgleichung für Helium in Gleichgewichtsblasen.	51
4.10	Temperaturabhängigkeit der Blasendichte C_B für die verschiedenen Heliumproduktionsraten.	53
4.11	Temperaturabhängigkeit des mittleren Blasenradius $\bar{r}_B$ für die verschiedenen Heliumproduktionsraten.	53
4.12	Produktionsratenabhängigkeit der Blasendichte C_B bei den gemessenen Temperaturen T	55
4.13	Produktionsratenabhängigkeit des mittleren Blasenradius $\bar{r}_B$ bei den gemessenen Temperaturen T	55
4.14	Schwellen der Proben in Abhängigkeit der Temperatur für die verschiedenen Heliumproduktionsraten.	56
4.15	Temperaturabhängigkeit von C_B normiert auf eine Heliumproduktionsrate von 1 appm s^{-1} in Nickel und in kommerziellen Edelstählen (SS) unter verschiedenen Implantationsbedingungen.	60
4.16	Vergleich der gemessenen Absolutwerte der Blasendichte C_B mit Extremfällen.	65

Tabellenverzeichnis

2.1	Typische Heliumproduktionsraten P_{He} in verschiedenen Prozessen. . .	5
2.2	Typische Energien eines Heliumatoms in Nickel.	10
2.3	Effektive Aktivierungsenergien und Diffusionskoeffizienten für Heliumdiffusion in Extremfällen.	14
3.1	Normierter Diffusionskoeffizient δ_n	25
3.2	Zusammenhang zwischen reduzierten Größen mit physikalischen Größen.	26
3.3	Repopulation bei konstantem Gasgehalt (A).	27
3.4	Repopulation bei konstanter Gasproduktion (B).	27
3.5	Parameter bei der Simulation.	29
3.6	Asymptotik des mittleren Radius, der Blasendichte sowie der mittleren Gasatomanzahl pro Blase unter konstantem Gasgehalt.	32
4.1	Experimentelles Parameterfeld.	41
4.2	Heliumkonzentration in den Proben aus Entgasungsmessungen. . . .	52
4.3	Aktivierungsenergien und Vorfaktoren für die Blasendichten und mittleren Blasenradien in Abhängigkeit der Heliumproduktionsrate. . . .	54
4.4	Übergangstemperaturen T_{tr} in Abhängigkeit der Heliumproduktionsrate für C_B und $\bar{r}_B$	54
4.5	Vergleich der aus dem Experiment folgenden Dissoziationsenergien $E_{He_{exp}}^{Diss}$ und den Produktionsratenabhängigkeiten von C_B und $\bar{r}_B$ mit den Literaturwerten und den theoretischen Vorhersagen bei multiatomarer Nukleation.	59

4.6	Vergleich der aus dem Experiment folgenden Wanderungsenergien $E_{V_{exp}}^M$ und den Produktionsratenabhängigkeiten von C_B und $\bar{r}_B$ mit den Literaturwerten und theoretischen Vorhersagen bei di-atomarer Nukleation.	62
4.7	Tabelle der in der Diskussion benutzten Zahlenwerte.	64

Danksagung

Diese Arbeit wurde in der Sondergruppe „Mechanische Werkstoffeigenschaften“ des Instituts für Festkörperforschung der Forschungsanlage Jülich durchgeführt.

Herrn Prof. Dr. H. Ullmaier danke ich für die Möglichkeit zur Durchführung dieser Arbeit in seiner Gruppe sowie für zahlreiche Diskussionen.

Mein besonderer Dank gilt meinem Betreuer, Dr. H. Schroeder, für die hilfreiche Unterstützung in experimentellen Fragen sowie Dr. H. Trinkaus für die wertvollen Diskussionen in allen theoretischen Fragen.

Den restlichen Mitgliedern der Gruppe, Dr. P. Jung, Dr. W. Kesternich, Herrn H. Klein, Herrn J. Deutz, Herrn W. Schmitz, Herrn Dipl.-Phys. F. Scheuermann, Herrn Dipl.-Ing. S. Witte sowie Herrn Z. Zhu bin ich für viele Kleinigkeiten zu Dank verpflichtet.

Dem Gastwissenschaftler Herrn Dr. V.N. Chernikov danke ich ganz besonders für die Einweisung am TEM.

Der Bedienungsmansschaft des Zyklotrons gilt mein Dank für die Hilfe bei der erfolgreichen Bewältigung der Implantations-Experimente.

Bei Herrn K. Wingerath, Herrn H. Jungbluth sowie Frau D. Henkel möchte ich mich für die Unterstützung in Programmierfragen bedanken.

Ferner gilt mein Dank den ehemaligen Mitgliedern der Gruppe, Herrn Dipl.-Phys. R. Herzog, Herrn Dr. F. Carsughi, Herrn Dr. M. Paulus, Herrn Dr. C. Hardtke sowie Herrn Dr. Y. Dai für viele interessanten Diskussionen.

Meinen Eltern sowie meiner Freundin danke ich für Ihr Verständnis und Ihre Unterstützung.

Volker Zell

Jül-2873

Februar 1994

ISSN 0944-2952