



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH

Institut für Festkörperforschung

**Untersuchung von Frenkeldefekten
in Nickel und Nickellegierungen
mit Hilfe der diffusen Röntgenstreuung**

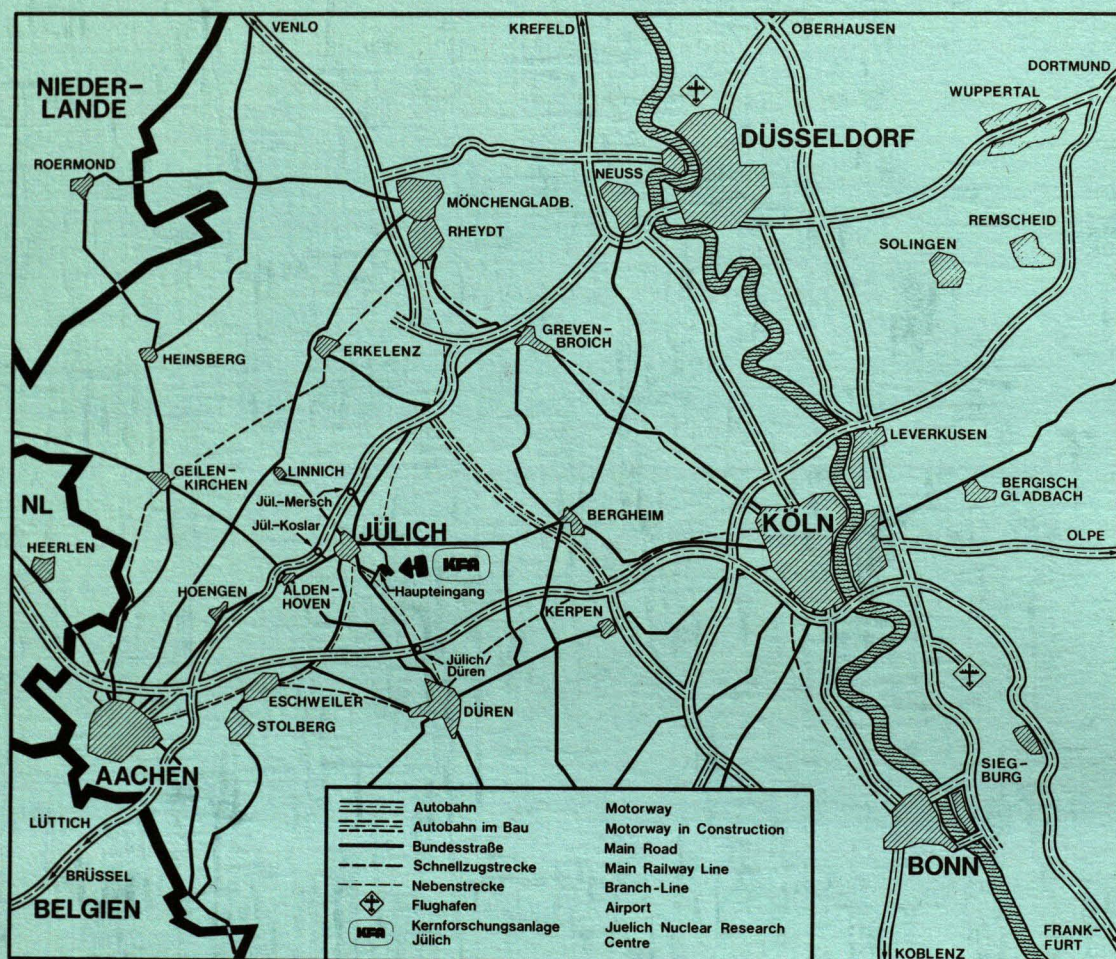
von

O. Bender

Jül - 1769

Februar 1982

ISSN 0366-0885



Als Manuskript gedruckt

Berichte der Kernforschungsanlage Jülich - Nr. 1769
 Institut für Festkörperforschung Jül - 1769

Zu beziehen durch : ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH
 Postfach 1913 · D-5170 Jülich (Bundesrepublik Deutschland)
 Telefon : (0 24 61) 610 · Telex : 8 33 556 kfa d

Untersuchung von Frenkeldefekten in Nickel und Nickellegierungen mit Hilfe der diffusen Röntgenstreuung

von

O. Bender

Abstract

Single crystals of pure Ni and of the alloys $\text{Ni}_{62}\text{Cu}_{38}$ and $\text{Ni}_{73}\text{Fe}_{27}$ (as quenched ($S=0$) or ordered ($S=0.7-0.9$)) were irradiated at 4.5 K with 3 MeV electrons. The irradiation induced defects were investigated by measurements of the Huang diffuse scattering of X-rays and the change of the lattice parameter and the electrical resistivity.

At 6 K we observed statistically distributed Frenkel defects in all metals. The configuration of the single interstitial atoms (SIA) in Ni agrees with the (100)-split configuration and there are no indications for different configurations of the SIA in the alloys. The relaxation volume of the SIA is $1.7(+0.3)$ atomic volumes in Ni and $1.5(+0.3)$ atomic volumes in $\text{Ni}_{73}\text{Fe}_{27}$, independently of the degree of order. For the Frenkel defect resistivity ρ_F we found $\rho_F = 6.1(+1.1)\mu\Omega\text{cm}$ in Ni, $\rho_F = 7.2(+2.0)\mu\Omega\text{cm}$ in $\text{Ni}_{73}\text{Fe}_{27}$ (no difference for quenched and ordered samples), and $\rho_F = 13.2(+4.0)\mu\Omega\text{cm}$ for $\text{Ni}_{62}\text{Cu}_{38}$.

In order to investigate the defect reactions at higher temperatures the measurements were repeated after several steps of an isochronal annealing program. The annealing behaviour of pure Ni is characterized by interstitial motion during stage I and growth of the agglomerates during stage II that eventually form dislocation loops on {111}-planes. Vacancy agglomeration has been directly observed after stage III; there is a simultaneous decrease of ρ_F with the formation of the agglomerates. All of these reactions are very similar to Cu although the growth of the interstitial clusters is slower for Ni. The SIA is more mobile than the vacancy for the alloys investigated here as it is in the pure metals. Whereas the mobility of the agglomerates is only little suppressed for NiCu, even the di-interstitial seems to be immobile up to stage III for $\text{Ni}_{73}\text{Fe}_{27}$. As the vacancy mobility in the alloys is not suppressed relative to Ni the range of annealing stage II is reduced in the alloys. In $\text{Ni}_{62}\text{Cu}_{38}$ a decomposition of the alloy has been observed not only during motion of the SIA but also during the agglomeration processes in stage II. In contrast to this, interstitial motion does not contribute to the ordering of $\text{Ni}_{73}\text{Fe}_{27}$. Vacancy mobility during stage III causes a further decomposition of NiCu and an increase of the order in preordered $\text{Ni}_{73}\text{Fe}_{27}$ but not for the quenched $\text{Ni}_{73}\text{Fe}_{27}$. This difference can be tentatively explained by a lower efficacy for ordering of the vacancy jumps in a disordered alloy relative to a preordered one, where the sublattices are already well defined. In contrast to pure Ni no large vacancy agglomerates were observed in the alloys; this may be explained by the smaller interstitial agglomerates at the end of stage II and the consequently shorter distances of the vacancies to their sinks. Thus recombination dominates in the alloys and prevents the formation of agglomerates which are stable up to high temperatures.

Inhaltsverzeichnis

Seite

1. Einleitung	1
2. Charakterisierung der Legierungen	4
2.1 Nah- und Fernordnung in binären Legierungen	4
2.2 Konstitution der untersuchten Legierungen	9
2.2.1 NiCu: Entmischendes Legierungssystem	9
2.2.2 NiFe: Ordnendes Legierungssystem	10
3. Bestrahlungseffekte in konzentrierten Legierungen	11
4. Diffuse Röntgenstreuung an Kristallen mit Defekten	17
4.1 Diffuse Röntgenstreuung an Einzeldefekten	18
4.2 Diffuse Röntgenstreuung an Defektagglomeraten	23
5. Experimentelle Details	27
5.1 Probenpräparation	27
5.2 Meßmethoden	30
5.2.1 Widerstandsmessungen	30
5.2.2 Messung der diffusen Streuintensität	31
5.2.3 Messung der Gitterparameter	37
5.3 Bestimmung des Fernordnungsparameters	38
5.3.1 Bestimmung des Fernordnungsparameters aus der Widerstandsmessung	38
5.3.2 Bestimmung des Fernordnungsparameters aus der Gitterparametermessung	39
5.3.3 Bestimmung des Fernordnungsparameters aus Messungen der integralen Intensität der Überstruktureffekte	40
6. Bestrahlungen	46
6.1 Produktion von Frenkeldefekten durch Elektronenbestrahlung bei 4K	46
6.2 Heliumimplantation während der Bestrahlung	47

7. Ergebnisse für Einzeldefekte nach der Bestrahlung bei 6K	52
7.1.1 Experimentelle Ergebnisse für Nickel	52
7.1.2 Diskussion der Ergebnisse für Nickel	56
7.2.1 Experimentelle Ergebnisse für die Legierungen Ni_3Fe	59
7.2.2 Diskussion der Ergebnisse für die Legierungen Ni_3Fe	63
7.3.1 Experimentelle Ergebnisse für die Legierung $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$	65
7.3.2 Diskussion der Ergebnisse für die Legierung $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$	68
7.4 Zusammenfassung und Vergleich der Ergebnisse	69
8. Defektreaktionen bei der thermischen Erholung	71
8.1.1 Experimentelle Ergebnisse des Erholungsverhaltens für Nickel	71
8.1.2 Diskussion des Erholungsverhaltens für Nickel	81
8.2.1 Experimentelle Ergebnisse des Erholungsverhaltens für die Legierungen Ni_3Fe	84
8.2.2 Diskussion des Erholungsverhaltens für die Legierungen Ni_3Fe	90
8.3.1 Experimentelle Ergebnisse des Erholungsverhaltens für die Legierung $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$	96
8.3.2 Diskussion des Erholungsverhaltens für die Legierung $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$	101
8.4 Zusammenfassung und Vergleich des Erholungsverhaltens	104
9. Zusammenfassung	107
Anhang: Extinktionskorrekturen	109
Literaturverzeichnis	113

1. Einleitung

Im Verständnis der atomistischen Vorgänge bei der Strahlenschädigung und der Defekterholung in Metallen sind in den letzten Jahren wesentliche Fortschritte erzielt worden. Diese Kenntnisse resultieren größtenteils aus Untersuchungen der Eigenschaften von Punktdefekten und deren Wechselwirkungen in einkristallinen Materialien reiner Metalle /1/. Dazu werden Proben bei tiefen Temperaturen z.B. mit hochenergetischen Elektronen bestrahlt. Durch die Elektronenbestrahlung werden Frenkeldefekte, d.h. Paare von Zwischengitteratom (ZGA) und Leerstelle (LS) erzeugt, die bei den tiefen Temperaturen meist unbeweglich sind. An diesen eingefrorenen Defekten können die charakteristischen Eigenschaften, wie Relaxationsvolumen, Frenkelpaarwiderstand und Defektkonfiguration untersucht werden. Die Kenntnis der Konfiguration ist von fundamentaler Bedeutung für das Verhältnis des Wanderungsverhaltens der Defekte während des folgenden thermischen Anlassens. Während ihrer Wanderung bei höheren Temperaturen wird nicht nur Rekombination der Defekte beobachtet, sondern es bilden sich auch Defektagglomerate wie z.B. Zwischengitteratomcluster und Versetzungsringe, die in vielen Materialien bis Raumtemperatur und darüber hinaus stabil sind. Sie beeinflussen dann i.a. auch die spezifischen mechanischen Eigenschaften wie Härte und Duktilität des Materials bei ihren technischen Einsatztemperaturen.

Über die Struktur und die Eigenschaften der ZGA in Legierungen ist dagegen bisher wenig bekannt. Um gezielt Werkstoffe mit definierten Eigenschaften unter Strahlenbelastung zu entwickeln, sind deshalb auch detaillierte Untersuchungen an konzentrierten Legierungen erforderlich.

In der vorliegenden Arbeit sollte nun erstmals das Verhalten von Frenkeldefekten in einigen binären Legierungen mit Hilfe der diffusen Röntgenstreuung untersucht werden. Die Untersuchungen werden im Vergleich zu reinen Metallen deshalb erschwert, weil kompliziertere Defektmuster aufgrund unterschiedlicher Wechselwirkung der verschiedenen Atomsorten auftreten und gleichzeitig Phasenumwandlungen (z.B. Entmischungs- und Ordnungsreaktionen) induziert werden.

Die Meßmethode der diffusen Röntgenstreuung in der Nähe der Braggreflexe (Huangstreuung), die hier neben Gitterparameter- und Widerstandsmessungen zum Einsatz kommt, ist bisher mit Erfolg zur Untersuchung reiner Metalle verwendet worden /2/. Sie liefert Aussagen über Relaxationsvolumen, Defektkonzentration

und über die Defektstruktur. Außerdem ist die diffuse Röntgenstreuung eine empfindliche Methode, um die Defektagglomeration nachzuweisen und damit bei der thermischen Erholung Defektreaktionen und -wanderungen zu verfolgen. Diese Einsatzmöglichkeit macht die Methode besonders deshalb für Legierungen interessant, weil in Legierungen offenbar wesentliche Unterschiede im Erholungsverhalten im Vergleich zu reinen Metallen vorkommen können; denn während in reinen Metallen immer die Zwischengitteratome beweglicher als die Leerstellen sind und bei tieferen Temperaturen wandern, ist in Legierungen auch schon das umgekehrte Verhalten beobachtet worden. Ein Beispiel dafür ist das Legierungssystem Ag-Zn, an dem die größere Beweglichkeit der Leerstellen sowohl durch Messungen der Zener Relaxation /3/ als auch durch Untersuchungen im Hochspannungselektronenmikroskop /4/ nachgewiesen wurde.

Da sich die Untersuchungen auf das Verhalten der Frenkeldefekte konzentrieren sollten, wurden Legierungssysteme verwendet, die einen möglichst geringen diffusen Streuuntergrund zeigen, d.h. Legierungspartner mit ähnlichen Elektronenzahlen und geringem Unterschied in den Atomgrößen. Damit kann man die nach Bestrahlung beobachtete zusätzliche diffuse Streuung in der Nähe der Braggreflexe alleine den Defekten zuordnen, ohne Änderungen in der Nahordnung der Matrix berücksichtigen zu müssen. Relevante Änderungen in der Fernordnung können dagegen auch bei diesen Systemen nachgewiesen werden.

Wegen ihres breiten technischen Anwendungsbereichs wurden Nickel-Basis-Legierungen gewählt; Nickel ist z.B. ein wesentlicher Legierungsbestandteil vieler austenitischer Stähle /5/. Die hier untersuchten Substanzen sind Permalloy-Legierungen der Zusammensetzung Ni_3Fe , und zwar sowohl im kristallographisch geordneten als auch im ungeordneten Zustand, und die nickelreiche Monel-Legierung der Zusammensetzung $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$. Die Auswahl der Ni_3Fe -Legierung mit der ordnenden Phase bietet damit auch die Möglichkeit, den Einfluß der strukturellen Ordnung auf das Verhalten der Defekte zu untersuchen und zusätzlich dieses ordnende System mit dem entmischenden Ni-Cu zu vergleichen.

Zum Vergleich der Ergebnisse der Legierungen mit denen der reinen Komponenten wurden mit denselben Meßverfahren auch reine Nickelkristalle untersucht; an Kupfer gibt es schon Messungen von Ehrhart und Schlagheck /6/. Da im Unterschied zu den bisher genannten Legierungen und Metallen, die in einer fcc-Struktur kristallisieren, das reine Eisen in der α -Phase als bcc-Kristall vorliegt und deshalb schon unterschiedliches Defektverhalten erwarten läßt, wird es in diese Untersuchungen nicht miteinbezogen.

In den folgenden zwei Kapiteln wird ein kurzer Überblick über die Konstitution der untersuchten Legierungen und über Bestrahlungseffekte in Legierungen gegeben. Das Kapitel 4 enthält eine Darstellung der theoretischen Grundlagen der diffusen Röntgenstreuung an Kristallen mit Defekten. Danach werden experimentelle Verfahren wie Probenpräparation und Meßmethoden beschrieben (Kap. 5), und über Details der Bestrahlungsexperimente wird in Kapitel 6 berichtet. Die Abschnitte 7 und 8 enthalten dann die Meßergebnisse und die Diskussionen, zunächst in Kapitel 7 für Einzeldefekte, sodann während der Defekterholung in Kapitel 8. Eine Zusammenfassung der Ergebnisse schließt sich im letzten Abschnitt 9 an.

2. Charakterisierung der Legierungen

2.1 Nah- und Fernordnung in binären Legierungen

Ein idealer binärer Mischkristall ist dadurch gekennzeichnet, daß die Legierungsatome A und B statistisch auf die Gitterplätze verteilt sind. In den meisten realen Mischkristallen gibt es jedoch wegen der unterschiedlichen Wechselwirkung der Legierungspartner Abweichungen von der statistischen Atomverteilung. Je nach den Bindungsverhältnissen besteht entweder die Tendenz zur Nahentmischung (Clusterung), bei der sich gleichartige Atome zusammenlagern, oder zur Ordnungsbildung, bei der sich A-Atome bevorzugt mit B-Atomen umgeben und die Gitterplätze bei vollständiger Ordnung systematisch mit A- oder B-Atomen belegt werden. Die im thermodynamischen Gleichgewicht stabile Phase ist diejenige mit der geringsten Gibbs'schen freien Energie. Die Tendenz zur Ordnungsbildung oder Entmischung kann darin durch eine Konfigurationsenergie Φ repräsentiert werden: $\Phi = \Phi_{AB} - \frac{1}{2}(\Phi_{AA} + \Phi_{BB})$ /7/. Ist der Betrag der Bindungsenergie Φ_{AB} (Bindungsenergien sind hier negativ definiert) zwischen ungleichen Nachbarn größer als die mittlere Bindungsenergie der A- und B-Atome untereinander, so ist $\Phi < 0$ und Ordnungsbildung ist begünstigt, andernfalls, für $\Phi > 0$, besteht die Tendenz zur Entmischung.

Zur Beschreibung der Atomverteilung können Nahordnungs- oder Fernordnungsparameter benutzt werden. Die von Warren und Cowley /8,9/ eingeführten Nahordnungsparameter α_{mn} ,

$$\alpha_{mn} = 1 - \frac{p_{mn}^{AB}}{X_B} = 1 - \frac{p_{mn}^{BA}}{X_A} \quad (2.1)$$

beschreiben die Umgebung eines Atoms am Ort $\underline{R}^m$ mit Hilfe von Besetzungswahrscheinlichkeiten für Atome im Abstand $\underline{R}^n - \underline{R}^m$: p_{mn}^{AB} ist die bedingte Wahrscheinlichkeit, ein B-Atom bei $\underline{R}^n$ zu finden, wenn ein A-Atom am Ort $\underline{R}^m$ vorliegt. X_A bzw. X_B sind die Konzentrationen der A bzw. B-Atome, wobei $X_A + X_B = 1$. Definitionsgemäß ist $\alpha_{mn} = \alpha_0 = 1$; bei statistischer Verteilung sind alle anderen α 's Null. Werden gleiche Nachbarn bevorzugt (Entmischung), so ist z.B. $p_{01}^{AB} < X_B$ und der Nahordnungsparameter α_{01} für die 1. Nachbarschale ist positiv, für große Abstände gilt dann $\alpha_{0m \rightarrow \infty} \rightarrow 0$. Im Fall der Ordnungstendenz ($p_{01}^{AB} > X_B$) ist hingegen α_{01} negativ. Bei idealer Fernordnung nimmt der Betrag von α Extremwerte an, er springt von Schale zu Schale zwischen zwei festen positiven und negativen Werten, die durch die Ordnungsstruktur festgelegt sind.

Während die Nahordnungsparameter vor allem zur Beschreibung kurzreichweitiger Korrelationen in der Atomverteilung (Nahentmischung, Nahordnung) geeignet sind, dient zur Charakterisierung langreichweitiger Ordnung auch der Fernordnungsparameter S . Dazu werden die Gitterplätze unterteilt in α - und β -Plätze, die den A- bzw. B-Atomen zugewiesen werden. Bezeichnet r_α (r_β) den Bruchteil der α -(β -) Plätze, die richtig, d.h. mit A- (β -) Atomen belegt sind und ist w_α (w_β) die relative Anzahl der falsch belegten α - (β -) Plätze mit $w_\alpha + r_\alpha = 1$ ($w_\beta + r_\beta = 1$), so wird nach Bragg und Williams /10/ der Fernordnungsparameter S definiert zu

$$S = \frac{r_\alpha - X_A}{1 - X_A} = \frac{r_\alpha - X_A}{X_B} = \frac{r_\beta - X_B}{X_A} \quad (2.2)$$

Ideale Fernordnung bedeutet, daß das Untergitter der α -Plätze nur mit A-Atomen, das Untergitter der β -Plätze nur mit B-Atomen besetzt ist; d.h. $r_\alpha = 1 = r_\beta$, $S = 1$. Für die statistische Verteilung der Atome ist hingegen $r_\alpha = X_A$, $r_\beta = X_B$ und $S = 0$.

Bei dieser Definition ist die stöchiometrische Zusammensetzung der Legierung vorausgesetzt, d.h. es sind genauso viele A- bzw. B-Atome vorhanden wie α - bzw. β -Plätze. Bei nicht stöchiometrischer Zusammensetzung ist $S = 1$ nicht möglich, da immer Fehlbesetzung der Untergitter auftreten muß ($S < 1$). Für diesen Fall kann der Bragg-Williams-Fernordnungsparameter verallgemeinert werden, indem als zusätzliche Variable mit y_α bzw. y_β die relative Anzahl der α - bzw. β - Plätze eingeführt wird ($y_\alpha + y_\beta = 1$). Der Fernordnungsparameter ist dann definiert zu /8/:

$$S = \frac{r_\alpha - X_A}{y_\beta} = \frac{r_\beta - X_B}{y_\alpha} \quad (2.3)$$

Das bedeutet, daß für eine $L1_2$ Ordnungsstruktur (vgl. Abb. 1, S. 7, $y_\alpha = 0.75$, $y_\beta = 0.25$) mit 80% A-Atomen ($X_A = 0.8$) und 20% B-Atomen ($X_B = 0.2$) der Fernordnungsparameter maximal (d.h. für $r_\alpha = 1$ bzw. $r_\beta = \frac{4}{5}$) $S = 80\%$ betragen kann. Hat die Legierung die Zusammensetzung von 70% A- und 30% B-Atomen, ist höchstens $S = 93.3\%$ möglich. Für eine stöchiometrische ($y_\alpha = X_A$) A_3B -Legierung ist

$$S = 4r_\alpha - 3 \quad \left(\frac{3}{4} \leq r_\alpha \leq 1\right),$$

und für eine stöchiometrische A-B-Legierung ergibt sich

$$S = 2r_\alpha - 1 \quad \left(\frac{1}{2} \leq r_\alpha \leq 1\right).$$

2.2.2 Ni-Fe: Ordnendes Legierungssystem

Das Ni-Fe Phasendiagramm nach /19/ ist in der Abb. 3 gezeigt. Die nickelreichen Ni-Fe Legierungen (Permalloys) bilden bei hohen Temperaturen γ -Mischkristalle mit kubisch flächenzentrierter Struktur (Al-Struktur). Bei tieferen Temperaturen besteht die Tendenz zur Ordnungsbildung. In Legierungen mit etwa 75 at% Ni ist unterhalb von $T_c \approx 503^\circ\text{C}$ die Bildung einer Überstrukturphase, wie in Cu_3Au , möglich. Im Unterschied zu Cu_3Au besitzt jedoch nicht die Legierung mit stöchiometrischer Zusammensetzung die höchste Übergangstemperatur, sondern $\text{Ni}_{73}\text{Fe}_{27}$; dafür ist die magnetische Wechselwirkung maßgebend (s. z.B. /20/).

Die Ni_3Fe -Überstrukturphase hat die in der Abb. 1 auf S. 7 gezeigte L1_2 -Struktur, bei der im Fall der Ordnung die Ni-Atome die Flächenmitten und die Fe-Atome die Eckpunkte der fcc-Elementarzelle einnehmen.

Der Ordnungs-, Unordnungsübergang ist im Detail u.a. von Drijver, van der Woude und Radelaer /21/ untersucht worden. Es handelt sich um einen Phasenübergang 1. Ordnung, der durch Keimbildung und Keimwachstum erfolgt. Über die Vorbildung der Ordnung oberhalb T_c sowie die Entwicklung kurz unterhalb T_c gibt es auch Messungen der Nahordnungsparameter von Lefebvre et al /22/.

Das Wachstum der Nukleationskeime, das in der Ausbildung fernegeordneter Domänen resultiert, erfolgt im thermodynamischen Gleichgewicht nur sehr zögernd. Denn im Unterschied z.B. zu Cu_3Au , bei dem die Diffusion so schnell erfolgt, daß nach Abschrecken auf Raumtemperatur die Ordnungsstruktur weitgehend ausgebildet ist, verläuft in Ni_3Fe der Materietransport so langsam, daß nur durch sehr langsames Abkühlen im Bereich der Übergangstemperatur (s. z.B. /23/, $\approx 0.3^\circ/\text{h}$) oder - nach Abschrecken von $T > T_c$ auf $T < T_c$ - durch langes Tempern knapp unterhalb der Ordnungstemperatur merkliche Ordnungsbildung eintritt /24/.

3. Bestrahlungseffekte in konzentrierten Legierungen

Bestrahlungen von Legierungen lassen gegenüber reinen Metallen neue und vielfältige Aspekte erwarten. Sie betreffen sowohl die Defekterzeugung, wie z.B. das Verhalten der Stoßfolgen im Gitter mit unterschiedlichen Massen und die Produktion verschiedenartiger Defekte mit unterschiedlichen Eigenschaften, als auch die Defektreaktionen bei der Wanderung der Defekte. Auffälligste Erscheinungen sind dabei die Phasenumwandlungen, d.h. sowohl die Zerstörung der Legierungsphase (z.B. einer geordneten Phase) unter dem direkten Einfluß der Strahlung als auch die Phasenneubildung, wie z.B. Ordnungs- und Ausscheidungsbildung, wenn die Defekte beweglich sind. Die bestrahlungsinduzierte Diffusion kann dabei helfen, das System in den thermodynamischen Gleichgewichtszustand zu überführen, der allein durch thermisch aktivierte Diffusion nur sehr langsam zu erreichen ist. Zum Beispiel konnte im hier untersuchten Legierungssystem Ni-Fe nach Bestrahlung eine geordnete $\text{Ni}_{0.5}\text{Fe}_{0.5}$ -Phase nachgewiesen werden /25, 26/, die nach thermischem Anlassen bislang nicht beobachtet wurde. Diese Ordnungsphase (Cu-Au Typ) wurde außer nach Bestrahlung mit Neutronen ($> 10^{-2}$ dpa /25/) und Elektronen (> 4 dpa /26/) bei Temperaturen oberhalb Raumtemperatur interessanterweise auch in Meteoritengestein gefunden /27/. Solche Untersuchungen der Phasenstabilität unter Bestrahlung oder auch der bestrahlungsinduzierten Segregation erfordern meist hohe Bestrahlungsdosen und werden oft bei Temperaturen oberhalb Raumtemperatur durchgeführt. Da es Ziel dieser Arbeit ist, die einzelnen Defekte bei kleinen Defektkonzentrationen und tiefen Temperaturen zu untersuchen, wird im folgenden auf diese Experimente nicht weiter eingegangen, sondern auf einen Übersichtsartikel von Schulson /28/ verwiesen. Hier soll vielmehr nur kurz zusammengestellt werden, was aus entsprechenden Untersuchungen über das Defektverhalten in den vorliegenden NiFe- und NiCu-Legierungen und in vergleichbaren Legierungssystemen bekannt ist. Zunächst werden einige Aspekte bei der Erzeugung von Einzeldefekten, danach bei der Defektwanderung diskutiert.

Im Unterschied zu reinen Metallen können bei der Bestrahlung von Legierungen mehrere Defektarten, z.B. in einer binären Legierung A- und B-ZGA sowie im Falle der geordneten Legierung auch verschiedene LS (i.e. auf verschiedenen Untergittern) erzeugt werden, wenn die beim Stoß an die Gitteratome übertragene Energie hoch genug ist. Daraus resultieren i.a. kompliziertere Defektmuster: Je nach Wechselwirkung mit den Nachbarn können die ZGA Paare (Hanteln), z.B. vom AA-, AB- und BB-Typ bilden, die entsprechend der Atomverteilung in der Nachbarschaft auch verkippt sein können. Die Population der ver-

schiedenen Hanteltypen nach Tieftemperaturbestrahlung kann außer von der Art der Bestrahlung sowohl von den Massen der Atome als auch von der Struktur der Legierung abhängen. Der Einfluß der Struktur soll am Beispiel einer A_3B Legierung mit $L1_2$ -Überstrukturphase etwas ausführlicher dargestellt werden (vgl. Abb. 4). Die während der Defekterzeugung auftretenden fokussierenden Ersetzungsstoßfolgen bilden sich im fcc Gitter bevorzugt entlang der $\langle 110 \rangle$ - und $\langle 100 \rangle$ -Richtungen aus. Für die Diskussion von Ordnungseffekten sind die $\langle 110 \rangle$ -Richtungen interessant, von denen es in der $L1_2$ -Überstruktur 2 Typen gibt,

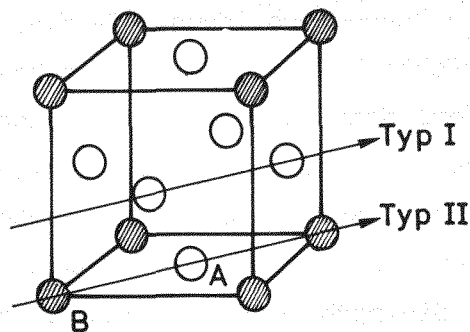


Abb. 4

$L1_2$ -Überstruktur: Kennzeichnung der unterschiedlich besetzten $\langle 110 \rangle$ -Richtungen

nämlich solche, die nur A-Atome enthalten und andere, in denen A- und B-Atome hintereinander angeordnet sind. Eine Ersetzungsstoßfolge entlang einer solchen A-B-Reihe hinterläßt in einer geordneten Substanz eine Anzahl fehlgeordneter Plätze, da sie A-Atome auf B-Plätze (und umgekehrt) verlagert. Die Länge und Zahl solcher Ersetzungsstoßfolgen bestimmt dann wesentlich den Grad der Entordnung. Für geordnetes Ni_3Mn gibt es Messungen der mittleren Zahl der vertauschten Plätze pro Ersetzungsstoßfolge bei Tieftemperaturbestrahlung; je nach Bestrahlungsart schwanken die Angaben zwischen 2 für Elektronenbestrahlung (55 eV mittlere übertragene Energie) /29/ und 66 bis 132 für thermische Neutronenbestrahlung /30,31/, bei der eine mittlere Energie von ca. 450 eV an das Primäratom übertragen wird.

Da die Ersetzungsstoßfolgen für die Defekterzeugung von großer Bedeutung sind, kann man erwarten, daß die Schädigung bei verschiedenen Ordnungszuständen einer Legierung unterschiedlich ist. Um dies festzustellen, reichen Widerstandsmessungen nicht aus. Gilbert et al /32/ haben zwar nach Bestrahlung von geordnetem und ungeordnetem Cu_3Au für die ungeordnete Legierung eine um einen Faktor 1.8 höhere Restwiderstandsänderung erhalten. Dies kann aber sowohl auf einem höheren Widerstand pro Defekt beruhen als auch auf unter-

schiedlichen Defektkonzentrationen. Um auf unterschiedliche Schädigung für die verschiedenen Ordnungszustände schließen zu können, muß deshalb die Defektkonzentration unabhängig bestimmt werden.

Experimente, die direkt auf die Struktur der erzeugten ZGA schließen lassen, sind in reinen Metallen vielfach unternommen worden, für konzentrierte Legierungen aber noch nicht. In reinen Metallen ist als stabile Struktur der Eigenzwischengitteratome immer eine Hantellage gefunden worden, bei der das Eigenzwischengitteratom mit einem zweiten Atom ein Molekül bildet, dessen Schwerpunkt auf einem Gitterplatz liegt. In fcc-Metallen wie Ni und Cu ist dies eine $\langle 100 \rangle$ -Hantelkonfiguration. Bei so ähnlichen Atomen wie Ni und Cu wird man dieselbe Struktur auch für eine Ni-Cu-Legierung erwarten. Hinweise darauf, daß die ZGA in Ni-Cu in Hantelkonfigurationen erzeugt werden, ergeben sich aus ihrer Wanderung nach dem Interstitialcy-Mechanismus (s.u.).

Während der Defektwanderung werden in Legierungen wesentliche Unterschiede zu reinen Metallen beobachtet. In reinen Metallen sind ZGA immer beweglicher als LS, d.h. sie können schon bei tiefen Temperaturen ($< 100\text{K}$) wandern und langreichweitige Diffusion ausführen, während LS erst bei viel höheren Temperaturen (etwa ab Raumtemperatur) diffundieren können. Dieses Verhalten ist auf Legierungen nicht ohne weiteres übertragbar. Denn detaillierte Untersuchungen von verdünnten Legierungen haben z.B. gezeigt, daß ZGA-Fremdatomkomplexe sehr unterschiedliche Bindungsenergien und Wanderungsenergien haben. Von den verdünnten Randsystemen der hier untersuchten Legierungen wird in CuNi praktisch kein Effekt der Fremdatome auf die ZGA-Beweglichkeit beobachtet /33,34/. In NiCu und NiFe /35/ wird dagegen zu Beginn der Erholungsstufe II eine Detrappingstufe beobachtet. Das bedeutet, daß in diesen Legierungen die Wanderung der zunächst eingefangenen ZGA noch vor den LS erfolgt. Im Gegensatz dazu wird in CuBe /36/ und AlFe /37/ kein Detrapping der ZGA und keine Wanderung des Gesamtkomplexes bis in Stufe III beobachtet, d.h. eine langreichweitige Wanderung der getrappten ZGA wird hier erst bei gleichen oder höheren Temperaturen als die Wanderung von LS ermöglicht. Bei den meisten bisher untersuchten konzentrierten Legierungen wie z.B. in NiCu /13,14/, Cu₃Au /32/, α -CuZn /38,39/, β -CuZn /40/ wird bei der Defektwanderung wie in reinen Metallen eine höhere Beweglichkeit des ZGA festgestellt. Jedoch scheint in der Legierung α -AgZn das Verhalten in den Defektmobilitäten gerade umgekehrt zu sein. Halbwachs et al /3/ haben mittels Zener-Relaxationsmessungen in α -AgZn mit 30 at% Zn die Defektwanderungsenergien bestimmt und finden für die LS eine deutlich kleinere Wanderungsenergie als für das ZGA; bei Untersuchungen im Hochspannungselektronenmikroskop an einer

Ag-9at%-Zn-Legierung wurde dasselbe Verhalten beobachtet /4/. Nach Untersuchungen von Schüle /41/ scheint dieser Sachverhalt aber noch nicht endgültig geklärt zu sein.

Detaillierte Untersuchungen der Defekterholungskinetik, die bei reinen Metallen z.B. durch Restwiderstandserholungsmessungen erfolgen, sind in Legierungen oft erschwert. Wegen der vielen verschiedenen Nachbarschaftskonfigurationen der ZGA, die zu einem Spektrum von Anregungsenergien führen, erfolgt die Erholung mehr oder weniger kontinuierlich und über einen breiten Temperaturbereich. Wenn während des Anlassens zusätzlich noch Phasenumwandlungen, wie z.B. Nahordnungsbildung auftreten, überlagern sich den Widerstandsbeiträgen der Defekte die Effekte der geänderten Matrix. Diese Beiträge sind i.a. nur schwer zu trennen. Die Phasenumwandlungen äußern sich während des Anlassens z.B. in einem Übererholen des elektrischen Restwiderstandes, wie z.B. in NiCu, Cu₃Au und α - und β -Messing. In einigen ternären Fe-Cr-Ni-Legierungen wird während der Erholung (ab 100K) zunächst auch ein starkes Anwachsen des Widerstandes auf weit höhere Werte als nach Bestrahlung festgestellt, was auf die Ausbildung von Mikrodomänen zurückgeführt wird; erst wenn diese Mikrobereiche bei hohen Temperaturen ($\approx$ 800K) genügend groß sind, zeigt sich Übererholen des Widerstandes /42/.

Eine interessante Frage bei der Untersuchung des Wanderungsverhaltens der Defekte ist, ob die Phasenumwandlungen schon durch ZGA erfolgen können oder ob sie allein auf die Diffusion von LS zurückzuführen sind. Dieses Problem wurde z.B. am Legierungssystem NiCu ausführlich von Poerschke, Wollenberger und Mitarbeitern untersucht /13,14,15/. Hier tritt Superannealing im Widerstand schon bei sehr tiefen Temperaturen ab 100K auf. Da LS bei diesen Temperaturen noch nicht beweglich sind - Leerstellendiffusion wird erst ab 250K /15/ möglich -, kommen nur ZGA für den Atomtransport in Frage. Als Diffusionsmechanismus wird die Wanderung einer $\langle 100 \rangle$ -Hantelstruktur angenommen, die in einem kombinierten Translations-Rotationssprung die Umorganisation der Atome ermöglicht; ein solcher Drehsprung ist in reinen Metallen leicht aktivierbar /43/. Dieser Interstitialcy-Diffusionsmechanismus wird auch in anderen Legierungssystemen zur Erklärung von Nahordnungsbildung diskutiert /28/.

Derselbe ZGA-Wanderungsmechanismus kann auch in einer $L1_2$ -Ordnungsstruktur zur Ordnungsbildung führen, wie in der Abb. 5 schematisch dargestellt ist. Durch kombinierte Translations-Rotations-Sprünge der gekennzeichneten Han-

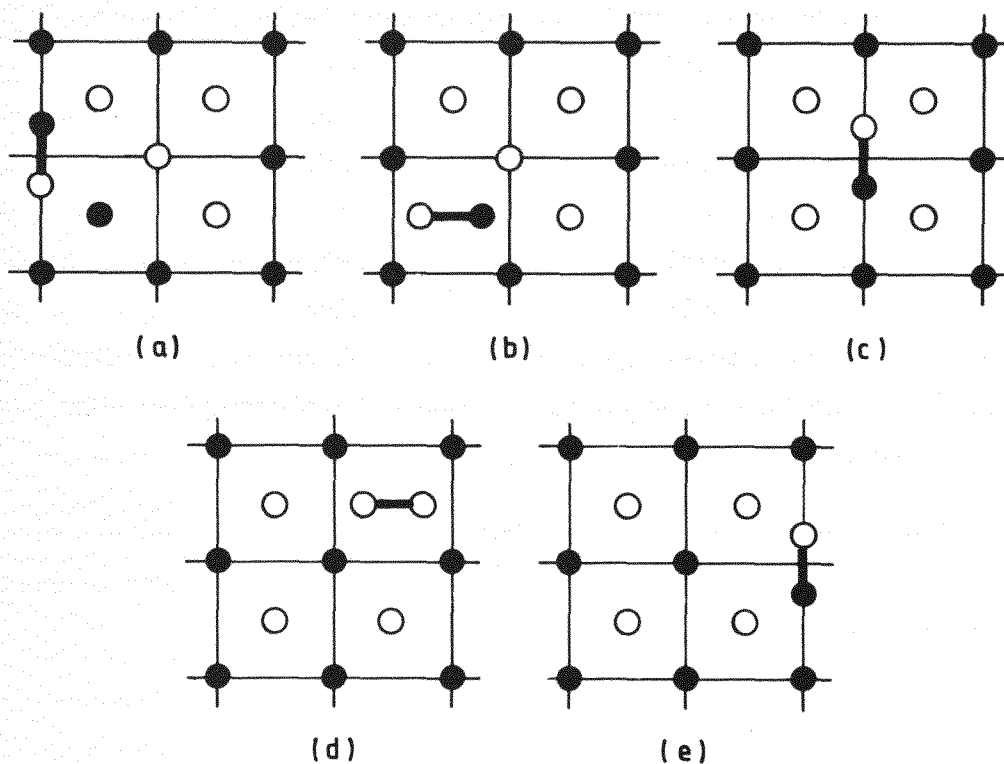


Abb. 5

Wanderung einer $[100]$ -Hantel in einer fehlgeordneten $L1_2$ -Überstruktur (schematisch).

Die A-Atome (●) belegen bei vollständiger Ordnung die durch Striche verbundenen α -Untergitterplätze, die B-Atome (○) die dazwischenliegenden β -Untergitterplätze. Durch die Wanderung der gekennzeichneten Struktur wird die Ordnung verbessert.

telstruktur werden A-Atome von einem β -Untergitterplatz und B-Atome von einem α -Untergitterplatz (Bild (a)) auf die zugehörigen "richtigen" Untergitter (Bild (d)) angeordnet; in Bild (e) liegt die ursprüngliche A-B-Hantelstruktur wieder vor, so daß sich bei äquivalenten Bedingungen wie in (a) der Ordnungsprozeß fortsetzen kann.

Wie aus der Abbildung 5 hervorgeht, erfordert der Ordnungsprozeß die Verschiebung beider Atomsorten. Wenn die Atome unterschiedlich groß sind oder die Aktivierungsenergien sehr verschieden sind (wie z.B. in α -Cu-Zn) /38/), kann die Effektivität dieses Interstitialcy-Mechanismus zur Phasenumwandlung beeinträchtigt sein. Einzelheiten dazu werden bei Schulson /28/ und Liou und Wilkes /44/ diskutiert. Im Cu_3Au wird ein Beitrag der ZGA-Wanderung zur Ordnungseinstellung nicht beobachtet. Hier tritt Übererholung des Widerstandes erst bei ca. 260K ein; sie wird auf LS Wanderung zurückgeführt /32/.

Das Ausmaß der Übererholung durch bestrahlungsinduzierte Diffusion hängt von der Zahl der einbestrahlten Defekte und von dem Ausgangszustand der Legierung vor der Bestrahlung ab. In diesem Zusammenhang war ein bemerkenswertes Ergebnis der Bestrahlungsexperimente an Cu_3Au /32/, daß die thermisch (vermeintlich) ideal geordnete Legierung nach e^- -Bestrahlung auch Übererholung, d.h. eine Zunahme der Ordnung, zeigte; ein solcher Effekt wurde auch in $\beta\text{-CuZn}$ beobachtet /40/. Dieses Verhalten zeigt, daß thermische Ordnungsbehandlung auch in leicht ordnenden Legierungen offenbar nicht zur vollständigen Ordnungsbildung führt; deshalb sind entsprechende Literaturangaben eher als Relativwerte zu verstehen.

Um den Einfluß der Bestrahlung auf den Ordnungsgrad der hier untersuchten Ni_3Fe Legierungen festzustellen, wurden daher auch Messungen des Ordnungsparameters durchgeführt.

4. Diffuse Röntgenstreuung an Kristallen mit Defekten

Die Theorie der diffusen Röntgenstreuung und ihre Anwendung zum Studium von Punktdefekten und Defektagglomeraten ist in einem Übersichtsartikel von Dederichs umfassend dargestellt worden /45/. Hier sollen nur einige im Rahmen dieser Arbeit zum Verständnis notwendige theoretische Grundlagen der diffusen Streuung an Kristallen mit Defekten zusammengestellt werden. Dabei werden nur die durch Bestrahlung erzeugten Frenkeldefekte (ZGA und LS) in Betracht gezogen, d.h. die diffusen Streubeiträge eines Kristalls ohne Fehlstellen, wie z.B. die Unordnungs- (Laue-)Streuung oder Size-Effekt-Streuung in Legierungskristallen, werden als Streuung der Matrix (Untergrund) angesehen. Dem entspricht im Experiment die Zuordnung der nach Elektronenbestrahlung erhöhten diffusen Streuintensität in der Nähe der Braggreflexe allein den ZGA und LS, da Änderungen in der Untergrundstreuung aufgrund der Auswahl der Legierungen (kleiner Misfit, ähnliche Streufaktoren, vgl. Kap. 1) vernachlässigbar sind.

Die durch Elektronenbestrahlung im Kristall erzeugten Defekte haben die folgenden Auswirkungen auf das Röntgenstreubild. Die Defekte verursachen Verschiebungen der Atome aus den idealen Gleichgewichtslagen in andere Gleichgewichtslagen. Der Effekt kann beschrieben werden durch die Entstehung eines neuen "mittleren" Gitters; dies äußert sich in einer Verschiebung der Braggreflexe des idealen Gitters und kann durch die Messung der Gitterparameter manifestiert werden. Zusätzlich gibt es in diesem mittleren Gitter noch Störungen durch die einzelnen Defekte, vor allem in deren Umgebung; daraus resultiert diffuse Streuintensität.

Die Informationen, die man mit Hilfe diffuser Streuintensitätsmessungen insbesondere in der Nähe der Braggreflexe gewinnen kann, werden in den nun folgenden beiden Abschnitten zunächst für Einzeldefekte, danach für Defektcluster aufgezeigt.

4.1 Diffuse Röntgenstreuung an Einzeldefekten

Unter den Voraussetzungen, daß die Defektkonzentration c klein ist und die Defekte statistisch verteilt sind, ist der Wirkungsquerschnitt S (pro Atom) für die diffuse Streuung das Produkt aus der Defektkonzentration und der Streuamplitude für einen Defekt (Einzeldefektnäherung); nahe am Braggreflex ist S gegeben durch /45/:

$$S = c \left| f_K^D - f_K \frac{L_K}{c} + i f_K \underline{K} \tilde{\underline{t}}(\underline{q}) \right|^2 \quad (4.1)$$

Dabei ist $\underline{K}$ der Streuvektor und $\underline{q}$ gibt die Differenz zum nächstgelegenen Gittervektor $\underline{h}$, so daß $\underline{K} = \underline{q} + \underline{h}$ gilt; f_K ist der atomare Streufaktor. Die Streuamplitude setzt sich zusammen aus der Streuamplitude f_K^D des Defekts selbst, einer Streuamplitude $i f_K \underline{K} \tilde{\underline{t}}(\underline{q})$ aufgrund des langreichweitigen Verschiebungsfeldes ($\tilde{\underline{t}}(\underline{q})$) des Defekts und dem Anteil $f_K \underline{K} / c$, der durch den statischen Debye-Waller Faktor L_K :

$$L_K = c \sum_{\underline{n}'} (1 - \cos(\underline{K} \underline{t}^{\underline{n}'})) \quad (4.2)$$

ausgedrückt werden kann und die starken Verschiebungen $\underline{t}^{\underline{n}'}$ der Atome in Defektnähe berücksichtigt.

Die Fouriertransformierte $\tilde{\underline{t}}(\underline{q})$ des langreichweitigen Verschiebungsfeldes des Defektes, das bei großen Abständen $\underline{R}$ mit $1/R^2$ abfällt, liefert einen mit $\underline{q}^{-1}$ variierenden Term in der Streuamplitude und macht deshalb nahe am Reflex ($\underline{q} \ll \underline{h}$, $\underline{K} \approx \underline{h}$) den Hauptbeitrag zur Streuintensität aus. Dieser zu $\underline{q}^{-2}$ proportionale Anteil, die Huangstreuintensität, ist gegeben durch

$$S_H = c |f_K|^2 \underline{h} \tilde{\underline{t}}(\underline{q})^2 \quad (4.3)$$

Für kubische Kristalle erhält man mit Hilfe der Elastizitätstheorie:

$$S_H = c |f_K|^2 \left(\frac{\underline{h}}{\underline{q}} \right)^2 \frac{1}{V_c} (\gamma^{(1)} \pi^{(1)} + \gamma^{(2)} \pi^{(2)} + \gamma^{(3)} \pi^{(3)}) \quad (4.4)$$

wobei V_c das Atomvolumen ist. Die Faktoren $\gamma^{(i)}$ hängen von den elastischen Konstanten des Materials und den Richtungen von $\underline{q}$ und $\underline{h}$ ab /45,46/. Nur für hochsymmetrische Richtungen $\underline{q}$ und symmetrische Reflexe $\underline{h}$ ergeben sich einfache Ausdrücke. In der Tabelle 1, S. 19 sind einige Ergebnisse zusammengestellt, die später bei der Auswertung Verwendung finden.

Reflex $\underline{h}$	Richtung von $\underline{q}$	$\gamma^{(1)}$	$\gamma^{(2)}$	$\gamma^{(3)}$
(h00)	[100]	$\frac{1}{3c_{11}^2}$	$\frac{2}{3c_{11}^2}$	0
	[010]	0	0	$\frac{1}{2c_{44}^2}$
	[011]	0	0	$\frac{1}{2c_{44}^2}$
(hh0)	[110]	$\frac{2}{3} \gamma^{(3)}$	$\frac{1}{3} \gamma^{(3)}$	$\frac{2}{(c_{11}+c_{12}+2c_{44})^2}$
	[001]	0	0	$\frac{1}{2c_{44}^2}$
	[110]	0	$\frac{2}{(c_{11}-c_{12})^2}$	0

Tabelle 1: Faktoren $\gamma^{(i)}$ für Gl. (4.4)

Die $\pi^{(i)}$ sind quadratische Ausdrücke der Komponenten des Dipolkraftsensors $\underline{P}$:

$$\begin{aligned}
 \pi^{(1)} &= \frac{1}{3} \left(\sum_i P_{ii} \right)^2 = \frac{1}{3} (\text{Sp} \underline{P})^2 \\
 \pi^{(2)} &= \frac{1}{6} [(P_{11}-P_{22})^2 + (P_{11}-P_{33})^2 + (P_{22}-P_{33})^2] \\
 \pi^{(3)} &= \frac{2}{3} (P_{12}^2 + P_{23}^2 + P_{13}^2)
 \end{aligned} \tag{4.5}$$

Der Parameter $\pi^{(1)}$ ist der Spur des Doppelkrafttensors proportional und charakterisiert damit die Stärke der Defekte. Die Größen $\pi^{(2)}$ und $\pi^{(3)}$ sind ein Maß für die Abweichungen des elastischen Verschiebungsfeldes von der kubischen Symmetrie. Bei der Herleitung der Beziehungen (4.5) wird vorausgesetzt, daß bei Defekten mit geringerer als kubischer Symmetrie deren Symmetrieachsen gleichmäßig über alle äquivalenten Orientierungen im Kristall verteilt sind.

Charakteristisch für die Huangstreuung ist nach Gl. (4.4) der starke Anstieg der Intensität bei Annäherung an den Reflex ($\underline{q} \rightarrow 0$) mit q^{-2} ; darin kommt die Proportionalität des langreichweitigen Verschiebungsfeldes zu $\frac{1}{R^2}$ zum Ausdruck.

Die Intensitätsverteilung der Huangintensität um die Braggreflexe wird über die Koeffizienten $\gamma^{(i)}$ von den Richtungen $\underline{q}$ und $\underline{h}$, sowie durch die Defekt-

parameter $\pi^{(i)}$ bestimmt. Diese Richtungsabhängigkeit manifestiert sich in Isointensitätslinien, die in der Abb. 6, S. 21, schematisch für einen kubischen Defekt in isotroper Matrix dargestellt sind. Dafür sind die Linien gleicher Intensität sog. Huangkugeln, die den reziproken Gitterpunkt tangieren; senkrecht zu dem reziproken Gittervektor tritt keine diffuse Streuintensität auf. Hat der Defekt andere, z.B. orthorhombische Symmetrie, so wird auch Intensität senkrecht zu $\underline{h}$ erwartet, wie in der Abb. 6 gestrichelt angedeutet ist.

Die Defektgrößen $\pi^{(i)}$ sind nach Gl. (4.4) prinzipiell aus der Messung in drei verschiedenen Richtungen von $\underline{g}$ bezüglich $\underline{h}$ bestimmbar. In Nichtsymmetrierichtungen und an nichtsymmetrischen Reflexen ergeben sich aber nur in speziellen Fällen günstige Kombinationen, die es erlauben, aus den Messungen die $\pi^{(i)}$ mit ausreichender Genauigkeit festzulegen, zumal $\pi^{(1)}$ ($\propto$ Defektstärke) der dominierende Term ist. Deshalb lassen sich die Defektgrößen praktisch am besten bestimmen, wenn geeignete Kombinationen von $\underline{g}$ und $\underline{h}$ so gefunden werden können, daß aufgrund der Faktoren $\gamma^{(i)}$ jeweils nur ein Parameter zu S_H , Gl. (4.4), beiträgt, der dann separat gemessen wird.

Wie die Tabelle 1 zeigt, erhält man z.B. bei Messung an (hh0) Reflexen in $\underline{g} = [001]$ -Richtung allein $\pi^{(3)}$, während man in $\underline{g} = [1\bar{1}0]$ -Richtung am selben Reflextyp $\pi^{(2)}$ mißt.

Indem auf diese Weise die Intensitätsverteilung in einigen Richtungen an bestimmten Reflexen ausgemessen wird, kann über die Defektparameter $\pi^{(i)}$ die Symmetrie des langreichweitigen Verschiebungsfeldes bestimmt und damit auf die Defektstruktur geschlossen werden, wenn die Werte mit Modellrechnungen für verschiedene Defektlagen verglichen werden. Die Abbildung 7, S. 21, zeigt die in einem ffc-Gitter möglichen stabilen ZGA-Positionen zusammen mit der für die Defektsymmetrie charakteristischen Form des Doppelkrafttensors. Man erkennt aus dem Vergleich mit der Tabelle 1 und Gl. (4.4), wie die Defektsymmetrie festgelegt werden kann, z.B. ermöglichen die Messungen in $[100]$ - und $[110]$ -Richtungen an (hh0)-Reflexen zu entscheiden, ob der Defekt kubische (O_I -Lagen, $\pi^{(2)} = 0 = \pi^{(3)}$), tetragonale (H_O -Lage mit $\pi^{(2)} \neq 0$, $\pi^{(3)} = 0$), trigonale (H_T -Lage mit $\pi^{(2)} = 0$, $\pi^{(3)} \neq 0$) oder orthorhombische (C , H_C -Lagen) Struktur hat.

Außer der Defektstrukturbestimmung ermöglicht die Messung der Huangstreuintensität die Bestimmung weiterer Defektgrößen wie Defektstärke und Absolutkonzentration der Defekte, wenn zusätzlich die Gitterparameteränderung ge-

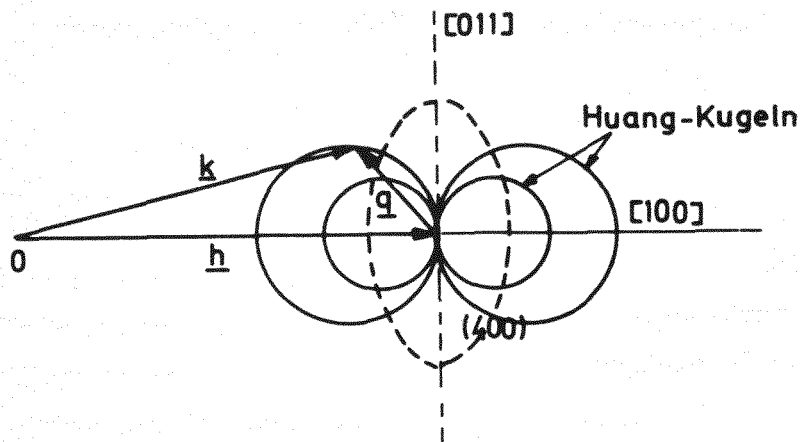


Abb. 6

Schematische Darstellung der Linien gleicher Intensität um einen (h00)-Reflex

- a) ——— Für einen kubischen Defekt im isotropen Medium
b) - - - - - Für einen orthorhombischen Defekt

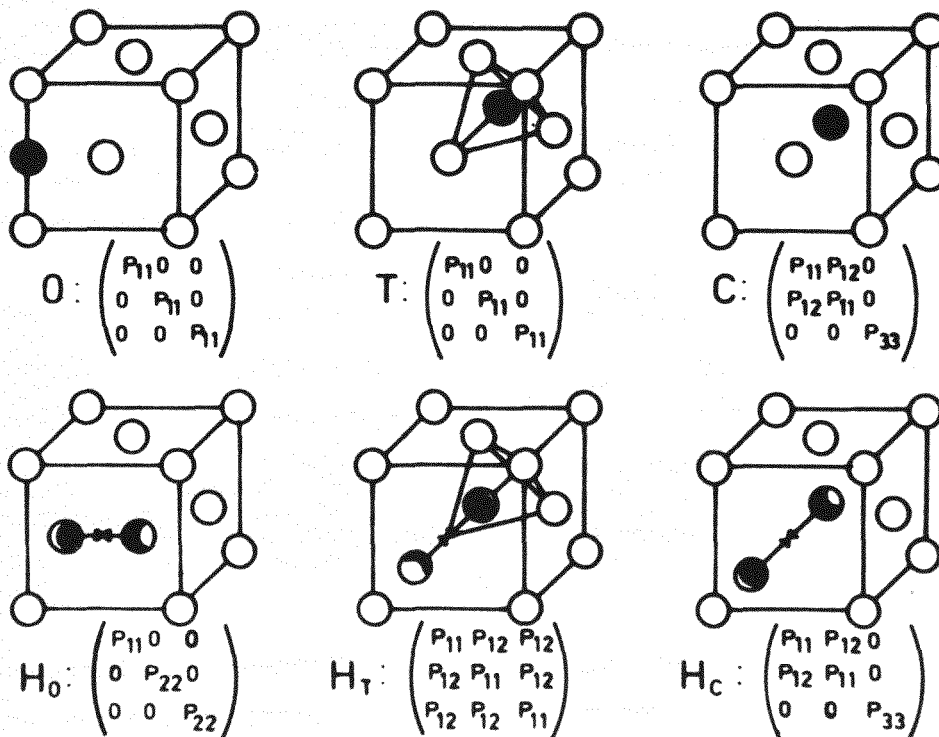


Abb. 7

Sechs mögliche Konfigurationen für ZGA in einem fcc-Gitter. Darunter ist die charakteristische Form des Dipoltensors gegeben: O = Oktaederlage, T = Tetraederlage, C = Crowdionlage, H_O = <100>-Hantellage, H_T = <111>-Hantellage, H_C = <110>-Hantellage.

messen wird. Die Gitterparameteränderung $\Delta a/a$ ist gegeben durch

$$\frac{\Delta a}{a} = \frac{\Delta V}{V} = \frac{c \sqrt{3\pi(1)}}{V_c (c_{11} + 2c_{12})} \quad (4.6)$$

wobei c_{11} und c_{12} elastische Konstanten sind. Da S_H nach Gl. (4.4) und (4.5) proportional zu $c(\text{Sp}_{\underline{P}})^2$ ist und die Gitterparameteränderung zu $c(\text{Sp}_{\underline{P}})$, gewinnt man aus der Kombination beider Messungen sowohl c als auch $\text{Sp}_{\underline{P}}$. Damit läßt sich dann das Relaxationsvolumen $\frac{\Delta V^{\text{Rel}}}{V_c}$,

$$\frac{\Delta V^{\text{Rel}}}{V_c} = \frac{\Delta a/a}{c} \quad (4.7)$$

sowie mit der gemessenen bestrahlungsinduzierten Restwiderstandsänderung $\Delta \rho_0$ der Frenkeldefektwiderstand

$$\rho_F = \frac{\Delta \rho_0}{c} \quad (4.8)$$

bestimmen.

Da beim Vorliegen von Frenkeldefekten nicht nur ZGA sondern auch LS zum gemessenen Gitterparameter und zur Huangstreuung beitragen, muß man, um die spezifischen Größen für ZGA (Index I) zu erhalten, den LS-Beitrag (Index V) berücksichtigen:

$$\frac{\Delta a}{a} = \frac{c}{V_c (c_{11} + 2c_{12})} (|\text{Sp}_{\underline{P}_I} + \text{Sp}_{\underline{P}_V}|) \quad (4.9)$$

$$c(\text{Sp}_{\underline{P}})^2 = c(\text{Sp}_{\underline{P}_I})^2 + c(\text{Sp}_{\underline{P}_V})^2 \quad (4.10)$$

Weil S_H proportional zu $(\text{Sp}_{\underline{P}})^2$ ist, ist die diffuse Streuung an ZGA viel stärker als an LS (etwa um einen Faktor 22 bei $\Delta V_I^{\text{Rel}} = 1.4 V_c$ und $\Delta V_V^{\text{Rel}} = -0.3 V_c$).

Bisher ist nur der in $\underline{q}$ symmetrische Anteil der diffusen Defektstreuung aus Gl. (4.1) diskutiert worden, der mit der zu q^{-2} proportionalen Huangstreuung in Reflexnähe den größten Beitrag liefert. Ein weiterer, antisymmetrischer Beitrag $\propto q^{-1}$, der am Reflex sein Vorzeichen ändert, kommt von der Interferenz der Huangstreuamplitude mit den (in dem kleinen $\underline{q}$ -Bereich praktisch $\underline{q}$ -unabhängigen) ersten beiden Termen in Gl. (4.1); er ist gegeben durch /45/

$$S_{\text{anti}} = 2c |f_K|^2 (\tilde{h}(\underline{q})) \left[\frac{L_K}{c} - \operatorname{Re} \left(\frac{f_K^D}{f_K} \right) \right] \quad (4.11)$$

Experimentell läßt sich dieser antisymmetrische Streubeitrag von der Huangstreuung separieren, indem die halbe Differenz der gemessenen Intensitäten in gleichen Abständen beiderseits des Braggpeaks gebildet wird.

Für Defekte mit großen lokalen Verschiebungen wie z.B. ZGA, ZGA-Cluster und Versetzungsringe liefert die eckige Klammer in Gl. (4.11) einen positiven Beitrag, da dafür die Streuung an den verschobenen Atomen groß wird, so daß L_K (vgl. Gl. (4.2)) die Streuung am Defekt selbst (f_K^D) überwiegt. Dann läßt sich direkt aus dem Vorzeichen von S_{anti} auf das Vorzeichen des Verschiebungsfeldes schließen. Für Defekte wie ZGA, die als Dilatationszentren wirken, ist der Beitrag von S_{anti} zu S bei Streuwinkeln, die größer als der Braggwinkel sind, positiv, bei kleineren Winkeln ($\underline{q} \cdot \underline{h} < 0$) negativ.

4.2 Diffuse Röntgenstreuung an Defektagglomeraten

Wenn die nach Tieftemperaturbestrahlung erzeugten Frenkeldefekte beweglich sind, beeinflussen ihre Reaktionen die Huangstreuung in charakteristischer Weise. Die Defektreaktionen während der thermischen Erholung sind sowohl Defektrekombinationen als auch Agglomeratbildung von ZGA und LS. Rekombination von Defekten führt zu einer Abnahme der diffusen Intensität, während Clusterbildung sich in einem starken Anstieg der Huangstreuung äußert. Da die Huangstreuintensität durch das langreichweitige Verschiebungsfeld der Defekte bestimmt und der Defektstärke $c(\text{SpP})^2$ proportional ist, können Agglomerate als neue, stärkere Streuzentren angesehen werden. Unter der Annahme, daß sich die Verschiebungen von N Zwischengitteratomen, die ein Agglomerat aufbauen, linear überlagern, ist die Defektstärke des Clusters das N -fache der Einzeldefektstärke. Da die Konzentration der Cluster $c^{\text{Cl}} = c/N$ ist, folgt:

$$S_H^{\text{Cl}} = \frac{c}{N} N^2 S_H^{\text{SI}} = c N S_H^{\text{SI}} \quad (4.12)$$

Die Huangstreuintensität von ZGA Clustern ist in diesem Modell proportional dem N -fachen Beitrag eines Einzelzwischengitteratoms S_H^{SI} zur Streuung. Damit ist die Huangstreuung sehr empfindlich bei Agglomeratbildung oder Änderung der Agglomeratgröße, die aus S_H^{Cl} bestimmt werden kann. Da gleichzeitig zur Agglomeratbildung während der Erholung auch Defektrekombination stattfinden

kann, muß man zur Bestimmung von N noch auf die Defektkonzentration der EZGA normieren. Als Maß für die relative Defektkonzentration wird gewöhnlich der Restwiderstand benutzt; mögliche Unsicherheiten ergeben sich dabei aus der Tatsache, daß sich der Widerstand von Einzeldefekten in Agglomeraten ändern kann. Man erhält für die Zahl der ZGA im Cluster:

$$N(T) = \frac{S_H^{Cl}(T) \cdot \Delta \rho}{S_H \cdot \Delta \rho(T)} \quad (4.13)$$

worin S_H und $\Delta \rho$ die Werte vor Clusterbildung und die mit T gekennzeichneten Größen die entsprechenden Daten bei der Erholungstemperatur T sind.

Die Annahme der linearen Superposition der Defektstärken der ZGA im Cluster, die gleiche Relaxationsvolumina des EZGA (ΔV_I^{Rel}) und des ZGA im Cluster ($\Delta V_I^{Rel}(N)$) bedeutet, ist i.a. nicht erfüllt; bei Kenntnis dieser Größen kann für $N(T)$ eine Korrektur vorgenommen werden, indem in Gl. (4.13) noch mit $(\Delta V_I^{Rel}/V_I^{Rel}(N))^2$ multipliziert wird. Zu beachten ist ferner, daß die ZGA-Cluster immer eine Größenverteilung besitzen, so daß N eine effektive Agglomeratgröße darstellt. Darin werden nach Gl. (4.12) die größeren Agglomerate stärker gewichtet.

Mit zunehmender Clustergröße wird der Gültigkeitsbereich der Huangstreuung immer näher an den Braggreflex, d.h. zu kleineren $|q|$ (entsprechend zu größeren Abständen vom Defektzentrum) verschoben. Wenn q größer ist als eine durch $|q| > 1/R_0$ festgelegte Grenze, wobei R_0 einen Radius von der Größe der Defektcluster darstellt, überwiegt die Streuung an dem Defekt selbst und an seiner stark gestörten Umgebung. Diese Streuintensität kann unter der Annahme eines elastisch isotropen Verschiebungsfeldes durch die asymptotische oder Stokes-Wilson Näherung beschrieben werden:

$$S_{sw} = c |f_h|^2 \frac{|\Delta V_I|}{4\pi j} \frac{h}{v_c^2 q^4} \Phi_{sw} \left(\frac{q \cdot h}{|q| \cdot |h|} \right) \quad (4.14)$$

Darin ist j die Eshelby-Konstante mit $j = 3(1-\nu)/(1+\nu)$; ν ist die Poissonzahl. Die Winkelfunktion Φ_{sw} kann analytisch nur für isotrope Defekte berechnet werden /45,46/, sie hat dafür bei $q \parallel h$ den Wert $\Phi_{sw} = 147$ und für $q \perp h$ ist $\Phi_{sw} = 95.5$.

Im Unterschied zur Huangstreuung ist die Intensität in diesem asymptotischen Bereich proportional zu q^{-4} (anstatt zu q^{-2}) und sie hängt nur linear (anstatt quadratisch) von der Defektstärke ($\propto c \Delta V_I = c^{Cl} \Delta V^{Cl}$) ab. Dieses generelle Verhalten sollte sich gemäß Gl. (4.14) unabhängig von der Symmetrie der Defekte zeigen, also z.B. auch für stark anisotrope Defektagglomerate wie Versetzungsringe, da sich im einzelnen dann nur der Wert von Φ_{sw} ändert.

Um noch quantitative Aussagen z.B. über Größe, Art und Anordnung der Defektagglomerate aus der Clusterstreuung zu erhalten, ist man letztlich auf den Vergleich mit numerischen Rechnungen angewiesen. Von Ehrhart et al /47/ ist kürzlich eine Methode angegeben worden, wie mit Modellrechnungen die diffuse Streuintensität von Versetzungsringen berechnet werden kann. Die Rechnungen

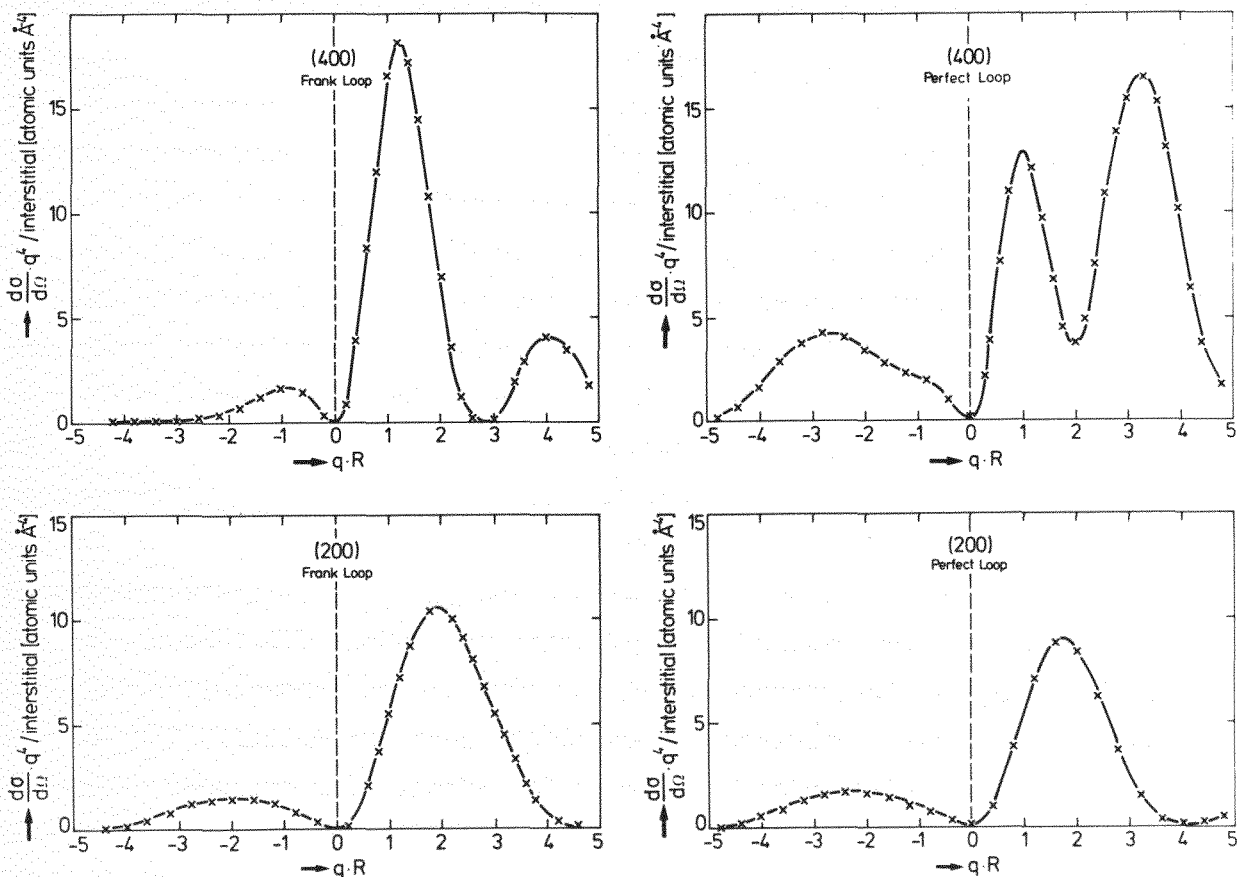


Abb. 8

Berechnete Streuintensität für Versetzungsscheibchen mit Radien $R = 20 \text{ \AA}$ an (400)- und (200)-Reflexen mit $q \parallel [100]$ in Nickel. Die Bilder auf der linken Seite zeigen die Streuintensitäten von Frank-Loops auf $\{111\}$ -Ebenen mit dem Burgersvektor $\underline{b} = \frac{a}{3}(111)$, die Bilder rechts von perfekten Loops auf $\{111\}$ -Ebenen mit $\underline{b} = \frac{a}{2}(110)$.

zeigen, daß dem q^{-4} -Abfall der Intensität je nach Art des Loops charakteristische Oszillationen überlagert sind. Solche Modulationen wurden schon früher aufgrund analytischer Näherungen von Trinkaus /48/ diskutiert. Die diskrete Struktur des Intensitätsverlaufs ist an einigen Beispielen nach den Rechnungen von Ehrhart /47/ in den Abbildungen 8a) bis d) für zwei verschiedene Reflexe, (200) und (400), für perfekte und Frank-Loops mit dem Radius R in Nickel gezeigt.

Dazu ist die Intensität mit q^{-4} multipliziert und über $q \cdot R$ aufgetragen. Die absolute Intensität ist der Zahl der ZGA im Loop proportional. Die Strukturen skalieren mit dem Loopradius, deshalb läßt sich aus der Lage der Extremwerte auf die Loopgröße schließen. Während für ZGA-Loops die höhere Intensität im Bereich $q \cdot R > 0$ charakteristisch ist, erhält man die Streuung für LS-Loops in guter Näherung, wenn man positive und negative Werte von $q \cdot R$ vertauscht.

5. Experimentelle Details

5.1 Probenpräparation

Von allen Metallen wurden dünne einkristalline Proben für die Röntgenmessungen und außerdem Widerstandsproben präpariert. Einen Überblick über die Beschaffenheit der Proben wird in der Tabelle 2, S. 28, gegeben.

Die verwendeten Nickelproben mit [100]-Oberflächennormalen stammen aus zwei verschiedenen Chargen. NiI erhielten wir aus einem von SEMI-Elements bezogenen Einkristall, die anderen Proben NiII, III, IV wurden aus einem im Institut für Materialentwicklung des IFF-KFA Jülich gezüchteten Kristall präpariert. Zunächst wurden aus den Einkristallen funkenerosiv Plättchen geschnitten und planerodiert. Diese noch bis zu etwa 1 mm dicken Plättchen von ca. $21 \times 9 \text{ mm}^2$ Fläche wurden dann zunächst weiter mechanisch abgedünnt, d.h. planparallel geschliffen und poliert bis auf die Dicke von 130-170 μm . Danach wurden sie, um die geschädigte Oberflächenschicht zu entfernen, noch in einer Magnesiumperchloratlösung elektropoliert. Die auf diese Weise präparierten Proben waren zuletzt ca. 90-100 μm bzw. NiI 150 μm dick. Die Röntgenproben hatten eine Mosaikhalbwertsbreite von 0.2° bei NiI, die übrigen Proben waren mit 0.15° Halbwertsbreite kristallographisch etwas besser. Aus dem Material derselben Dicke und Orientierung wie die Röntgenproben wurden auch Widerstandsproben (ca. 0.7 mm breit) geschnitten, an die vier Platindrähte durch Punktschweißen befestigt wurden. Zur Bestrahlung von NiIV wurden außerdem Widerstandskontakte an der Röntgenprobe selbst angebracht, um mögliche Unterschiede in der Defektkonzentration zwischen Röntgen- und Widerstandsprobe auszuschließen, wie sie bei Probe I aufgetreten sind. Das elektrische Restwiderstandsverhältnis $R_{\text{RT}}/R_{\text{He}}$ der Ni-Proben betrug 101 (NiI) bzw. 110 (NiII, III, IV), obwohl die Proben der verschiedenen Chargen durchaus unterschiedliche Verunreinigungen enthielten. Die funkenmassenspektroskopische Analyse wies für NiI Silizium als hauptsächliche Verunreinigung mit 180 ppmat aus, wohingegen sonstige metallische (15 ppmat) und interstitielle Verunreinigungen (C, N, O $\approx$ 70 ppmat) gering waren. Bei NiII, III, IV war Aluminium mit 320 ppmat der Hauptbestandteil der metallischen (insgesamt $\approx$ 330 ppmat) Verunreinigungen; die Konzentration interstitiell gelöster Fremdatome betrug etwa 30 ppmat.

Legierungseinkristalle des Systems Ni-Cu mit 37.7 at% Cu in Form von Plättchen mit [100]-Oberflächen wurden freundlicherweise vom HMI-Berlin (Herrn

P r o b e n	Abmessungen		Orientierung		Mosaik- breite	$\frac{R_{RT}}{R_{He}}$	ρ_{He} [$\mu\Omega cm$]
Ni	NiI	158	21x11	<100>	<001>	101	0.069
	NiII	100	} 21x 9	<100>	<001>	110	0.064
	NiIII	100					
	NiIV	90					
Ni(62.3at%)- Cu(37.7at%)	NiCuI	155	} 20 x 8	<100>	<001>	1.4	33.93
	NiCuII	155					
Ni ₃ Fe ungeordnet	Ni ₃ FeI	75	} 8x4	<110>	<001>	3.2	5.13
	Ni ₃ FeII	75		<110>	<110>		
Ni ₃ Fe geordnet	Ni ₃ FeI	75	} 8x4	<110>	<001>	2.6	4.61
	Ni ₃ FeII	75					

Tabelle 2: Probeneigenschaften

Poerschke) zur Verfügung gestellt. Nach dem mechanischen Polieren wurden die Ni-Cu Proben mit stark verdünnter Salpetersäure angeätzt. Dabei bildeten sich schon nach kurzer Zeit streifenförmige Ätzriefen auf der Oberfläche, was auf chemische Inhomogenität der Kristalle hinwies. Obwohl daraufhin umfangreiche Anlassversuche unternommen wurden, konnten die Proben nicht wesentlich besser homogenisiert werden. Zunächst wurden die Proben bei 600°C, dann bei 900°C für jeweils ca. 2 h im Vakuum ($<1 \cdot 10^{-7}$ Torr) geglüht; auf diese Weise vorbehandelte Proben wurden für die Messungen verwendet. Bei weiteren Glühversuchen mit einer Testprobe wurde eine bessere Homogenisierung auch nicht erreicht. Entsprechend den chemischen Inhomogenitäten wurde eine starke Verbreiterung der Braggreflexe beobachtet (s. Tab. 2), die eine Gitterparametermessung mit der geforderten Meßgenauigkeit ($<1 \cdot 10^{-4}$) nicht erlaubte. Darüber hinaus trat auch eine hohe diffuse Untergrundstreuung auf, die im Vergleich zu reinem Nickel die Meßgenauigkeit herabsetzte (vgl. Abb. 23).

Ni₃Fe Einkristalle wurden uns von der Universität München, Sektion Physik (Herrn Scherber) überlassen. Aus dem Ausgangsmaterial konnten vier Röntgenproben und mehrere Widerstandsproben auf die oben beschriebene Weise (hier elektropoliert mit stark verdünnter Salpetersäure) präpariert werden, von denen die Hälfte einer thermischen Ordnungsbehandlung unterzogen wurde. Zunächst wurden alle Proben bei 700°C für 2,5 h im Vakuum ($<1 \cdot 10^{-7}$ Torr) getempert und anschließend schnell (mit einer Abkühlrate von ca. 3°C/sec bei Temperaturen im Bereich der Ordnungstemperatur von $T_c \approx 500^\circ\text{C}$) auf Raumtemperatur abgekühlt. Auf diese Weise erhielten wir die im folgenden als ungeordnet ($S = 0$) bezeichneten Proben. Im Röntgenstreubild dieser ungeordneten Kristalle gab es keinen Hinweis auf einen Überstrukturreflex.

Anschließend wurden zwei der Röntgenproben und einige Widerstandsproben unterhalb T_c angelassen. Das Ordnungsprogramm entstand in Anlehnung an die Temperversuche von Morris et al /24/ und war in Vorversuchen mit polykristallinem Material getestet worden. Insgesamt wurden die Proben 710 h im Vakuum ($<1 \cdot 10^{-7}$ Torr) bei verschiedenen Temperaturen unterhalb der Ordnungstemperatur, beginnend bei 490°C (25 h), getempert, wobei die Anlasszeit mit sinkender Temperatur (zuletzt 450°C) sukzessiv verlängert wurde.

Die relative Widerstandabnahme durch die thermische Ordnungsbehandlung betrug im Mittel $(R^{S=0} - R^S) / R^{S=0} = 27\%$, wobei $R^{S=0}$ bzw. R^S für den Meßwert vor bzw. nach dem Ordnungstempeln steht. Mit Hilfe der Literaturdaten für die spezifischen Widerstände nach /23,49/ läßt sich der Ordnungsparameter

zu $S=0.7$ (± 0.01) abschätzen /50/. Eine ausführliche Diskussion der mit verschiedenen Meßmethoden erhaltenen Werte für S erfolgt im Kapitel 5.3.

Das erneute Entordnen durch Aufheizen einer Widerstandsprobe auf 700°C und anschließendes Abschrecken zeigte, daß der so erhaltene ungeordnete Zustand innerhalb der Meßgenauigkeit reproduzierbar war. Diese Reproduzierbarkeit zeigt, daß die Proben während des langen Ordnungsglühens keine Verunreinigungen aufgenommen hatten.

Beim Vergleich der Restwiderstandverhältnisse von geordneter und ungeordneter Probe (s. Tabelle 2), die innerhalb einer Fehlerbreite von ca. ± 0.2 für mehrere Proben reproduziert wurden, fällt auf, daß die strukturell geordneten Proben offenbar signifikant kleinere Werte zeigen. Da sich bei Raumtemperatur die spezifischen Widerstände der beiden Proben typen mehr unterscheiden als bei 6K, deutet dieses Verhalten auf Abweichungen von der Mathiessen-Regel hin. Der relativ hohe Restwiderstandswert der geordneten Legierung (vgl. Tab. 2) könnte durch zusätzliche Streuung an Domänengrenzen hervorgerufen werden. Die Domänengröße konnte aus der Breite der Reflexe zu 230 (± 40) Å bestimmt werden.

5.2 Meßmethoden

5.2.1 Widerstandsmessungen

Die Probenwiderstände wurden nach dem Vierpolverfahren bei Raumtemperatur mit 0.1 A Meßstrom, im flüssigen Helium auch mit 1 A gemessen. Die hierbei möglichen Meßfehler sind kleiner als die systematischen Fehler bei der Bestimmung des Geometriefaktors $\frac{l}{A}$, mit dem wir aus den Meßwerten die Restwiderstandsdaten berechnen. Der Geometriefaktor wird mit Literaturdaten für den spezifischen Widerstand bei Raumtemperatur bestimmt, da eine direkte Messung wegen der kleinen Probenabmessungen und der ungleichmäßigen Form zu ungenau ist. Für Nickel wurden die Literaturwerte /51/ entnommen.

Bei den Legierungen ist zur Festlegung des Geometriefaktors die identische stöchiometrische Zusammensetzung der aktuellen Probe und der Legierung, für die Literaturdaten verfügbar sind, eine wichtige Voraussetzung. Für $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$ wurde für den spezifischen Widerstand bei Raumtemperatur $\rho = 47.5 \mu\Omega\text{cm}$ verwendet /13,52/. Bei Ni_3Fe ist nach /23/ $\rho^{S=0} = 16.4 \mu\Omega\text{cm}$ (20°C) benutzt worden. Damit wurde $\frac{l}{A}$ für beide später benutzten Widerstandsproben

im ungeordneten Zustand vor dem Ordnungstempern festgelegt. Weil somit für beide Probentypen dieselben Literaturdaten eingehen, sind relative Restwiderstandsdaten der unterschiedlich geordneten Proben davon unabhängig und die $\Delta\rho_0$ -Werte der bestrahlten Proben sind direkt vergleichbar.

Eine mögliche Unsicherheit ergibt sich allerdings noch dadurch, daß - nachdem die Probenwiderstände nach der Ordnungsbehandlung mehrmals gemessen worden waren - bei der endgültigen Montage auf den Probenhalter ein Zuleitungsdraht auf der geordneten Widerstandsprobe durch Punktschweißen neu befestigt werden mußte. Die dadurch möglichen strukturellen Änderungen sind aber lokal begrenzt und werden deshalb als klein angenommen.

5.2.2 Messung der diffusen Streuintensität

Alle Röntgenmessungen wurden im Heliumgas bei 6K durchgeführt. Für Nickel und für die Nickel-Kupfer-Legierungen wurde $\text{CuK}_{\alpha 1}$ -Strahlung verwendet; für Nickel-Eisen-Legierungen ist $\text{CuK}_{\alpha 1}$ -Strahlung wegen des hohen Fluoreszenzuntergrundes nicht geeignet, deshalb wurde hier mit $\text{MoK}_{\alpha 1}$ -Strahlung gemessen. Alle Messungen erfolgten in Reflexionsanordnung.

Die Messungen der Röntgenstreuintensitäten mit $\text{CuK}_{\alpha 1}$ -Strahlung erfolgten mit einer von Ehrhart und Schilling in /53,54/ näher beschriebenen Apparatur. Die Meßanordnung ist in der Abbildung 9 schematisch dargestellt. Die von einem Kupfertarget einer 6 KW-Drehanodenröhre emittierte Strahlung fällt

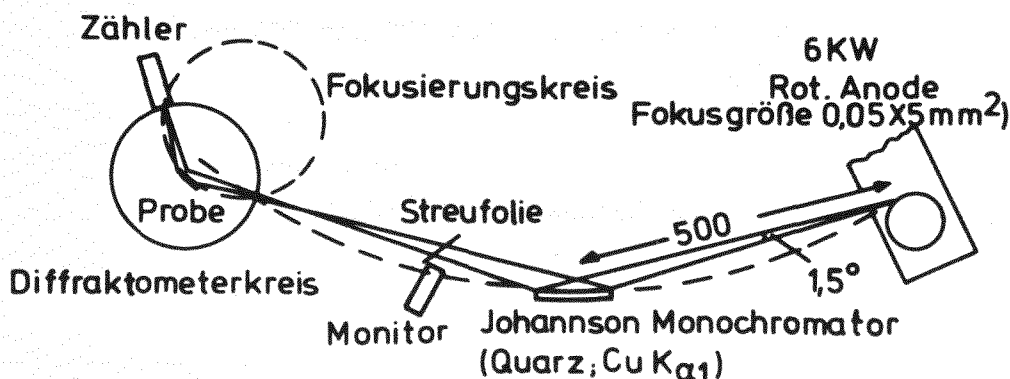


Abb. 9

Schematische Darstellung der Röntgenmessung in semifokussierender Meßanordnung

auf einen Quarzmonochromator vom Johannsontyp, der $\text{CuK}_{\alpha 1}$ -Strahlung selektiert. Die Probe, die sich in einem Kryostaten auf einem Siemens-Diffraktometer befindet, steht entweder im Fokus des Monochromators - diese Anordnung wurde bei den Ni-Messungen und bei NiCuII gewählt -, oder sie reflektiert die Röntgenstrahlen fokussierend auf den Zähler (semifokussierende Anordnung, s. Abb. 9, verwendet bei NiCuI). Je nach Meßanordnung sind wegen der Strahldivergenzen, die vor dem Proportionalzähler durch Sollerspalt und Blenden begrenzt werden, Auflösungskorrekturen notwendig. Die Verschiebung des Auflösungsvolumens im reziproken Gitter parallel zum Streuvektor geschieht durch eine gekoppelte Drehung von Probe und Zähler im Verhältnis 1:2 ($\theta/2\theta$ -Scan), die senkrechte Verschiebung durch die Drehung der Probe bei feststehendem Zähler (ω -Scan).

Die Röntgenmessungen an Ni_3Fe mit $\text{MoK}_{\alpha 1}$ -Strahlung erfolgten an einem anderen Meßplatz mit einer 12 KW Drehanodenröhre. Während die Meßanordnung der in Abb. 9 skizzierten ähnlich ist, wird hier mit einem ortsempfindlichen Zähler gemessen. Zur Steuerung des Diffraktometers, Aufnahme und Auswertung der Meßdaten ist ein Rechnersystem angeschlossen.

Die Röntgenstrahlung wird von einem Quarzmonochromator (Johann-Typ) monochromatisiert ($\text{MoK}_{\alpha 1}$) und fällt nach der Reflexion an der Probe und dem Passieren einer Sollerspaltanordnung auf das mit einem Methan-Xenon Gasgemisch gefüllte Zählrohr mit Aluminiumfenster. Dieser Detektor befindet sich in einem Abstand von 48 cm von der Probe und registriert die gestreute Strahlung über eine effektive Zählfadlänge von 6 cm, der 1024 Kanäle zugeordnet werden. Die Signalposition (Kanalnummer) wird über die angeschlossene Elektronik aus dem Vergleich der Pulsanstiegszeiten auf beiden Seiten des Zählrohres festgelegt und die pro Kanal gemessene Intensität wird registriert. Das Ortsauflösungsvermögen des Zählrohres beträgt etwa 400 bis 500 μm .

Die Abb. 10 auf Seite 33 zeigt schematisch die Detektorpositionen während eines Meßzyklus im reziproken Gitter. Zum Start der Messung wird der Reflex zunächst so justiert, daß für den Braggwinkel θ_B das Peakmaximum auf die Zählmitte (Kanal 512, Punkt M, s. Abb.) fällt. Dies ist die in der Abb. 10 als Stellung 0 bezeichnete Position, bei der das Zählerband, senkrecht zum reflektierten Strahl $\underline{K}_1$ stehend, in der Messebene ein Kreissegment des Ewaldkreises aufspannt, wobei die Braggbedingung $\underline{K} = \underline{G}$ für die Zählmitte gilt. Während der Messung wird dann ein $\theta/2\theta$ -Scan durchgeführt, bei der Probe und Zähler, beginnend bei einem Reflexionswinkel $2\theta_B - 2\Delta_1$ (s. Position 1, Abb.)

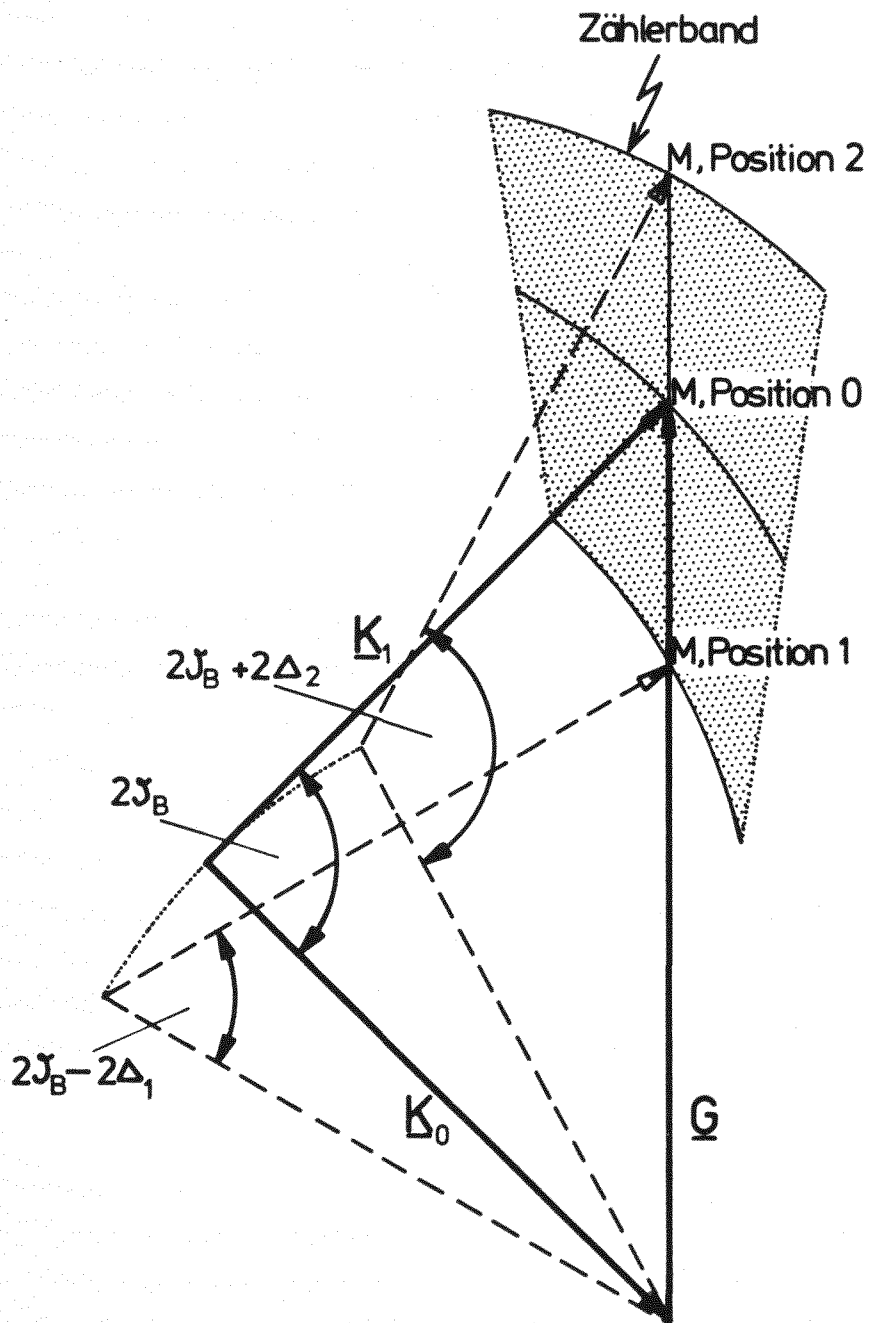


Abb. 10

Messung mit dem ortsempfindlichen Zählrohr im $\vartheta/2\vartheta$ -Scan (schematisch)

gekoppelt durch die Reflexionsstellung bis zu einem Reflexionswinkel $2\vartheta_B - 2\Delta_2$ (Position 2) gedreht werden. Dabei bewegt sich die Zählermitte immer parallel zum reziproken Gittervektor $\underline{G}$, während die Randkanäle des Zählerbandes sukzessive auch die Intensitäten anderer Streurichtungen bezüglich $\underline{G}$ aufnehmen. In jedem Meßschritt werden die gezählten Pulse jedes Kanals aufgenommen und auf Magnetplatte gespeichert. Typische Meßschritte sind $2\Delta = 0.25^\circ$ bei einer Winkelvariation von $\pm 4^\circ$ in 2ϑ symmetrisch um den Braggpeak.

Nach Abschluß der Messung geschieht die Auswertung der Daten per Computerprogramm, indem zu vorgegebener Meßrichtung im reziproken Gitter die entsprechenden Kanalnummern gesucht werden, deren Intensität als Funktion des Abstands zum Braggreflex zur Auswertung gelangt. Um die Statistik zu verbessern, wird dabei die Intensität über eine vorgebbare Anzahl benachbarter Kanäle gemittelt.

Um die gemessene Streuintensität in absolute Einheiten umzurechnen, werden Eichmessungen mit Polysterene (C_8H_8) durchgeführt. Die Umrechnung erfolgt nach

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{\left(\frac{\rho_E}{M_E}\right)}{\left(\frac{\rho}{M}\right)} \frac{d_{eff}^E}{d_{eff}} \frac{p_E}{p(DWF)} \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_E \frac{I}{I_E} \quad (5.1)$$

wobei I und I_E die gemessenen Intensitäten sind. Der Index E bezieht sich auf den Eichstreuer. Die effektiven Dicken der ausgeleuchteten Substanzen berechnen sich nach /53/ zu

$$d_{eff} = \frac{1}{2\mu} (1 - e^{-2\frac{\mu D}{\sin\vartheta}}) = : \frac{1}{2\mu} \frac{1}{k_{Abs}} \quad (5.2)$$

für symmetrische Reflexionsanordnung (ϑ = Reflexionswinkel, D = Probendicke) mit dem asymptotischen Wert $\frac{1}{2\mu}$; der Absorptionskorrekturfaktor k^{Abs} ist für $CuK_{\alpha 1}$ -Strahlung $k^{Abs} \approx 1$. Bei asymmetrischer Reflexionsanordnung ist

$$d_{eff} = \frac{1}{\mu(1 + \frac{\sin(\vartheta-\Phi)}{\sin(\vartheta+\Phi)})} (1 - e^{-\mu D (\frac{1}{\sin(\vartheta-\Phi)} + \frac{1}{\sin(\vartheta+\Phi)})}) = : \frac{1}{2\mu} \frac{1}{k_{Abs}} \quad (5.3)$$

mit Φ als dem Winkel zwischen der Oberflächennormalen der Probe und der Normalen der reflektierenden Netzebenenschar. Für die charakteristischen Größen des Eichstreuers (Molekulargewicht $M_E = 104,16$) wurden die Daten von Sparks /55/ verwendet ($(\frac{d\sigma}{d\Omega})_E = 65$ eu). ρ sind die Dichten, μ die linearen Absorptionskoeffizienten, bzw. μ/ρ die Massenabsorptionskoeffizienten der Substanzen. Es ist $(\mu/\rho)_E = 4.036 \text{ cm}^2/\text{g}$ für $\text{CuK}_{\alpha 1}$ -Strahlung und $(\mu/\rho)_E = 0.6025 \text{ cm}^2/\text{g}$ für $\text{MoK}_{\alpha 1}$ -Strahlung. Die Eichungen wurden bei $\vartheta = 50^\circ$, $2\vartheta = 100^\circ$ für $\text{CuK}_{\alpha 1}$ -Strahlung in Reflexion, bei $\text{MoK}_{\alpha 1}$ -Strahlung ($2\vartheta = 42.2^\circ$) auch in Transmission durchgeführt.

Die Polarisationsfaktoren p wurden für Mosaikkristalle nach Guinier /11/ und die thermischen Debye-Waller Faktoren (DWF) nach Guinier mit Literaturdaten für die Debyetemperaturen ($\text{Ni}, \text{NiCu}/56/$, $\text{Ni}_3\text{Fe}/57/$) berechnet. Für die Massenabsorptionskoeffizienten wurden die Werte aus den International Tables /58/ sowie von /59/ benutzt.

Alle zur Umrechnung in absolute Einheiten verwendeten Daten sind in der Tabelle 3, S. 36, zusammengestellt, in die auch die weiteren zur Auswertung benötigten Zahlenwerte eingetragen sind. Dabei sind die Atomformfaktoren (korrigiert für Dispersion) nach /58/ angegeben, die elastischen Konstanten bei tiefen Temperaturen wurden /60/ für Ni und Ni-Cu und /57/ für Ni_3Fe entnommen. Für die Berechnung der Atomvolumina V_c wurden neben Literaturdaten ($\text{Ni}/56/$, $\text{NiCu}/61/$, $\text{Ni}_3\text{Fe}/23/$) auch eigene Meßwerte des Gitterparameters herangezogen.

Die Streuung bestrahlungsinduzierter Defekte erhält man nach Subtraktion des Untergrundes, d.h. der gemessenen Streuintensitäten vor Bestrahlung bzw. nach vollständiger Erholung von der Streuintensität des Kristalls mit Defekten nach der Bestrahlung. Vorausgesetzt wird dabei, daß durch Bestrahlung die diffuse Untergrundstreuung nicht verändert wird. Die Untergrundkurven vor Bestrahlung und nach vollständiger Erholung stimmten innerhalb von ca. 5% überein; zur Auswertung wurde der Mittelwert verwendet. Für die Defektstreuung sind aufgrund der Zählstatistik Schwankungen bis 4% (am größten in einiger Entfernung vom Reflex, wo die Zählraten kleiner sind) möglich, bei Ni_3Fe wegen der kleineren Zählraten bis ca. 7%.

	Strahlung	Reflex	Bragg- winkel ϑ_B [Deg]	$ f ^2$ [eu]	DWF	p	k_{Abs}	$\frac{\mu}{\rho}$ [cm ² /g]	V_c^2 [Å ⁶]	c_{11} c_{12} c_{44} [10 ¹² dyn cm ⁻²]		
Ni	CuK $_{\alpha 1}$	200 400	26.0 61.2	264.7 73.3	0.983 0.932	0.725 0.684	1 1	48.95	118.03	2.612	1.508	1.317
Ni _{62.3} Cu _{37.7}	CuK $_{\alpha 1}$	200 400	25.7 60.3	294.8 85.8	0.982 0.929	0.729 0.671	1 1	50.44	124.7	2.238	1.469	1.124
Ni ₃ Fe (S=0)	MoK $_{\alpha 1}$	220 440 660 620	16.4 34.4 58.0 39.2	240.8 72.7 39.3 61.3	0.967 0.873 0.736 0.843	0.856 0.575 0.606 0.531	1 1 1 0.620	44.575	124.57	2.476	1.517	1.266
Ni ₃ Fe (S=0.7)	MoK $_{\alpha 1}$	220 440 660 620 110 330	16.4 34.4 58.1 39.3 8.1 25.1	240.8 72.7 39.3 61.3 $ f_{\text{Ni}} - f_{\text{Fe}} ^2$ 4.43 1.38	0.967 0.875 0.741 0.847 0.992 0.928	0.856 0.575 0.606 0.531 0.962 0.712	1 1 1 0.620 1 1	44.575	124.36	2.553	1.531	1.305

Tabelle 3: Daten der gemessenen Reflexe und Konstanten für die Auswertungen

5.2.3 Messung der Gitterparameter

Die Gitterparameter wurden nach der Bond-Methode /62/ vor Bestrahlung und während des thermischen Erholungsprogramms (außer im Fall des Ni-Cu) mit derselben Apparatur gemessen, mit der auch die diffusen Streuintensitätsmessungen durchgeführt wurden. Dazu wurde der Röntgenstrahl möglichst scharf kollimiert. Die Gitterparameter bzw. Gitterparameteränderungen wurden aus

$$a = \frac{\lambda \sqrt{h^2 + k^2 + l^2}}{2 \sin \vartheta}, \quad \frac{\Delta a}{a} = \Delta \vartheta \cot \vartheta \quad (5.4)$$

bestimmt. Die Meßgenauigkeit bei der Bond-Methode ist um so besser, je höher der Braggwinkel ϑ ist, deshalb wurde bei den gegebenen Probenorientierungen immer in asymmetrischer Reflexionsanordnung gemessen. Die wesentliche Fehlerquelle dabei war, vor allem bei den Legierungen, die Güte der Einkristalle, die die Schärfe des Diffraktionspeaks bestimmt. Deshalb wurden Messungen jeweils an mehreren Probenorten durchgeführt.

Die Messungen an Nickel erfolgten am (420)-Reflex ($2\vartheta=157^\circ$ für $\text{CuK}_{\alpha 1}$ -Strahlung); der relative Fehler für den Mittelwert der Gitterparameteränderung direkt nach Bestrahlung betrug ca. 7%. Bei Ni_3Fe ($\text{MoK}_{\alpha 1}$ -Strahlung) war der Meßfehler größer, etwa 15%. Hier wurde an (664)-Reflexen ($2\vartheta=126^\circ$) bei Proben mit [001]-Drehachse, sonst am (840)-Reflex ($2\vartheta=139^\circ$) gemessen.

Die Fehler in $\frac{\Delta a}{a}$ gehen bei der Berechnung der Defektstärke nach Gl. (4.6) linear, für die Defektkonzentration, Gl. (4.7), aber quadratisch ein. Sie bestimmen hauptsächlich die Unsicherheiten in den Werten von $\frac{\Delta V}{V}$ und ρ_F .

5.3 Bestimmung des Fernordnungsparameters

Um den Ordnungszustand der Ni_3Fe -Proben zu charakterisieren, bestehen sowohl die Möglichkeiten, eigene Meßwerte des Widerstandes und des Gitterparameters mit Literaturdaten zu vergleichen, als auch unabhängig von Referenzdaten aus Messungen der integralen Intensität der Überstrukturreflexe den Fernordnungsparameter S zu bestimmen. Während alle diese Methoden sowohl vor der Bestrahlung als auch nach der vollständigen thermischen Erholung angewandt werden können, sind nur die Messungen der integralen Intensitäten geeignet, wenn der Kristall bestrahlungsinduzierte Defekte enthält, die zusätzliche Änderungen von ρ bzw. a verursachen. Auf die durch Bestrahlung hervorgerufenen Ordnungsparameteränderungen wird ausführlich im Kapitel 8.2 eingegangen; hier sollen nur die Verfahren zur Bestimmung des Fernordnungsparameters beschrieben und ihre Konsistenz an Hand der Meßergebnisse für die unbestrahlte bzw. vollständig erholte Probe diskutiert werden.

5.3.1 Bestimmung des Fernordnungsparameters aus der Widerstandsmessung

Mit der relativen Widerstandsabnahme um $R^{S=0} - R^S / R^{S=0} = 27\%$ nach der thermischen Ordnungsbehandlung gegenüber dem ungeordneten Zustand läßt sich mit Hilfe der semiempirischen Beziehung /50/

$$S^2 = \frac{\rho^{S=0} - \rho^S}{\rho^{S=0} - \rho^{S=1}} = \frac{\frac{R^{S=0} - R^S}{R^{S=0}}}{\frac{\rho^{S=0} - \rho^{S=1}}{\rho^{S=0}}} \quad (5.5)$$

bei Kenntnis der spezifischen Widerstände $\rho^{S=0}$ und $\rho^{S=1}$ für die ungeordnete bzw. vollständig geordnete Legierung der erreichte Ordnungsgrad abschätzen. Nach /23/ beträgt bei Raumtemperatur $\rho^{S=0} = 16.4 \mu\Omega\text{cm}$; schreibt man der bisher größten beobachteten spezifischen Widerstandsabnahme von $9 \mu\Omega\text{cm}$ /49/ den Ordnungsgrad $S=1$ zu, d.h. $\rho^{S=1} = 7.4 \mu\Omega\text{cm}$, so berechnet man für die vorliegenden Proben den Fernordnungsparameter zu $S=0.7 (\pm 0.01)$. Unsicherheiten dieses Wertes resultieren hier aus möglichen Unterschieden in der Zusammensetzung der Proben gegenüber denen der zitierten Autoren.

5.3.2 Bestimmung des Fernordnungsparameters aus der Gitterparametermessung

Die Gitterkonstante a von Ni_3Fe Kristallen nimmt mit zunehmendem Ordnungsgrad der Legierung ab. Die Autoren Turchi, Calvayrac et al /57/ haben diesen Zusammenhang für eine $\text{Ni}_{0.758}\text{Fe}_{0.242}$ -Legierung untersucht; die entsprechenden Daten sind in der Tabelle 4 eingetragen. Zum Vergleich enthält die Tabelle 4 außerdem Literaturdaten für eine Ni_3Fe -Legierung nach Wakelin und Yates /23/ und die Meßwerte der Gitterparameter für die hier untersuchten beiden Proben (abgeschreckte Probe und thermisch vorbehandelte Probe).

Gitterparameterwerte a [Å] bei 20°C			
L i t e r a t u r d a t e n			Meßwerte der vorliegenden Ni_3Fe -Proben
Ordnungsgrad S	Turchi et al $\text{Ni}_{0.758}\text{Fe}_{0.242}$ /57/	Wakelin/Yates $\text{Ni}_{0.75}\text{Fe}_{0.25}$ /23/	
0.0	3.5533	3.5544	abge- schreckte : 3.5547 Probe ($\pm 1 \cdot 10^{-4}$)
0.3	3.5524		
0.6	3.5515		vorge- ordnete : 3.5533 Probe ($\pm 1 \cdot 10^{-4}$)
1.0	3.5511	3.5522	

Tabelle 4: Meßwerte der Gitterparameter an Ni_3Fe -Proben bei Raumtemperatur und Vergleich mit Literaturdaten

Vergleicht man die Literaturwerte der zitierten Autoren, so zeigen sich beim selben Ordnungsgrad Unterschiede für die Gitterparameter. Diese sind nach /23/ auf die nur geringfügig unterschiedlichen Zusammensetzungen der Legierungen zurückzuführen. Wenn man den hier an der ungeordneten Probe gemessenen Wert mit den Untersuchungen der Konzentrationsabhängigkeit von Wakelin und Yates /23/ vergleicht, so ergibt sich für diese Probe ein Nickelgehalt von 74.8% anstatt der nominellen 75at% Nickel.

Obwohl die Absolutwerte von a stark mit der Zusammensetzung variieren, ist der Unterschied für die Ordnungsgrade $S=0$ und $S=1$ davon unabhängig (s. Tabelle). Vergleicht man die gemessenen Gitterparameter der ungeordneten und

der thermisch verbehandelten Probe mit den Daten von Turchi et al, so ergibt die Interpolation den Wert $S=0.5(\pm 0.04)$ für den Fernordnungsgrad der vorgeordneten Probe, also einen deutlich kleineren Wert, als aus den Widerstandsmessungen ($S=0.7$) bestimmt wurde.

Da die Gitterparameter an verschiedenen Proben gemessen wurden, kann die Diskrepanz durch Konzentrationsunterschiede der Proben erklärt werden. Bei einem Konzentrationsunterschied von 0.5at% Nickel ergäben Gitterparameter- und Widerstandsmessung übereinstimmende Werte für S .

Wegen den damit verbundenen Unsicherheiten wird der hier aus den Gitterparametern errechnete Absolutwert des Ordnungsgrades weiterhin nicht berücksichtigt; Änderungen von S an derselben Probe können dagegen durch Gitterparametermessungen nachgewiesen werden.

5.3.3 Bestimmung des Fernordnungsparameters aus Messungen der integralen Intensitäten der Überstrukturreflexe

Eine von Referenzdaten unabhängige Methode zur Bestimmung des Fernordnungsparameters ist die Messung der integralen Streuintensitäten von Überstrukturreflexen.

Die integrale Streuintensität P ist gegeben durch die gesamte Energie E , die beim Drehen des Kristalls durch die Reflexposition mit der Winkelgeschwindigkeit ω empfangen wird. Sie wird auf die primär pro Zeiteinheit auf die Probenoberfläche einfallende Energie I_0 bezogen und das Verhältnis wird als Reflexionsvermögen bezeichnet. Nach der kinematischen Theorie ergibt sich mit den Meßgrößen $P_k = E \cdot \omega$ und I_0 bei symmetrischer Reflexion an einem (im Vergleich zur Eindringtiefe) dicken Mosaikkristallplättchen für das Reflexionsvermögen [11]:

$$\frac{P_k}{I_0} = r_e^2 \frac{\lambda^3}{(\sin 2\theta)^2 V} p \cdot \text{DWF} |F|^2 \frac{1}{2\mu} = \frac{Q}{2\mu} \quad (5.6)$$

Dabei ist r_e der klassische Elektronenradius: $r_e = e^2/mc^2$, V ist das Volumen der Elementarzelle und μ der lineare Absorptionskoeffizient; die übrigen Größen haben die früher angegebene Bedeutung. Der Term $\frac{1}{\sin(2\theta)}$ wird als Lorentzfaktor bezeichnet. Die Größe Q ist durch Gl. (5.6) definiert und hat die Dimension $[\text{cm}^{-1}]$.

Für Überstrukturreflexe geht der Fernordnungsparameter S in Gl. (5.6) über den Strukturfaktor $|F|^2 \propto S^2$ ein (vgl. Gl. (2.8)). Damit kann S aus der Messung der integralen Intensität der Überstrukturreflexe bestimmt werden, wenn die primär einfallende Intensität I_0 bekannt ist. Bei den Messungen an Ni_3Fe wurde I_0 aus Eichmessungen mit Polysterene ermittelt; man erhält I_0 in Analogie zu Gl. (5.1) aus

$$I_0 = \frac{I_E}{d\Omega N_E d_{\text{eff}} P_E \frac{d\sigma}{d\Omega}_E r_e^2} \quad (5.7)$$

wobei $d\Omega$ das Raumwinkelement zum Detektor und $N_E = \frac{N_L \cdot \rho_E}{M_E}$ die Zahl der streuenden Atome pro Volumen ist (N_L = Loschmidt-Zahl).

Die separate Messung von I_0 entfällt, wenn S aus der Relativmessung der integralen Intensitäten von Überstruktur- und Fundamentalreflexen bestimmt wird. Aus dem Intensitätsverhältnis erhält man für den Fernordnungsparameter mit den Gleichungen (5.6), (2.7) und (2.8):

$$S^2 = \left(\frac{\sin(2\vartheta)}{p \cdot \text{DWF}} \right)_{\text{ÜS}} \left(\frac{p \cdot \text{DWF}}{\sin(2\vartheta)} \right)_{\text{FR}} \frac{(|3f_{\text{Ni}} + f_{\text{Fe}}|^2)_{\text{FR}}}{(|f_{\text{Ni}} - f_{\text{Fe}}|^2)_{\text{ÜS}}} \frac{P_k^{\text{ÜS}}}{P_k^{\text{FR}}} \quad (5.8)$$

Wie man aus Gleichung (5.8) ersieht, ist bei Elementen mit wenig unterschiedlichen Atomfaktoren wie Nickel und Eisen die Separation der Intensität der Überstrukturreflexe von der Untergrundstreuung bei kleinen S -Werten erschwert. Ein optimaler Kontrast läßt sich erzielen, wenn die Wellenlänge der Röntgenstrahlung in der Nähe der Absorptionskante eines der Elemente liegt. Zur Untersuchung bei kleinen Ordnungsgraden (abgeschreckte Proben) wurde deshalb Kobalt- $K_{\alpha 1}$ -Strahlung verwendet, da für Kobalt-Strahlung die anomale Dispersion der Fe-Atome größer ist als die der Ni-Atome. Für die teilweise geordneten Proben wurde auch Molybdän-Strahlung benutzt, die gegenüber Kobalt-Strahlung den Vorteil hat, daß über mehrere Reflexordnungen gemessen werden kann.

Die Methode der Relativmessungen (Gl. (5.8)) hat gegenüber der zuvor beschriebenen Absolutmessung (Gl. (5.6)) den Vorteil, daß apparative Konstanten nicht eingehen und systematische Fehler sich weitgehend kompensieren; deshalb sind Relativmessungen die Standardverfahren zur Messung von Fernordnungsparametern. Da andererseits durch die Extinktionskorrekturen an den Fundamentalreflexen zusätzliche Fehlerquellen entstehen (s.u.), wurden zur Charakterisierung des Fernordnungsgrades der Ni_3Fe -Proben beide Meßmethoden angewandt.

Die Messungen mit $\text{Co-K}_{\alpha 1}$ -Strahlung erfolgten an dem Meßplatz, an dem auch die Untersuchungen an Ni und NiCu vorgenommen worden waren (s. Kap. 5.2.2). Die integralen Intensitäten, die immer in ω -Scans aufgenommen wurden, wurden an (110)- und (220)-Reflexen bei Raumtemperatur gemessen, für die ungeordneten Proben auch bei 6K, um die thermische Streuung noch zu unterdrücken. Wegen der viel höheren Zählraten der Fundamentalreflexe wurde die Röhrenleistung variiert und zum Vergleich mit den Überstrukturreflexintensitäten auf die Zählrate eines Monitorzählers (vgl. Abb. 9) bezogen. Bei den abgeschreckten Proben war kein Überstrukturreflex zu erkennen. Aus den Fehlerbreiten konnte eine obere Grenze für S mit $S \leq 0.05$ abgeschätzt werden. Da die zu λ harmonischen Wellenlängen elektronisch diskriminiert wurden, wie sich insbesondere an dem gleichmäßigen Intensitätsverlauf bei den ungeordneten Proben zeigte, erübrigte sich eine entsprechende Korrektur für die geordneten Proben. Die Ergebnisse für den Fernordnungsparameter sind in der Tabelle 5, S. 43, eingetragen.

Mit $\text{Mo-K}_{\alpha 1}$ -Strahlung wurden Messungen der integralen Streuintensitäten an (110)- und (330)-Überstrukturreflexen, sowie an (220)-, (440)- und (660)-Fundamentalreflexen unternommen. Zur Untersuchung des Ordnungsgrades der zweimal bestrahlten Probe nach vollständiger Erholung und der unter denselben Bedingungen (s. Kap. 5.1, S. 29) thermisch vorbehandelten, unbestrahlten Ni_3Fe -Proben wurde anstelle der bei den diffusen Streuintensitätsmessungen benutzten Detektoranordnung ein Szintillationszähler verwendet, der nahe an die Probe herangeführt wurde, um Zählverluste auszuschließen.

In der Tabelle 5, S. 43, sind die Ergebnisse der Auswertung für den Fernordnungsparameter zusammengestellt; die Spalten 1 und 2 enthalten die Werte aus den Messungen der absoluten Intensität der Überstrukturreflexe, die Spalten 3-5 die Resultate der Relativmessungen mit $\text{MoK}_{\alpha 1}$ -Strahlung. In der Spalte 6 sind die Daten der Messungen mit Kobalt-Strahlung eingetragen.

Die Werte aus den Absolutmessungen am (110)-Reflex mit $S=0.67$ und am (330)-Reflex mit $S=0.79$ für die geordnete unbestrahlte Probe stimmen innerhalb der Fehlergrenzen mit dem aus dem Widerstand abgeschätzten Fernordnungsgrad von $S=0.7$ überein. Dabei ist der Wert aus der (330)-Messung, wie auch alle übrigen Ergebnisse mit dieser Reflexordnung, wegen der im Verhältnis zum Untergrund geringen Intensität der (330)-Überstrukturreflexe mit großen statistischen Fehlern behaftet, während die (110)-Daten zuverlässiger sind. Für die geordnete und zweimal bestrahlte Probe liefern die entsprechenden integralen Messungen übereinstimmend $S=0.99$.

		Mo-Strahlung								Co-Strahlung
		1	2	3		4		5		6
Ausgewertete Reflexe		(110)	(330)	(110) (220)	(330) (220)	(110) (440)	(330) (440)	(110) (660)	(330) (660)	(110) (220)
Ni ₃ Fe - geordnet unbestrahlt	S	0.67 (± 0.05)	0.79 (± 0.20)	1.33 (± 0.09)	1.57 (± 0.25)	0.90 (± 0.07)	1.07 (± 0.16)	0.82 (± 0.07)	0.97 (± 0.17)	1.61 (± 0.07)
				0.79*		0.79*		0.79*		0.86*
Ni ₃ Fe II - geordnet und erholt nach 2maliger Bestrahlung	S	0.99 (± 0.18)	0.99 (± 0.05)	1.45 (± 0.09)	1.46 (± 0.27)	1.26 (± 0.04)	1.27 (± 0.24)	1.17 (± 0.03)	1.18 (± 0.22)	1.73 (± 0.07)
				0.91*		(1.13*)		(1.13*)		0.99*
Ni ₃ Fe - ungeordnet	S			≤ 0.1						≤ 0.05

Tabelle 5: Absolutbestimmung der Fernordnungsparameter aus den integralen Streuintensitätsmessungen

*: für Extinktion korrigierter Meßwert

Im Vergleich zu den Absolutmessungen ergeben sich aus den Messungen der Intensitätsverhältnisse (Spalte 3-6, Tab. 5) für den Fernordnungsparameter immer deutlich größere Zahlenwerte, die mit steigender Ordnung der Fundamentalreflexe abfallen. Dieses Verhalten ist auf Extinktion zurückzuführen, die bei der Messung der Fundamentalreflexe zu einer wesentlich geringeren Streuintensität führt, als nach der kinematischen Theorie (für die Gl. (5.6) gilt) zu erwarten wäre. Diese Reduktion wird durch einen Extinktionsfaktor $y < 1$ beschrieben, der das Intensitätsverhältnis aus gemessener Intensität und der Intensität nach der kinematischen Theorie angibt.

Analytische Rechnungen für y wurden von Zachariasen unternommen /63/. Da der Extinktionsfaktor y aber unbekannte Kristallparameter enthält, läßt sich die Extinktionskorrektur nur so durchführen, daß die experimentellen Daten für S aus Messungen über verschiedene Reflexordnungen konsistent gefittet werden. Diese Extinktionskorrekturen werden im Anhang diskutiert. Die entsprechend korrigierten Werte für S sind in die Tabelle 5 aufgenommen.

Die Ergebnisse zeigen für die unbestrahlte Probe relativ gute Übereinstimmung mit den Absolutmessungen (Spalte 1 und 2 der Tab. 5), für die bestrahlte Probe aber nicht. Dies ist darauf zurückzuführen, daß Oberflächeneffekte die Intensitätsmessungen an den Proben beeinflussen /64/, die für die verschiedenen Reflexordnungen unterschiedlich stark eingehen.

Deshalb erscheint die Absolutmessung, d.h. die Bestimmung von S allein aus der integralen Intensität der Überstrukturreflexe hier als die zuverlässigere Methode zur Bestimmung des Absolutwertes des Fernordnungsparameters. Für den Fernordnungsparameter der Proben nach der Ordnungsbehandlung ergibt sich somit $S=0.67$, und als Mittelwert mit dem Ergebnis der Widerstandsmessung (s. Kap. 5.3.1) erhält man $S=0.69$ (± 0.09).

Im Vergleich dazu liegt der Wert von $S^N=0.99$ aus der absoluten Überstrukturreflexintensität für die bestrahlte Probe nach vollständiger thermischer Erholung um $\frac{\Delta S}{S} = \frac{S^N - S}{S} = 43.5\%$ höher. Der entsprechende Wert aus der Widerstandsabnahme konnte nicht mehr gemessen werden, da ein Potentialdraht an der Widerstandsprobe abgebrochen war.

Während der thermischen Erholung der bestrahlten Proben erfolgten die Messungen der bestrahlungsinduzierten Ordnungsparameteränderungen mit derselben Anordnung wie die Messung der diffusen Streuintensitäten (vgl. Kap. 5.2.2).

Da die Sollerspalt zwischen Probe und Detektor divergente Strahlen diskriminieren und deshalb Zählverluste auftreten können, ist diese Anordnung zur Absolutbestimmung des Fernordnungsparameters nicht geeignet. Mit der Messung der Intensitätsverhältnisse der Überstruktur- und Fundamentalreflexe können aber relative Änderungen zuverlässig festgestellt werden. Dieses Verfahren liefert nach vollständiger Erholung der Probe Ni_3FeII gegenüber dem Ausgangszustand vor den Bestrahlungen insgesamt eine Fernordnungsparameterzunahme um 42.5%; dies ist in guter Übereinstimmung mit den Absolutmessungen.

6. Bestrahlungen

6.1 Produktion von Frenkeldefekten durch Elektronenbestrahlung bei 4K

Zur Bestrahlung wurden Widerstands- und Röntgenprobe einer Charge auf einen Probenhalter, wie in der Abb. 11 skizziert, nebeneinander montiert. Die Röntgenprobe war jeweils nur am oberen Ende befestigt, so daß sie sich sonst frei ausdehnen konnte. Nur für Ni IV waren zusätzlich noch Widerstandsmeßdrähte direkt an der Röntgenprobe angebracht. Von den kleineren Ni_3Fe -Proben

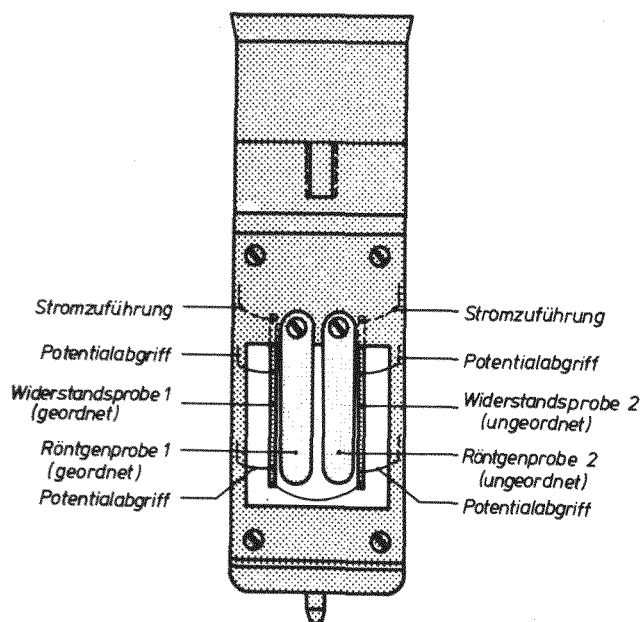


Abb. 11

Probenhalter für die Ni_3Fe Bestrahlungen

wurden jeweils eine ungeordnete und geordnete Probe mit der zugehörigen Widerstandsprobe in der in Abb. 11 dargestellten Weise nebeneinander montiert und somit unter denselben Bedingungen bestrahlt. Daß die Proben dabei dieselbe Bestrahlungsdosis erhalten, setzt bei gegebener Strahlstromdichte ein homogenes Strahlprofil über die zu bestrahlende Fläche voraus (es wurde eine $14 \times 14 \text{ mm}^2$ Vorblende verwendet). Darauf wurde während der Bestrahlung besonders geachtet und das Profil gegebenenfalls nachjustiert.

Die Bestrahlungen erfolgten an der Tieftemperaturbestrahlungsanlage der KFA-Jülich /65/ mit 3 MeV Elektronen, wobei die Proben im direkten Strom von flüssigem Helium gekühlt wurden. Für jeden Probentyp (Ni-Cu , Ni_3Fe) wurden zwei, für Nickel vier Bestrahlungsexperimente mit unterschiedlicher Dosis durchgeführt. Die Elektronendosen Φ und die bestrahlungsinduzierten Restwiderstandsänderungen $\Delta\rho_0$ sind in der Tabelle 6 auf S. 47 angegeben.

Nach den Bestrahlungen wurden die Proben in einem Umsetzkryostaten zum Röntgenmeßplatz transportiert und ohne zwischenzeitliches Aufwärmen in den Meßkryostaten eingebaut. Die anschließenden Röntgenmessungen erfolgten bei 6K.

Proben		Φ [$\cdot 10^{19} \frac{e^-}{cm^2}$]	$\Delta\rho_0$ [n Ω cm]
Nickel	Ni-I	1.41	410
	Ni-II	0.91	195
	Ni-III	0.51	120
	Ni-IV	1.74	379
Ni _{62.3} - Cu _{37.7}	NiCu-I	1.86	943
	NiCu-II	1.07	476
Ni ₃ Fe	un-geordnet Ni ₃ Fe-I	2.10	514
	Ni ₃ Fe-II	2.46	682
	vor-geordnet Ni ₃ Fe-I	2.10	533
	Ni ₃ Fe-II	2.46	705

Tabelle 6: Bestrahlungen

6.2 Heliumimplantation während der Bestrahlung

Nach der Bestrahlung zeigten die Streuintensitätsmessungen in den Richtungen parallel zum reziproken Gittervektor ($\vartheta/2\vartheta$ -Scan) an niedrig indizierten Reflexen bei allen Proben - besonders deutlich an den (200)-Reflexen von Ni und NiCu, aber auch bei den Ni₃Fe Proben an den (220)-Reflexen - einen erhöhten, höckerartigen Intensitätsverlauf auf der negativen Reflexseite mit $(2\vartheta - 2\vartheta_{\text{Bragg}}) < 0$. Dieser Effekt, der in den Bildern 12a) und 13a) auf S. 48 an den Beispielen der (200)-Messungen des Ni-IV und NiCu-II gezeigt ist, wurde an höher indizierten Reflexen nicht beobachtet. Er wird deshalb als Oberflächeneffekt interpretiert und auf Heliumaufnahme während der Bestrahlung zurückgeführt. Eine Dosisabhängigkeit wurde im Detail nicht untersucht; im Fall von Nickel scheint jedoch schon bei der niedrigsten Bestrahlungsdosis die Heliumaufnahme gesättigt zu sein.

Der zusätzliche Streubeitrag verschwindet während des Anlassens. In NiCu ist bei 150K, in Ni bei 200K eine Umlagerung (s. Abb. 12a/13a) zu erkennen; für NiCu ist bei 200K, für Ni und ebenso für Ni₃Fe ist bei 300K die Intensitätsüberhöhung zurückgebildet.

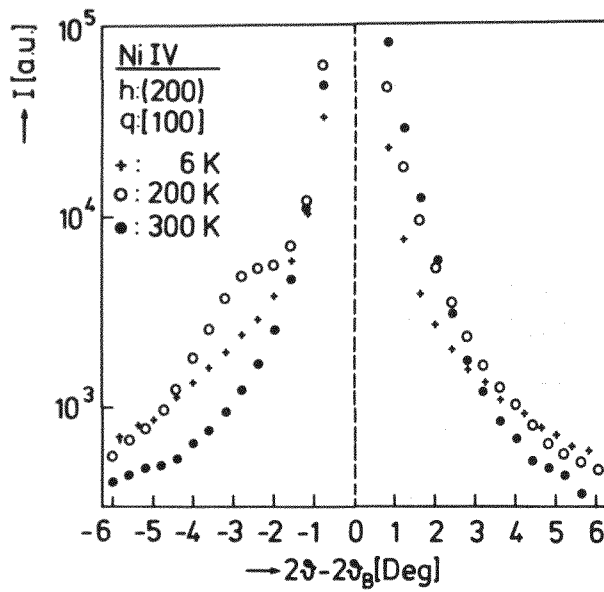


Abb. 12a

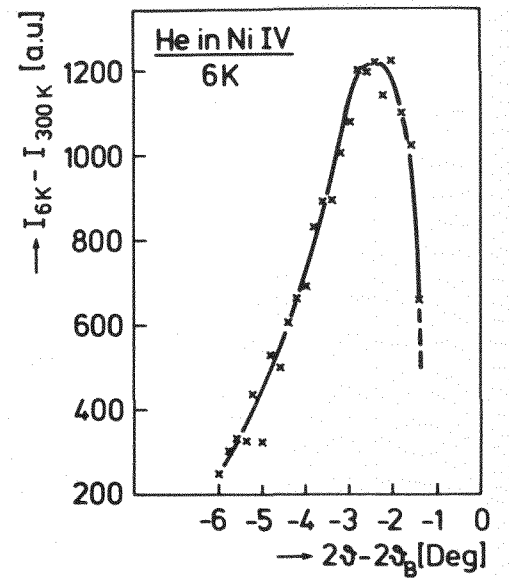


Abb. 12b

Heliumeffekte in Nickel IV bei Messungen an (200)-Reflexen in [100]-Richtung
Erholungstemperaturen: + und x = 6 K, o = 200 K, • = 300 K

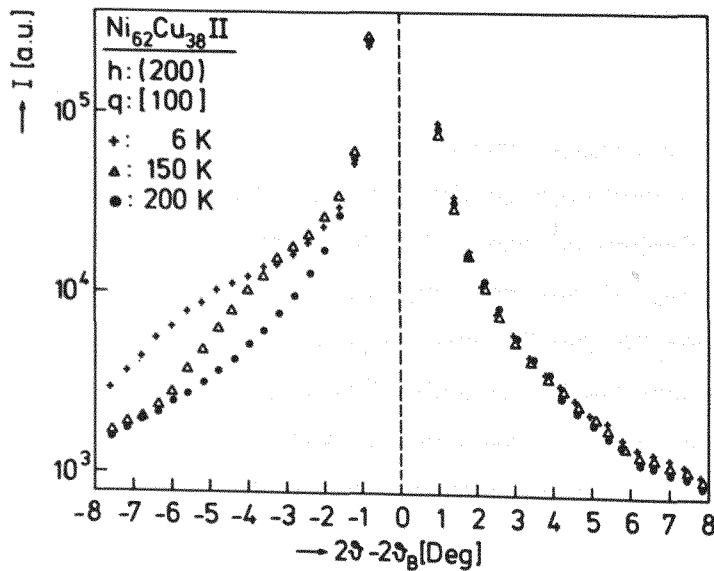


Abb. 13a

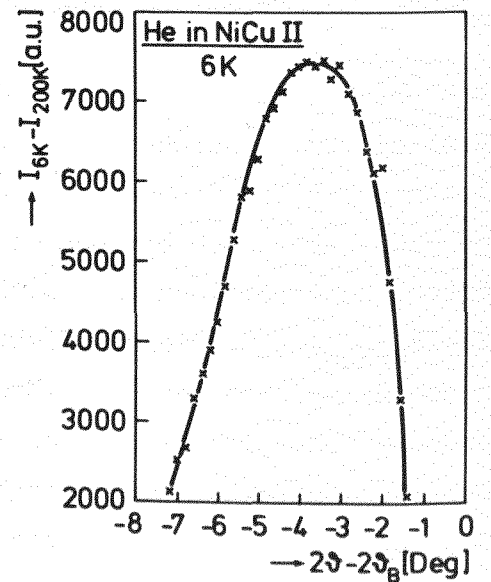


Abb. 13b

Heliumeffekte in NiCu II bei Messungen an (200)-Reflexen in [100]-Richtung
Erholungstemperaturen: + und x = 6 K, Δ = 150 K, • = 200 K

Ähnliche Beobachtungen gibt es auch nach Tieftemperaturbestrahlungen an Cu /6/. Dort war der Effekt am deutlichsten, wenn die Messungen der Streuintensitäten in Reflexionsanordnung an der Probenvorderseite vorgenommen wurden, auf die bei der Bestrahlung der Elektronenstrahl auftraf, war aber auch noch bei der Messung an der Rückseite vorhanden. In Transmissionsanordnung wurde jedoch ein signifikanter Intensitätsanstieg nicht festgestellt. Diese Beobachtungen geben einen Hinweis auf die Struktur und Konfiguration des in der Probe gelösten Heliums.

Daß der Meßeffect nur in Reflexionsanordnung auftritt, kann durch eine atomare Verteilung von Helium nahe an der Probenoberfläche erklärt werden, die zu einer Gitteraufweitung senkrecht zur Oberfläche führt. Dadurch ergibt sich für die oberflächenschicht ein geänderter Gitterparameter und dementsprechend ein anderer Braggwinkel, wie in der Abbildung 14a skizziert ist.

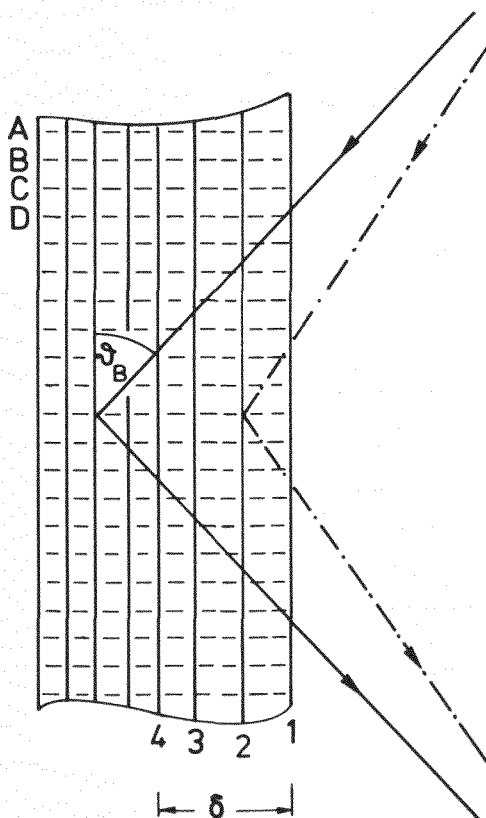


Abb. 14 a)

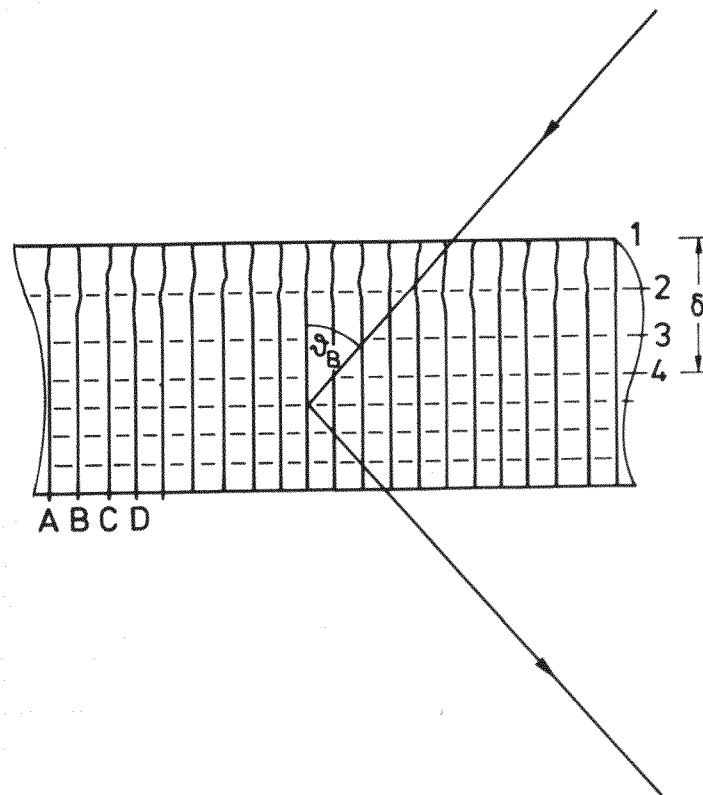


Abb. 14 b)

Abb. 14

Einfluß von Helium an der Probenoberfläche auf die Röntgenstreuung (schematisch)

a) Reflexionsanordnung

b) Transmissionsanordnung

Da bei Messung in Transmission kein Effekt beobachtet wird, muß man annehmen, daß die reflektierenden Gitterebenen in Transmissionsanordnung kaum verzerrt werden, was andeutet, daß die Kohärenzspannungen eine Ausdehnung in dieser Richtung verhindern.

Wie die Meßkurven zeigen (vgl. Abb. 12a,13a), ist im Fall von NiCu-II der zusätzliche Streubeitrag schon als breiter Peak angedeutet, bei Ni-IV ist der Peak erst nach Subtraktion des Untergrundes zu sehen. In den Abbildungen 12b) und 13b) ist für diese Beispiele die um den Untergrund bereinigte Streuintensität aufgetragen. Der Reflex liegt für Ni-IV bei $\Delta(2\theta) = -2.7^\circ$ und für NiCu-II bei $\Delta(2\theta) = -3.65^\circ$ relativ zum Braggreflex. Bei Ni₃Fe war der Intensitätsverlauf zu breit, um einen Heliumpeak zu lokalisieren.

Aus der Lage der Peaks kann man nun die Gitterparameteränderung $\Delta a/a = \Delta\theta \cot\theta_B$ berechnen, die das implantierte Helium in der Probe verursacht. Unter der Voraussetzung, daß das Helium interstitiell gelöst ist, läßt sich mit dem Literaturwert von 0.6 für das Relaxationsvolumen /66/ auch die Konzentration c des Heliums nach Gl. (4.7) ausrechnen; dabei wird hier angenommen, daß nur eine eindimensionale Ausdehnung der Probe (vgl. Abb. 14) erfolgt. Mit Hilfe der Scherrer-Formel, Gl. (2.9), kann man außerdem aus der Breite des Peaks eine Schichtdicke δ abschätzen, in der das Helium gelöst ist. Die Ergebnisse sind in der Tabelle 7 zusammengestellt. Aus Tabelle 7 erkennt man, daß das

	Ni IV	NiCu II
$\frac{\Delta a}{a} / 10^2$	5.0 (± 0.7)	6.5 (± 0.9)
c [%]	8 (± 1.5)	11 (± 2)
δ [Å]	30 (± 5)	20 (± 4)

Tabelle 7: Heliumimplantation in Probe Ni IV und NiCu II

Helium in hoher Konzentration in einer schmalen oberflächennahen Schicht gelöst ist. Das Verhältnis der Intensität unter dem Heliumpeak zur Gesamtintensität ist mit dieser geringen Schichtdicke vereinbar. Für die anderen Ni- und NiCu-Proben ergeben sich innerhalb der Fehlergrenzen vergleichbare Werte.

Konsistent mit dieser Interpretation ist, daß der Heliumpeak nur an den niedrig indizierten Reflexen, nicht jedoch bei den (400)-Messungen (vgl. Abb. 16, 17, 23 , Kap.7) zu sehen ist. Der entsprechende Heliumpeak würde in einem Abstand von ca. -10° bei Ni und ca. -13° bei NiCu vom (400)-Reflex zu erwarten sein, was weit außerhalb des Meßbereichs (maximal -8° in NiCu-II, sonst bis -6°) liegt. Die Streuintensitätsmessungen sind daher an diesen Reflexen durch Heliumeffekte nicht beeinträchtigt.

7. Ergebnisse für Einzeldefekte nach der Bestrahlung bei 6K

7.1.1 Experimentelle Ergebnisse für Nickel

Die experimentellen Ergebnisse der Messungen der elektrischen Widerstandsänderungen, der Gitterparameteränderungen und der Huangstreuung sind in der Tabelle 8, S. 55, zusammengestellt.

Die Fehler der bestrahlungsinduzierten Gitterparameteränderungen $\frac{\Delta a}{a}$ betragen für die Einzelmessungen zwischen 6% und 9%. Mit den gemessenen Restwiderstandsänderungen $\Delta \rho_0$ berechnet man die in der Spalte 4 der Tabelle 8 angegebenen Verhältnisse $\eta = \frac{\Delta a/a}{\Delta \rho_0}$. In der Abb. 15 ist die entsprechende lineare Dosisabhängigkeit der Gitterparameteränderungen gezeigt. Aus Gründen, die später diskutiert werden, weicht der Wert für Probe NiI von der Geraden ab.

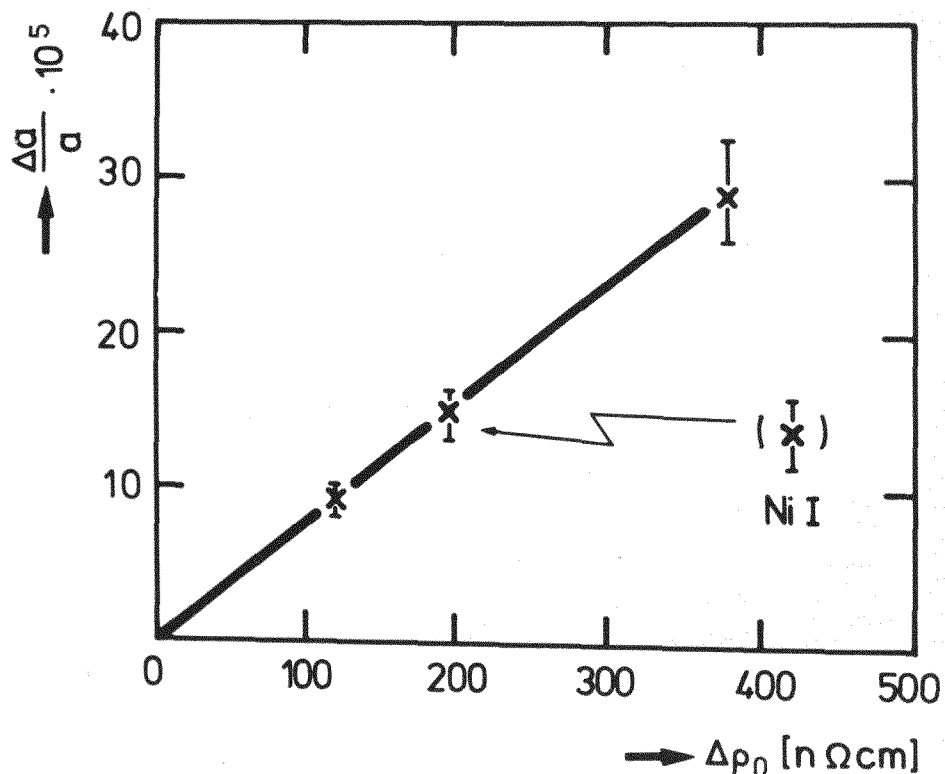


Abb. 15

Gitterparameter- und Restwiderstandsänderungen in Nickel

Charakteristische Ergebnisse der Röntgenstreuintensitätsmessungen an den unbestrahlten bzw. völlig erhaltenen Proben (Untergrundstreuung) und an den bestrahlten Proben bei 6K sind für Nickel an den Beispielen der kleinsten (NiIII) und höchsten (NiIV) Bestrahlungsdosen für die Messungen in radialer Richtung an (400)-Reflexen in den Abbildungen 16 und 17, S. 53, gezeigt.

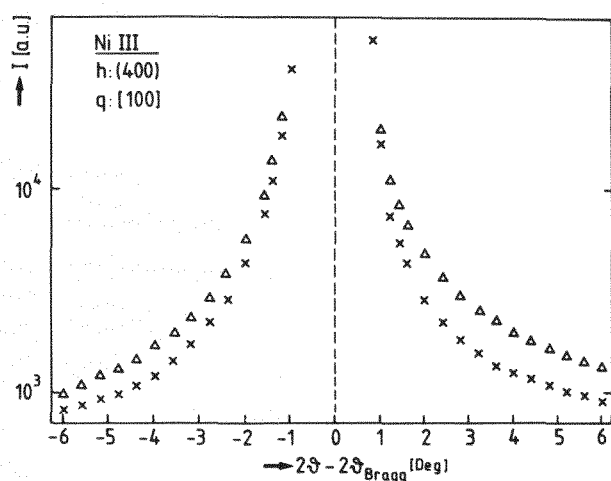


Abb. 16

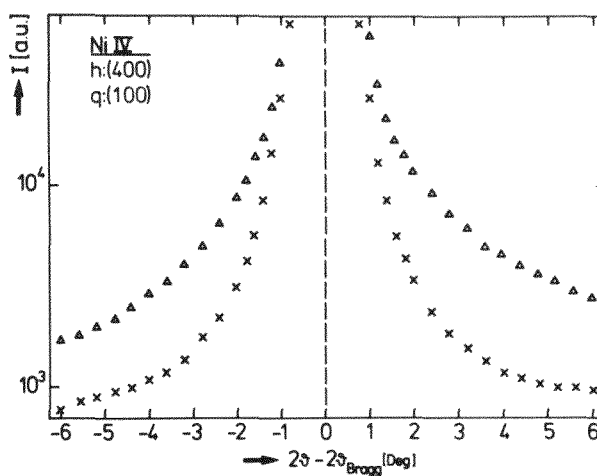


Abb. 17

Diffuse Streuintensität in Ni III (Abb. 16) und Ni IV (Abb. 17) an (400)-Reflexen mit $q: [100]$; Untergrundstreuung (x) und Messung nach Bestrahlung bei 6 K (Δ)

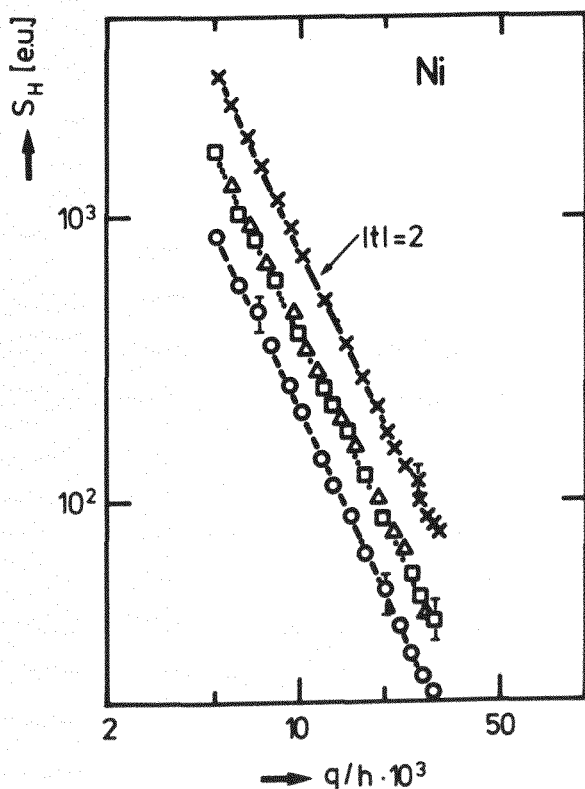


Abb. 18

Streuquerschnitt S_H (in Einheiten des Streuquerschnitts eines freien Elektrons) der Huangstreuung für Nickel an (400)-Reflexen mit $q: [100]$,

- = Ni III mit $\Delta\rho_0 = 120 \text{ n}\Omega\text{cm}$
- = Ni II mit $\Delta\rho_0 = 195 \text{ n}\Omega\text{cm}$
- △ = Ni I ($\Delta\rho_0 \approx 190 \text{ n}\Omega\text{cm}$, s.S. 56)
- × = Ni IV mit $\Delta\rho_0 = 379 \text{ n}\Omega\text{cm}$

Die Bilder lassen einen deutlichen und bezüglich des Braggreflexes für ZGA typischen asymmetrischen Anstieg der Streuintensität nach der Bestrahlung gegenüber der Untergrundstreuung erkennen. Der symmetrische Anteil der Defektstreuung, d.h. die Huangstreuintensität S_H , ist für alle vier Ni-Bestrahlungsexperimente in der Abbildung 18, S. 53, dargestellt. Zum Vergleich mit der Theorie ist dabei S_H (in Einheiten des elektronischen Streuquerschnitts) als Funktion des Abstandes vom reziproken Gittervektor $\underline{h}$ in doppelt logarithmischem Maßstab aufgetragen. Die Meßpunkte liegen für alle Ni-Bestrahlungen auf Geraden mit der Steigung -2 und die Intensitäten sind proportional zur bestrahlungsinduzierten Restwiderstandsänderung $\Delta\rho_o$. Dies ist nach der Theorie der Huangstreuung das für Einzeldefekte charakteristische Verhalten.

In der Tabelle 8 sind in der 3. Spalte die aus den Meßergebnissen für die Defektstreuung an (400)-Reflexen in [100]-Richtung nach Gl. (4.4) erhaltenen Größen $c\pi^{(1)}$ zusammengestellt, wobei die kleinen Beiträge von $\pi^{(2)}$ und $\pi^{(3)}$ vernachlässigt wurden. Mit den Meßwerten der Gitterparameter- und Restwiderstandsänderungen ergeben sich daraus nach der Auswertung entsprechend den Gl. (4.6) bis (4.8) unter der Annahme eines Leerstellenrelaxationsvolumens von $\Delta V_V^{Rel}/V_C = -0.3$ (s. Gl. (4.9) und (4.10)) die in den weiteren Spalten der Tabelle 8 angegebenen Defektkonzentrationen und Defekteigenschaften ρ_F und $\Delta V_I^{Rel}/V_C$. Die entsprechenden Messungen an (200)-Reflexen können zur Auswertung nicht herangezogen werden, da sie durch Helium-Oberflächeneffekte stark beeinflusst waren (vgl. Kap. 6.2).

Wie die Tabelle 8 zeigt, liefern die Einzelmessungen innerhalb der Fehlergrenzen gut konsistente Werte; die bei den Mittelwerten angegebenen Fehler betragen bis zu 19% und resultieren außer aus statistischen Fehlern und Unsicherheiten in den Literaturdaten (vgl. Kap. 5.2) größtenteils aus den Meßfehlern der Gitterparameter. Für den Mittelwert von ρ_F wurde NiI vernachlässigt (s.u.).

Um Aussagen über die Defektstrukturen der EZGA in Nickel zu gewinnen, wurden Streuintensitätsmessungen an (200)- und (400)-Reflexen in den Richtungen [010] senkrecht zum reziproken Gittervektor unternommen. Daraus erhält man entsprechend der Tabelle 1 und Gl. (4.4) das Produkt $c\pi^{(3)}$; bei den gegebenen Probenorientierungen (vgl. Tab. 2) war die Messung von $c\pi^{(2)}$ nicht möglich. Um Streubeiträge der Helium-Oberflächenschicht (s. Kap. 6.2) auszuschließen, wurden nur die (400)-Messungen ausgewertet. Für die von der De-

	1	2	3	4	5	6	7
Proben	$\Delta\rho_o$ [nΩcm]	$\frac{\Delta a}{a}$ [10 ⁻⁴]	$c\pi^{(1)}$ [10 ⁻²⁴ erg ²]	η [10 ⁴ (Ωm) ⁻¹]	ρ_F [μΩcm/at%]	$\frac{\Delta V_I^{Rel}}{V_c}$	c [10 ⁻⁴]
Ni I	410	1.42	3.40	(3.46)	(13.56)	1.71	3.02
Ni II	195	1.49	3.66	7.64	6.39	1.77	3.04
Ni III	120	0.90	2.01	7.50	5.46	1.54	2.19
Ni IV	379	2.90	7.08	7.65	6.37	1.76	5.95
Mittelwerte:				7.60*	6.07*	1.70	
(* ohne Ni I)				(±0.75)	(±1.10)	(±0.30)	

Tabelle 8: Ergebnisse für Eigenzwischengitteratome in Nickel; zur Auswertung wurde das Relaxationsvolumen der Leerstelle zu $\Delta V_V^{Rel} = -0.3 V_c$ angenommen

fehlkonzentrationen unabhängigen Verhältnisse der Symmetrieparameter $\frac{\pi(3)}{\pi(1)}$ ergaben sich die in der folgenden Tabelle 9 eingetragenen Werte.

Probe Nr.	NiI	NiII	NiIII	NiIV
$\frac{\pi(3)}{\pi(1)}$	0.005 (± 0.005)	0.003 (± 0.003)	0.004 (± 0.004)	0.012 (± 0.004)

Tabelle 9: Defektsymmetrieparameter in Nickel

Bei den Messungen in [010]-Richtung der bestrahlten Proben war für die niedrigsten Bestrahlungsdosen (NiI, NiII und NiIII) innerhalb der Fehlergrenzen ein Anstieg der Streuintensität nicht zu erkennen; erst bei NiIV zeigte sich ein Effekt außerhalb der Meßfehler.

7.1.2 Diskussion der Ergebnisse für Nickel

Wie die Abbildung 15 zeigt, ergibt sich für die Proben NiII, III und IV eine lineare Abhängigkeit der Gitterparameteränderung von der Bestrahlungsdosis mit $\eta = 7.6 \cdot 10^4 (\Omega\text{m})^{-1}$. Der Wert von NiI weicht davon deutlich ab, im Vergleich zu den anderen Proben ist hier der $\frac{\Delta a}{a}$ Wert etwa um den Faktor 2 zu klein bzw. $\Delta\rho_0$ entsprechend zu groß. Diese Diskrepanz ist nur dadurch erklärbar, daß bei der NiI-Bestrahlung Röntgenprobe und Widerstandsprobe unterschiedliche Bestrahlungsdosen erhielten, so daß die vom Widerstand angezeigte Schädigung nicht der der Röntgenprobe entspricht. Die an NiI gemessene Huangstreuung (s. Tab. 8, S. 55) ist von derselben Größenordnung wie an NiII und deutet deshalb auf ein $\Delta\rho_0$ von ca. 190 n Ωcm der Röntgenprobe hin (vgl. Abb. 18, S. 53). Eine teilweise Erholung der Röntgenprobe während der Bestrahlung kann die Diskrepanz nicht erklären, weil die Huangstreuung von NiI qualitativ ähnliches Erholungsverhalten in Stufe I zeigt wie bei den anderen Ni-Proben (s. Kap. 8.1). Um solche Unsicherheiten durch verschiedene Schädigungen ausschließen zu können, müßte der Widerstand direkt an der Röntgenprobe gemessen werden; dies wurde bei NiIV realisiert. Wegen der Unsicherheiten in $\Delta\rho_0$ wurde NiI bei der Berechnung der Mittelwerte von η und ρ_F nicht berücksichtigt. Rechnet man für die Röntgenprobe mit $\Delta\rho_0 = 190 \text{ n}\Omega\text{cm}$, wie die kon-

sistenten Ergebnisse der Röntgenstreuung nahelegen, so ergibt sich $\eta = 7.5 \cdot 10^4 (\Omega m)^{-1}$ und $\rho_F = 6.4 \mu\Omega cm/at\%$ und somit Übereinstimmung mit den Ergebnissen für die anderen Proben.

Der hier bestimmte Wert von $\eta = 7.6(\pm 0.75) \cdot 10^4 (\Omega m)^{-1}$ für das Verhältnis aus Gitterparameter- und Restwiderstandsänderung in Nickel ist um ca. 27% größer als der Wert $\eta = 6.0 \cdot 10^4 (\Omega m)^{-1}$, den die Autoren Birtcher und Blewitt /67/ aus Messungen der Längenänderung nach Bestrahlungsexperimenten mit Uran-Spaltfragmenten erhalten haben. Da im Gegensatz zur Elektronenbestrahlung bei der Defekterzeugung durch Stoßkaskaden z.B. schon Leerstellenagglomeratbildung möglich ist, womit eine geringere Gitterparameteränderung als beim Vorliegen von Einzeldefekten verbunden ist, könnte der Unterschied in den η -Werten mit den spezifischen Defektmustern der beiden Bestrahlungsarten zusammenhängen.

Die Meßwerte der Huangstreuung und der Gitterparameteränderungen enthalten außer den Beiträgen der Zwischengitteratome auch Beiträge der Leerstellen. Über das Relaxationsvolumen der LS in Nickel gibt es bisher noch keine Untersuchungen. Wenn man das Leerstellenrelaxationsvolumen $\Delta V_V^{Rel}/V_C$ als Parameter einführt, erhält man aus den Meßwerten die in der Tabelle 10, S. 58, eingetragenen Defekteigenschaften SpP_I , ρ_F und $\Delta V_I^{Rel}/V_C$ der ZGA in Nickel (vgl. Tab. 8, S. 53). Zum Vergleich sind in die letzte Zeile der Tabelle 10 auch die entsprechenden Daten der EZGA-Relaxationsvolumina in Kupfer aufgenommen, wie sie von Ehrhart und Schlagheck /6/ mit denselben Meßmethoden bestimmt wurden.

Man erkennt, daß innerhalb der Fehlergrenzen die Relaxationsvolumina für Nickel und Kupfer übereinstimmen. Vernachlässigt man den Leerstellenbeitrag, so ergibt sich auch kein wesentlicher Unterschied zu Aluminium mit $\Delta V_I^{Rel}/V_C = 1.9(\pm 0.3) /53/$. Die Unterschiede, die man in der Literatur bei den Angaben der ZGA-Relaxationsvolumina von Cu und Al findet, resultieren erst aus der Berücksichtigung des verschiedenen LS-Verhaltens in den Metallen: während die LS in Al nur einen vernachlässigbar kleinen Beitrag liefert /68/, werden für Cu Werte von $\Delta V_I^{Rel}/V_C$ zwischen -0.25 und -0.35 diskutiert /6,69/. Für Ni läßt sich aus den vorliegenden Messungen mit der angegebenen Parameterdarstellung nur ableiten, daß der LS-Beitrag zu $\Delta V_V^{Rel}/V_C$ nicht kleiner als -0.43 sein kann. In Hinsicht auf die Literaturdaten für den Frenkeldefektwiderstand in Nickel, der von Luccason aus Messungen der Schädigungsraten an Polykristallen zu $\rho_F = 6.0 \mu\Omega cm/at\%$ /70/ und von Becker et al aus dem Ver-

		$\xleftarrow{\frac{\Delta V_V^{Rel}}{V_C}} \quad \quad \quad \xrightarrow{\quad \quad \quad}$							
		0	-0.10	-0.20	-0.25	-0.30	-0.35	-0.40	-0.43
Nickel	SpP_I [eV]	81 (+15)	77	71	68	64	60	53	43
	ρ_F [$\mu\Omega\text{cm/at\%}$]	9.3 (+1.7)	8.4	7.3	6.7	6.1	5.3	4.3	3.0
	$\frac{\Delta V_I^{Rel}}{V_C}$	2.1 (+0.4)	1.99	1.86	1.78	1.70	1.55	1.37	1.10
Cu	$\frac{\Delta V_I^{Rel}}{V_C}$	2.0 (+0.4)	1.90	1.77	1.66	1.56	1.45	1.20	

Tabelle 10: Ergebnisse für Eigenzwischengitteratome in Nickel mit dem Leerstellenrelaxationsvolumen als Parameter; zum Vergleich sind die EZGA-Relaxationsvolumina von Kupfer nach /6/ angegeben.

gleich der Schädigungsraten mit Kupfer (unter der Annahme von $\rho_{F/Cu} = 2.0\mu\Omega\text{cm/at\%}$) zu $\rho_F = 6.3\mu\Omega\text{cm/at\%}$ /29/ bestimmt wurde, wird für Nickel ein LS-Parameter von $\Delta V_V^{Rel}/V_C = -0.3$ (vgl. Tab. 10) (ähnlich wie in Kupfer) nahegelegt. Der entsprechende Datensatz für die Defekteigenschaften der EZGA in Nickel ist in der Tabelle 10 gekennzeichnet (vgl. Tab. 8).

Bei den Untersuchungen zur Defektstruktur der EZGA in Nickel ergibt sich bei kleinen Bestrahlungsdosen unter Berücksichtigung der Fehlerbreiten ein Defektsymmetrieparameter von $\frac{\pi^{(3)}}{\pi^{(1)}} \approx 0$. Vergleicht man die experimentellen Daten mit den in fcc-Metallen möglichen ZGA-Konfigurationen, s. Abb. 7, S. 21, und Gl. (4.5), so kommen nur Oktaeder-, Tetraeder- oder H_o -Lagen in Frage, da nur für diese Konfigurationen $\pi^{(3)} = 0$ möglich ist. Der positive $\frac{\pi^{(3)}}{\pi^{(1)}}$ -Wert bei NiIV ist offenbar auf die hohe Bestrahlungsdosis zurückzuführen, bei der die Bildung kleiner Defektagglomerate mit entsprechenden Streubeiträgen zu $\pi^{(3)}$ nicht ausgeschlossen werden kann; ähnliche Dosiseffekte wurden

in Kupfer beobachtet /71/. Die Ergebnisse zeigen insbesondere, daß Crowdion- und Hc-Lagen der EZGA in Nickel nicht möglich sind, weil entsprechendden Modellrechnungen /72/ dafür sehr hohe $\frac{\pi(3)}{\pi(1)}$ -Verhältnisse (in Kupfer z.B. $\frac{\pi(3)}{\pi(1)} = 0.23$ für H_c und $\frac{\pi(3)}{\pi(1)} = 0.16$ für H_T /6/) anzunehmen wären. Eine Unterscheidung zwischen O-, T-, und Ho-Lagen ist mit den hier erfolgten Messungen nicht möglich. Die Ergebnisse sind somit in Übereinstimmung mit den Befunden magnetischer Nachwirkungsexperimente /73/, die als stabile EZGA-Konfiguration in Nickel die Ho-Hantelkonfiguration nachgewiesen haben.

7.2.1 Experimentelle Ergebnisse für die Legierungen Ni_3Fe

Die integralen Streuintensitätsmessungen der Überstruktur- und Fundamentalreflexe (vgl. Kap. 5.3) an den bestrahlten Proben bei 6K ergaben unmittelbar nach den Bestrahlungen innerhalb der Fehlergrenzen keinen Hinweis auf eine Änderung des Ordnungsgrades. Bei Zugrundelegen der in einer geordneten Ni_3Mn -Legierung festgestellten Fernordnungsparameterabnahme durch Elektronenbestrahlung /33/ wäre hier eine Ordnungsparameteränderung von $\Delta S \lesssim 0.02$ zu erwarten. Die verwendete Meßmethode läßt aber die Messung kleinerer Änderungen als $\Delta S \approx 0.03$ bis 0.04 nicht zu, so daß bei einem Ausgangswert von $S \approx 0.69$ wie vor der I. Bestrahlung bzw. von $S \approx 0.91$ der zur II. Bestrahlung (nach vollständiger thermischer Erholung, s. Kap. 8.2) wiederverwendeten Probe eine Ordnungsparameteränderung innerhalb dieser Grenzen nicht ausgeschlossen werden kann.

Die gemessenen Gitterparameter- und Restwiderstandsänderungen sowie die Ergebnisse der Huangstreuintensitätsmessungen für die beiden bestrahlten Probentypen sind in der Tabelle 12, S. 62 zusammengestellt. Die Meßfehler bei den Messungen der Gitterparameteränderungen betragen ca. 15%. Für die geordneten Proben liegen die gemessenen $\frac{\Delta a}{a}$ -Werte um ca. 12% bei der ersten und ca. 6% bei der zweiten Bestrahlung höher als für die ungeordneten; mit gleichzeitig ca. 4% größeren Restwiderstandsänderungen erhält man unter Berücksichtigung der Fehlerbreiten übereinstimmende η -Werte.

Meßkurven der Röntgenstreuintensitätsmessungen bei 6K sind für die jeweils höchsten Bestrahlungsdosen beider Probentypen (Ni_3FeII) zusammen mit der Untergrundstreuung in der Abbildung 19 für die ungeordnete und in Abbil-

dung 20 (S. 61) für die vorgeordnete Probe an den Beispielen der (440)-Messungen in [110]-Richtungen gezeigt. Die Bilder 21 und 22 (S. 61) geben den symmetrischen Anteil der Defektstreuung entsprechender Messungen für alle Bestrahlungsdosen wieder. Man erkennt, daß bei beiden Probentypen innerhalb der Meßgenauigkeit der Intensitätsverlauf durch das q^{-2} -Gesetz der Huangstreuung beschrieben wird und die Streuintensitäten entsprechend den einbestrahlten Restwiderstandsänderungen $\Delta\rho_0$ skalieren.

In der Tabelle 11 sind die aus den Meßwerten der Huangstreuintensitäten nach Gl. (4.4) abgeleiteten Größen $c\pi^{(1)}$ für die radialen Messungen an den verschiedenen Reflexen angegeben. Die Einzelmessungen ergeben innerhalb von ca. 6% gut übereinstimmende Werte, lediglich bei der Messung am (660)-Reflex der geordneten Probe Ni_3FeII ist eine größere Abweichung von ca. 17% gegenüber den Messungen an den beiden anderen Reflexen festzustellen. Wegen der kleinen Zählraten an den höheren Reflexordnungen liegt dieser Wert noch innerhalb der Fehlergrenzen. Zur Auswertung für die Defektgrößen werden die in Spalte 3 der Tabelle 12, S. 62, übertragenen Mittelwerte benutzt. Zusammen mit den Meßwerten der Gitterparameter- und Restwiderstandsänderungen ergeben sich daraus mit der Voraussetzung eines Leerstellenrelaxationsvolumens von $\Delta V_V^{Rel}/V_C = -0.15$ entsprechend den Gleichungen (4.4) und (4.6) bis (4.10) die im rechten Teil der Tabelle 12 zusammengestellten Zahlenwerte für ρ_F , $\Delta V_I^{Rel}/V_C$ und c .

Bestr.-Nr.	Reflex	$c\pi^{(1)} [10^{-24} \text{ erg}^{-2}]$	
		ungeordnete Probe	geordnete Probe
I	(440)	5.592	7.106
	(620)	5.916	6.770
II	(440)	7.138	8.847
	(660)	6.833	7.353
	(620)	-	8.601

Tabelle 11: Meßergebnisse der Huangstreuung für Ni_3Fe

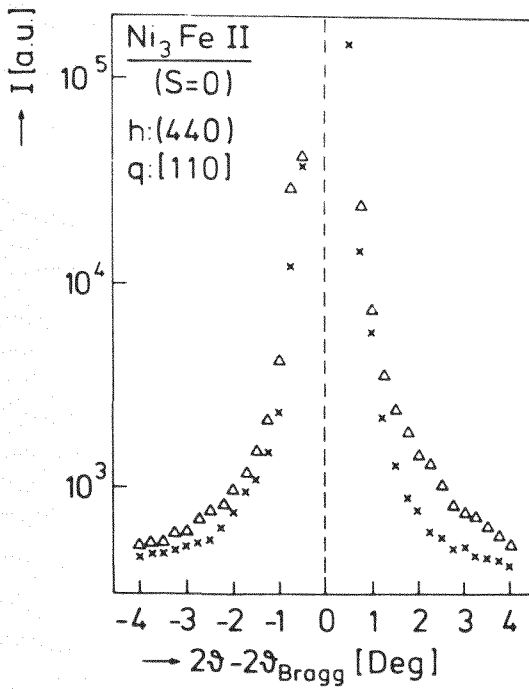


Abb. 19

Meßkurven diffuser Streuintensitätsmessungen für Ni_3Fe ; Untergrundstreuung (x) und Messung nach Bestrahlung bei 6 K (Δ)

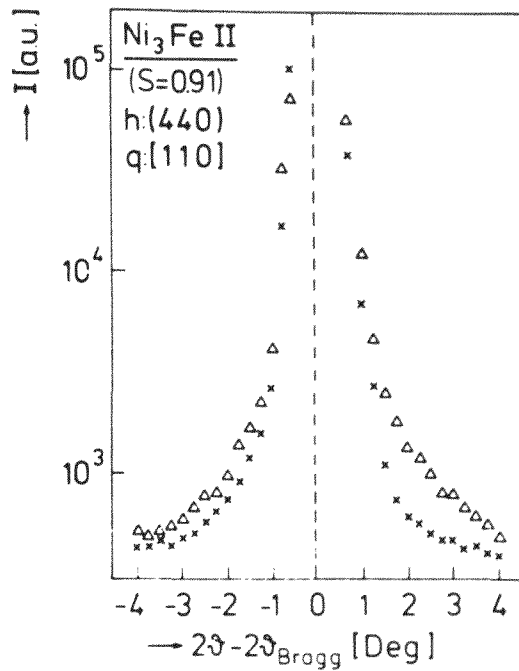


Abb. 20

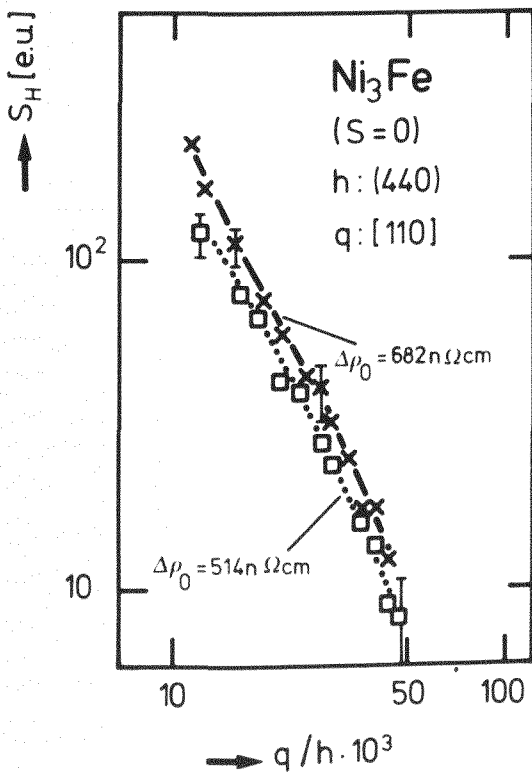


Abb. 21

Streuquerschnitt S_H der Huangstreuung bei 6 K für Ni_3Fe aus Messungen an (440)-Reflexen in [110]-Richtung

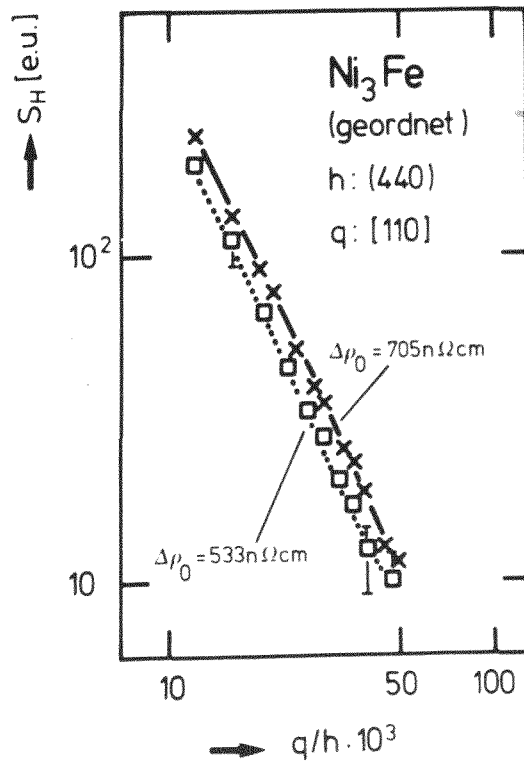


Abb. 22

Proben		1	2	3	4	5	6	7
		$\Delta\rho_0$ [n Ω cm]	$\frac{\Delta a}{a}$ [10 ⁻⁴]	$c\pi^{(1)}$ [10 ⁻²⁴ erg ²]	η [10 ⁴ (Ω m) ⁻¹]	ρ_F [$\mu\Omega$ cm/at%]	$\frac{\Delta V_I^{Rel}}{V_c}$	c [10 ⁻⁴]
Ni ₃ Fe – ungeordnet	Ni ₃ Fe I	514	3.0	5.75	5.84	7.78	1.50	6.61
	Ni ₃ Fe II	682	4.12	6.99	6.04	6.38	1.30	10.69
		Mittelwerte :			5.94 (± 1.0)	7.08 (± 1.98)	1.40 (± 0.31)	
Ni ₃ Fe – geordnet	Ni ₃ Fe I	533	3.35	6.94	6.27	7.65	1.58	6.97
	Ni ₃ Fe II	705	4.35	8.27	6.17	6.94	1.42	10.17
		Mittelwerte :			6.22 (± 1.0)	7.30 (± 2.01)	1.50 (± 0.33)	

Tabelle 12: Ergebnisse für Einzeldefekte in Ni₃Fe; zur Auswertung wurde das Relaxationsvolumen der Leerstelle zu $\Delta V_V^{Rel} = -0.15 V_c$ angenommen.

Aus den Messungen an (hh0)-Reflexen in $[1\bar{1}0]$ -Richtung an den Proben mit $[001]$ -Drehachse kann, wie aus der Tabelle 1 zu ersehen ist, der Defektsymmetrieparameter $c\pi^{(2)}$ bestimmt werden. Da die numerische Rechnung für die $\gamma^{(i)}$ aus Gl. (4.4) bei dieser Probenorientierung unter einem Winkel von 66.3° zum asymmetrischen (620)-Reflex nur sehr kleine Werte für $\gamma^{(2)}$, d.h. $\gamma^{(2)} \ll \gamma^{(3)}$, liefert, läßt sich bei Auswertung der in dieser Richtung gemessenen Intensitäten (vgl. Kap. 5.2.2, S. 32) aus der Relation zu den Messungen in den radialen Richtungen das Verhältnis $\frac{\pi^{(3)}}{\pi^{(1)}}$ ermitteln. Für den Kristall mit $[0\bar{1}1]$ -Drehachse (Probe Ni_3FeII , ungeordnet) waren entsprechend günstige Bedingungen für die Bestimmung von $\pi^{(2)}$ nicht gegeben, so daß hier nur $c\pi^{(3)}$ und $c\pi^{(1)}$ ermittelt werden konnte. Die Ergebnisse für die Verhältnisse der Defektsymmetrieparameter sind in der Tabelle 13 zusammengestellt.

Probe Bestr.Nr.	Ni_3Fe ungeordnet		Ni_3Fe geordnet	
	$\frac{\pi^{(3)}}{\pi^{(1)}}$	$\frac{\pi^{(2)}}{\pi^{(1)}}$	$\frac{\pi^{(3)}}{\pi^{(1)}}$	$\frac{\pi^{(2)}}{\pi^{(1)}}$
Ni_3FeI	0.014 (± 0.005)	0.008 (± 0.003)	0.008 (± 0.005)	0.005 (± 0.002)
Ni_3FeII	0.017 (± 0.005)	- -	0.013 (± 0.004)	0.006 (± 0.002)

Tabelle 13: Defektsymmetrieparameter für Ni_3Fe

7.2.2 Diskussion der Ergebnisse für die Legierungen Ni_3Fe

Innerhalb der Fehlergrenzen können wesentliche Unterschiede in der Gitterparameter- und Restwiderstandänderung der unter denselben Bedingungen bestrahlten beiden Probentypen nicht festgestellt werden. Die Huangstreuung zeigt für die geordneten Proben im Mittel ca. 19% höhere Defektstreuung an. Zusammen mit den gleichzeitig etwas größeren Gitterparameteränderungen ergeben sich aber im Rahmen der Fehlerbreiten dieselben Defektkonzentrationen und ρ_F -Werte, so daß man auf unterschiedliche Schädigung in den verschiedenen vorbehandelten Proben nicht schließen kann. Auch für die Relaxationsvolumina ergeben sich innerhalb der angegebenen Fehlergrenzen ähnliche Werte. Berücksichtigt man, daß die

Huangstreuung empfindlicher das Defektverhalten anzeigt als die Gitterparameteränderung und beide Meßgrößen linear in die Bestimmung von $\Delta V_I^{\text{Rel}}/V_C$ eingehen, so deutet die höhere Huangstreuung der geordneten Probe eine Signifikanz des unterschiedlichen Absolutwertes für die Relaxationsvolumina in den beiden Probentypen an. Der kleinere Wert für die ungeordnete Legierung entspricht der Vorstellung, daß das ungeordnete Gitter aufgrund des etwas größeren Gitterparameters größere Zwischenräume für die ZGA enthält.

Da sich die Defekteigenschaften der Zwischengitteratome aus den Meßwerten erst nach Separation der Anteile der Leerstellen bestimmen lassen, über deren Verhalten es aber Kenntnisse nicht gibt, kann die LS -ähnlich wie in Cu und Ni - nur als Parameter berücksichtigt werden; in der vorausgehenden Auswertung wurde $\Delta V_V^{\text{Rel}}/V_C = -0.15$ (vgl. Tab. 12) angenommen. Die bei einer Variation des Leerstellenparameters resultierenden Korrekturen sind für beide Probentypen ähnlich; sie sind für die Meßgrößen der geordneten Probe in der Tabelle 14, S. 65, angegeben. Dabei ergibt sich aus der Rechnung der maximale Beitrag der LS zum Relaxationsvolumen zu $\Delta V_V^{\text{Rel}}/V_C = -0.33$. Dieser etwa im Vergleich zu Nickel niedrige Grenzwert deutet auf ein kleines Relaxationsvolumen der Leerstelle in der Legierung hin. Nimmt man bei den bestehenden Unsicherheiten als wahrscheinlichsten Leerstellenbeitrag einen Wert in der Mitte zwischen den Extremwerten (i.e. 0 und -0.33) an, so erhält man den in der Tabelle 14 gekennzeichneten Datensatz, bei dem die entsprechenden Werte für die ungeordnete Probe schon in Tabelle 12 angegeben wurden.

Die Untersuchungen zur Defektstrukturbestimmung in den Ni_3Fe -Legierungen ergeben unabhängig vom Ordnungszustand kleine, aber von Null verschiedene Werte für die Verhältnisse der Symmetrieparameter. Wegen der hohen Bestrahlungsdosen und Defektkonzentrationen (s. Tab. 6, Tab. 12) in den Legierungen können die Werte - analog wie bei den hohen Bestrahlungsdosen in Nickel und Kupfer, s.S. 58 - schon Beiträge kleiner Defektagglomerate enthalten. Deshalb stellen die Meßergebnisse aus Tab. 13 Maximalwerte für ZGA in den Legierungen dar, die jedenfalls noch zu klein sind für Crowdion- und H_C -Konfigurationen. Aus den Messungen ergibt sich somit kein Hinweis, daß die ZGA-Konfigurationen verschieden sind von denen in reinen fcc-Metallen.

		$\xleftarrow{\frac{\Delta V_V^{Rel}}{V_c}} \xrightarrow{\hspace{1cm}}$						
		0	-0.1	-0.15	-0.20	-0.25	-0.3	-0.33
Ni ₃ Fe – geordnet	SpP _I [eV]	66 (+16)	62	59	56	52	46	42
	ρ_F [$\mu\Omega\text{cm/at\%}$]	9.1 (+2.5)	8.0	7.3	6.6	5.8	4.8	4.0
	$\frac{\Delta V_I^{Rel}}{V_c}$	1.7 (+0.4)	1.6	1.5	1.4	1.3	1.2	1.1

Tabelle 14: Ergebnisse für Einzelzwischengitteratome in Ni₃Fe (geordnete Legierung) mit dem Relaxationsvolumen der Leerstelle als Parameter

7.3.1 Experimentelle Ergebnisse für die Legierung Ni_{62.3}Cu_{37.7}

Meßkurven diffuser Röntgenstreuintensitätsmessungen an (400)-Reflexen in [100]-Richtungen sind in der Abbildung 23, S. 66, für die Probe NiCuII gezeigt. Die Breite und Struktur der Reflexe läßt eine Auswertung nur bis zu einem Abstand von ca. $\pm 2^\circ$ zum Reflexzentrum zu (vgl. Kap. 5.1, S. 29). In der Abbildung 24 (S. 66) ist für beide Bestrahlungszyklen der in q-symmetrische Anteil der Defektstreuintensität aufgetragen, die das charakteristische Verhalten der Huangstreuung von Einzeldefekten anzeigt. Die Tabelle 15, S. 67, enthält in der 2. Spalte die entsprechenden Meßwerte der Huangstreuung. Die Meßwerte für die Defektsymmetrieparameter, die mit den Streuintensitätsmessungen an den (400)-Reflexen in [010]-Richtung bestimmt wurden, sind in Spalte 3 eingetragen. Wegen der Probenorientierung war die Messung von $\pi^{(2)}$ nicht möglich. Die beiden letzten Spalten der Tabelle 16 enthalten die Defektkonzentrationen und Frenkeldefektwiderstände. Da an den Ni-Cu-Proben

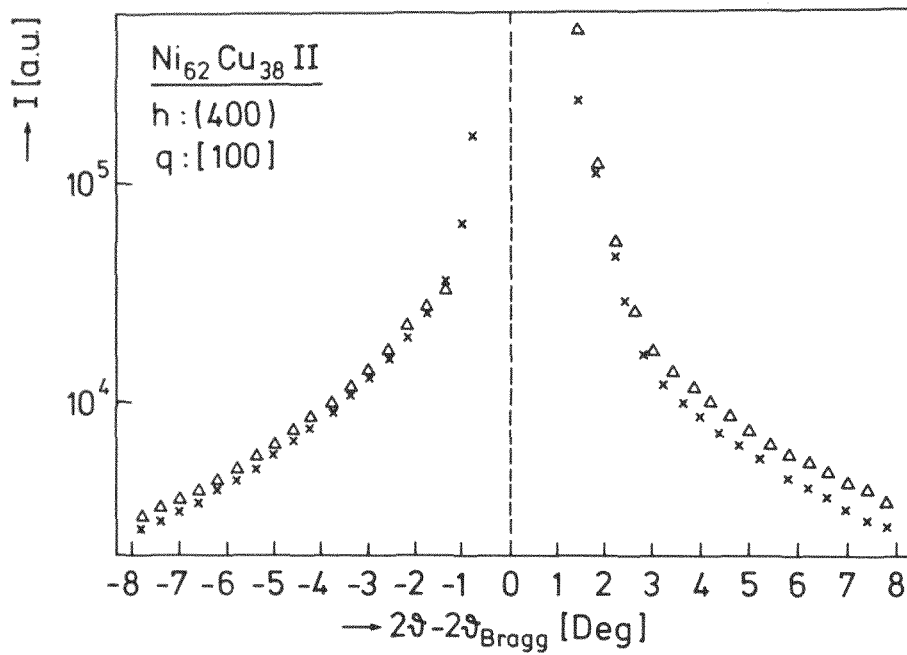


Abb. 23

Meßkurven diffuser Streuintensitätsmessungen an $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$ II ; Untergrundstreuung (x) und Messung nach Bestrahlung bei 6 K (Δ)

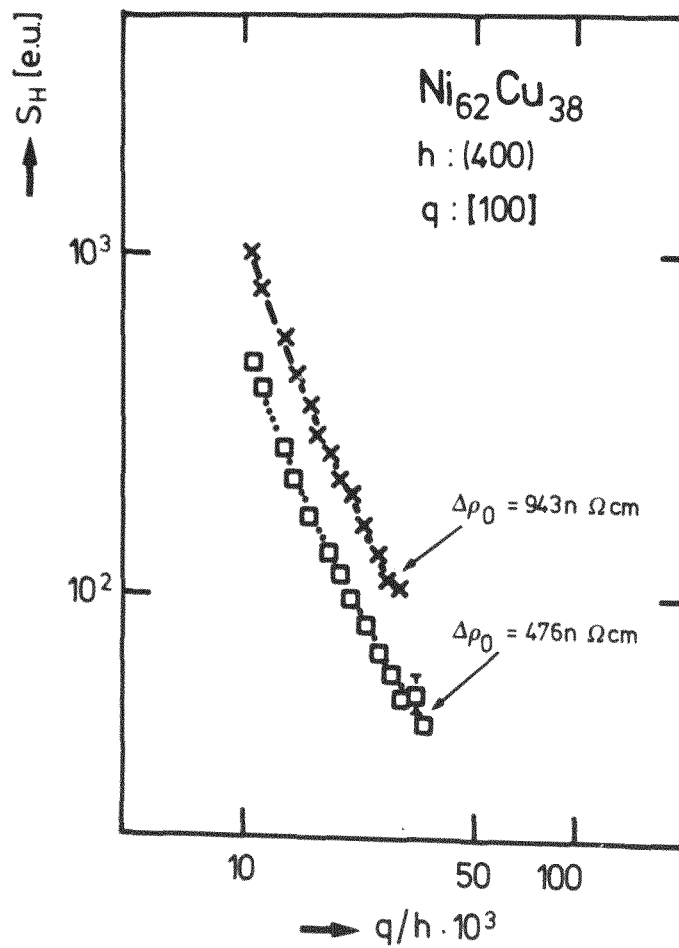


Abb. 24

Huangstreuintensität S_H für $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$ I und II bei 6 K

Probe	1	2	3	4	5
	$\Delta\rho_o$ [nΩcm]	$c\pi^{(1)}$ [10 ⁻²⁴ _{erg} ²]	$\frac{\pi^{(3)}}{\pi^{(1)}}$	c [10 ⁻⁴]	ρ_F [μΩcm/at%]
Ni Cu I	943	6.30	0.009 (±0.004)	6.87	13.72
Ni Cu II	476	3.46	0.006 (±0.006)	3.77	12.62
Mittelwert:					13.17

Tabelle 15: Ergebnisse für ZGA in Ni_{62.2}Cu_{37.7}; $\frac{\Delta V_V}{V_c}^{Rel}$
 Die Werte für c und ρ_F wurden mit $\frac{\Delta V_V}{V_c} = 1.6$ berechnet.

Gitterparametermessungen nicht möglich waren (s. Kap. 5.1, S. 27), wurden diese Werte aus der Huangstreuung unter der Annahme eines Relaxationsvolumens von $\Delta V_I^{\text{Rel}}/V_C = 1.6$ berechnet.

7.3.2 Diskussion der Ergebnisse für die Legierung $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$

Alle von der Defektkonzentration abhängenden Größen sind hier mit den zusätzlichen Unsicherheiten über das zugrunde gelegte $\Delta V_I^{\text{Rel}}/V_C$ behaftet. Die Rechnung mit $\Delta V_I^{\text{Rel}}/V_C = 1.6$ resultiert aus der plausiblen Annahme, daß das Relaxationsvolumen der Defekte in der Legierung ähnlich ist wie in den reinen Komponenten Nickel und Kupfer (s.S. 58). Andererseits scheint aber ein etwas kleineres Relaxationsvolumen in der Legierung nicht ausgeschlossen, wenn man die Ergebnisse in Ni_3Fe , bei denen ein LS-Beitrag noch nicht berücksichtigt ist, s. Tab. 14, mit entsprechenden Werten reiner Metalle (s. Tab. 10) vergleicht. Nimmt man ein kleineres Relaxationsvolumen von $\Delta V_I^{\text{Rel}}/V_C = 1.5$ an, so erhält man $\rho_F = 11.9 \mu\Omega\text{cm/at\%}$. Der Frenkeldefektwiderstand in der Legierung $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$ ist in jedem Fall deutlich höher als in den reinen Metallen.

Bei den Untersuchungen zur Defektstruktur sind Effekte der hohen Betrachlungsdosen - wie für die Ni_3Fe -Legierungen schon diskutiert wurde, s.S. 64 - nicht auszuschließen. Die Meßergebnisse für $\frac{\pi(3)}{\pi(1)}$ aus Tab. 15 deuten für NiCu auf ZGA-Lagen mit kubischer oder tetragonaler Symmetrie hin.

7.4 Zusammenfassung und Vergleich der Ergebnisse bei 6K

Sowohl in Nickel als auch in den Legierungen $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$ und Ni_3Fe wurden nach den Tieftemperaturbestrahlungen bei 6K Einzeldefekte beobachtet. Die Struktur der erzeugten EZGA in Nickel entspricht der einer H_0 -Hantelkonfiguration. Auch in den untersuchten Legierungen sind die Ergebnisse mit H_0 -Konfigurationen der ZGA verträglich, insbesondere sind Crowdion- und H_c -Lagen nicht möglich.

Die quantitativen Resultate ergeben für das Relaxationsvolumen des EZGA in Nickel mit $\Delta V_I^{\text{Rel}}/V_C = 1.7(\pm 0.3)$ einen ähnlichen Wert wie für Kupfer mit $\Delta V_I^{\text{Rel}}/V_C = 1.5(\pm 0.3)$ /6/. Vergleicht man damit Aluminium, $\Delta V_I^{\text{Rel}}/V_C = 1.9(\pm 0.4)$ /53/, so scheint eine Korrelation zwischen dem Relaxationsvolumen und der Anisotropie der Metalle zu bestehen, wobei die kleineren $\Delta V_I^{\text{Rel}}/V_C$ -Werte mit zunehmender Anisotropie auf eine bessere Anpassung der EZGA hinweisen.

Innerhalb der Fehlergrenzen sind mit den Relaxationsvolumina in den reinen Metallen Nickel und Kupfer auch die ZGA-Relaxationsvolumina in Ni_3Fe in Übereinstimmung, die zu $\Delta V_I^{\text{Rel}}/V_C = 1.4(\pm 0.3)$ für die ungeordnete bzw. $\Delta V_I^{\text{Rel}}/V_C = 1.5(\pm 0.3)$ für die geordnete Legierung bestimmt wurden. Ungeachtet der Fehlergrenzen könnten die kleineren Werte für Ni_3Fe durch die größeren Zwischenräume für Nickel-ZGA in den Legierungen erklärt werden, deren Gitter gegenüber dem reinen Metall Nickel durch die Eisenatome aufgeweitet ist.

Die Frenkeldefektwiderstände sind in Nickel ($\rho_F = 6.1(\pm 1.1)\mu\Omega\text{cm/at\%}$) von derselben Größenordnung wie in Ni_3Fe (ungeordnet: $\rho_F = 7.1(\pm 2.0)\mu\Omega\text{cm/at\%}$, geordnet: $\rho_F = 7.3(\pm 2.0)\mu\Omega\text{cm/at\%}$). In $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$ findet man jedoch deutlich größere Werte von $\rho_F = 13.2(\pm 4.0)\mu\Omega\text{cm/at\%}$. Dies bestätigt die Beobachtungen von Poerschke und Wollenberger /13,14/, wonach für ρ_F in der Legierung ein wesentlich höherer Wert als in den reinen Komponenten Nickel und Kupfer zu erwarten ist. Es konnte somit gezeigt werden, daß die etwa im Vergleich zu Nickel hohen Restwiderstandsänderungen bei vergleichbaren Bestrahlungsdosen (vgl. Tab. 6) für die NiCu-Legierung auf dem höheren Widerstandsbeitrag pro Defekt beruhen, während die Schädigungsrate ($\frac{C}{\Phi}$) - wie man aus ρ_F berechnet - in beiden Metallen nicht wesentlich unterschiedlich sind. In den Legierungen Ni_3Fe deutet sich hingegen eine um ca. 13% höhere Schädigungsrate an. Diese Beobachtung ist konsistent mit Ergebnissen von Dimitrov et al, die in Ni-Fe-Cr-Legierungen kleinere Rekombinationsvolumina als in reinen Metallen festgestellt haben /74/.

Für reine Metalle wird in vielen Fällen ein konstantes Verhältnis des Frenkeldefektwiderstandes und des spezifischen Widerstandes bei Raumtemperatur oder der Debye-Temperatur festgestellt; entsprechende Relationen werden auch zwischen ρ_F und ρ am Schmelzpunkt der Metalle diskutiert /75/. Für Legierungen verweisen Dimitrov et al /74/ auf eine analoge Korrelation zwischen ρ_F und dem idealen spezifischen Widerstand $\rho_{id}(RT)$ (Phononenanteil) bei Raumtemperatur, d.h. nach Subtraktion des Restwiderstandes, der bei reinen Metallen vernachlässigbar ist. In der folgenden Tabelle 16 sind diese Größen für die untersuchten Metalle und zum Vergleich auch für Kupfer mit ρ_F aus /6/ zusammengestellt.

Für die reinen Metalle sowie für die Ni-Cu-Legierung scheint mit der Beziehung eine Abschätzung der Größenordnung von ρ_F möglich zu sein. Bei Ni_3Fe gibt es aber größere Diskrepanzen.

	$\rho_{id}(RT)$ [$\mu\Omega cm$]	ρ_F [$\mu\Omega cm/at\%$]
Cu	1.5	2.0
Ni	6.8	6.1
$Ni_{62.3}Cu_{37.7}$	13.6	13.2
Ni_3Fe (S=0)	11.3	7.1
Ni_3Fe (S $\approx$ 0.7)	7.4	7.3

Tabelle 16: Idealer Raumtemperaturwiderstand und Frenkeldefektwiderstand für die untersuchten Metalle und zum Vergleich für Kupfer /6/

8. Defektreaktionen bei der thermischen Erholung

8.1.1 Experimentelle Ergebnisse des Erholungsverhaltens für Nickel

Im Verlauf eines isochronen Erholungsprogramms mit Anlaßzeiten von 20 Minuten wurden die Messungen des elektrischen Restwiderstandes, der Gitterparameteränderungen und der diffusen Streuintensitäten wiederholt. Dabei wurden die Gitterparameteränderungen zwischen 6K und 300K nur bei der höchsten Bestrahlungsdosis (NiIV) detaillierter untersucht. Die Erholung der Gitterparameter und der Restwiderstände sind in den Abbildungen 25 und 26 (S. 72), als Funktion der Anlaßtemperatur gezeigt.

Die Widerstandskurve, Abb. 25, zeigt für alle Nickelproben im Bereich der Stufe I ($T \leq 70K$) starke Erholung. Die Restschädigung am Ende der Stufe I zeigt sowohl einen Anstieg mit zunehmender Dosis (NiIII: $\frac{\Delta\rho}{\Delta\rho_0} = 23\%$, NiII: $\frac{\Delta\rho}{\Delta\rho_0} = 27\%$, NiIV: $\frac{\Delta\rho}{\Delta\rho_0} = 31\%$) als auch einen Einfluß der verschiedenen Probenverunreinigungen. Während die Widerstandsproben NiIV und NiI vergleichbare Dosis erhielten, erholt die mit Aluminium verunreinigte Probe NiIV mehr als Probe NiI ($\frac{\Delta\rho}{\Delta\rho_0} = 38\%$), die durch Silizium verunreinigt war. Diese Unterschiede bleiben bei der mehr oder weniger stetigen Erholung im Verlauf der Stufe II qualitativ erhalten; am Ende der Stufe II bei 300K ist die Widerstandsänderung bis auf 5% bis 12% des Ausgangswertes zurückgebildet. Mit dem weiteren Tempern durch Stufe III wird bis zu deren Ende bei 480K eine vollständige Erholung nicht erreicht. Auch bei 690K deutet bei den hohen Dosen (NiII, NiIV) der Wert von 1.7% noch eine Restschädigung an. Die Erholung in Stufe V konnte nicht weiter untersucht werden, da bei höheren Anlaßtemperaturen durch die Aufnahme von Verunreinigungen ein erneuter Widerstandsanstieg, wie in Abbildung 25 am Beispiel der Probe NiI gezeigt ist, hervorgerufen wurde.

Die Abbildung 26 läßt erkennen, daß die Gitterparameteränderung innerhalb der Fehlergrenzen dasselbe Erholungsverhalten wie der Widerstand zeigt.

In den Bildern 27 und 28 (S. 73) ist das Verhalten der diffusen Streuintensität in Nickel bei der thermischen Erholung an den Beispielen der Proben mit der höchsten (NiIV) und der niedrigsten (NiIII) Bestrahlungsdosis gezeigt. Dazu wurde der symmetrische Anteil der Defektstreuung aus Messungen an (400)-Reflexen in [100]-Richtungen über $\frac{q}{h}$ in doppelt logarithmischer Skala aufgetragen. Nach dem Anlassen bei 45K (NiIII) bzw. 50K (NiIV) ist das

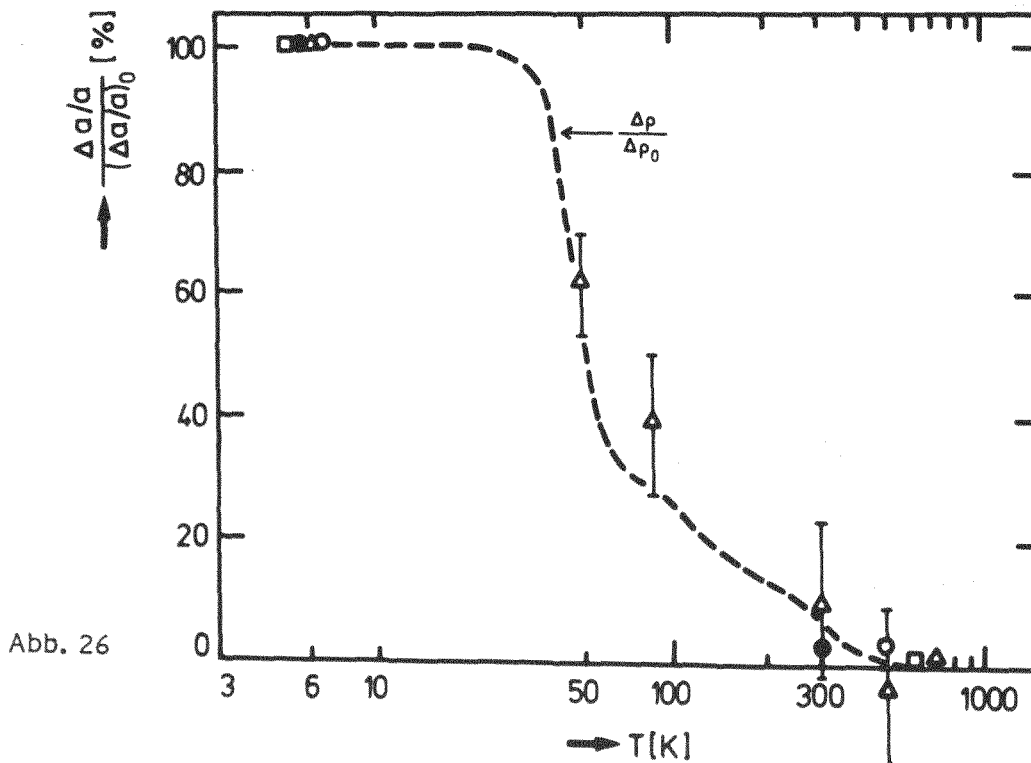
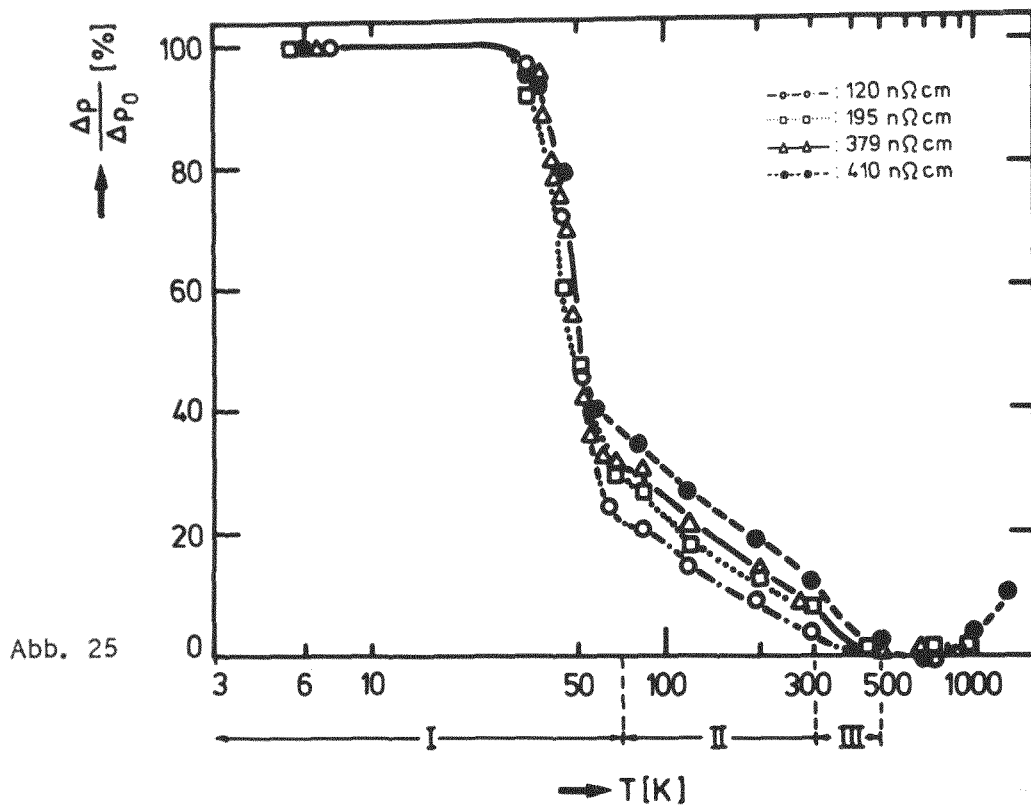


Abb. 25 / 26

Thermische Erholung des Restwiderstandes (Abb. 25) und der Gitterparameteränderung

(Abb. 26) in Nickel:

● : Probe Ni I

□ : Probe Ni II

○ : Probe Ni III

△ : Probe Ni IV

In Abb. 26 ist gestrichelt die Restwiderstandserholungskurve von Ni IV eingezeichnet

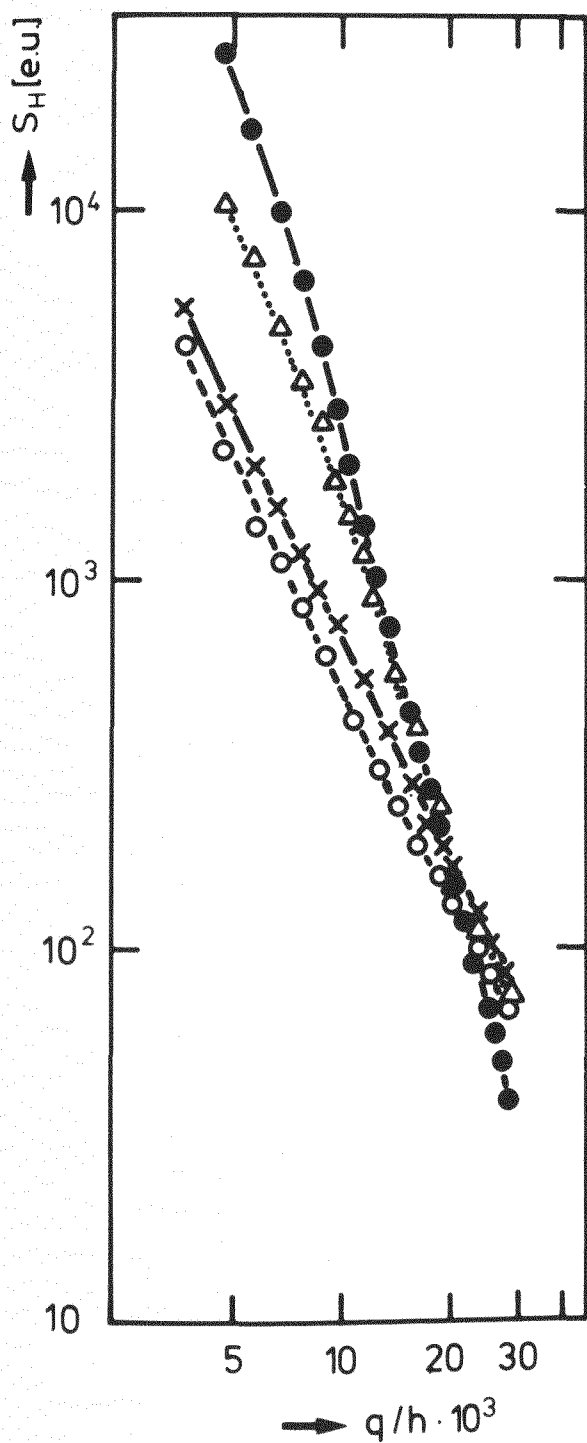


Abb. 27

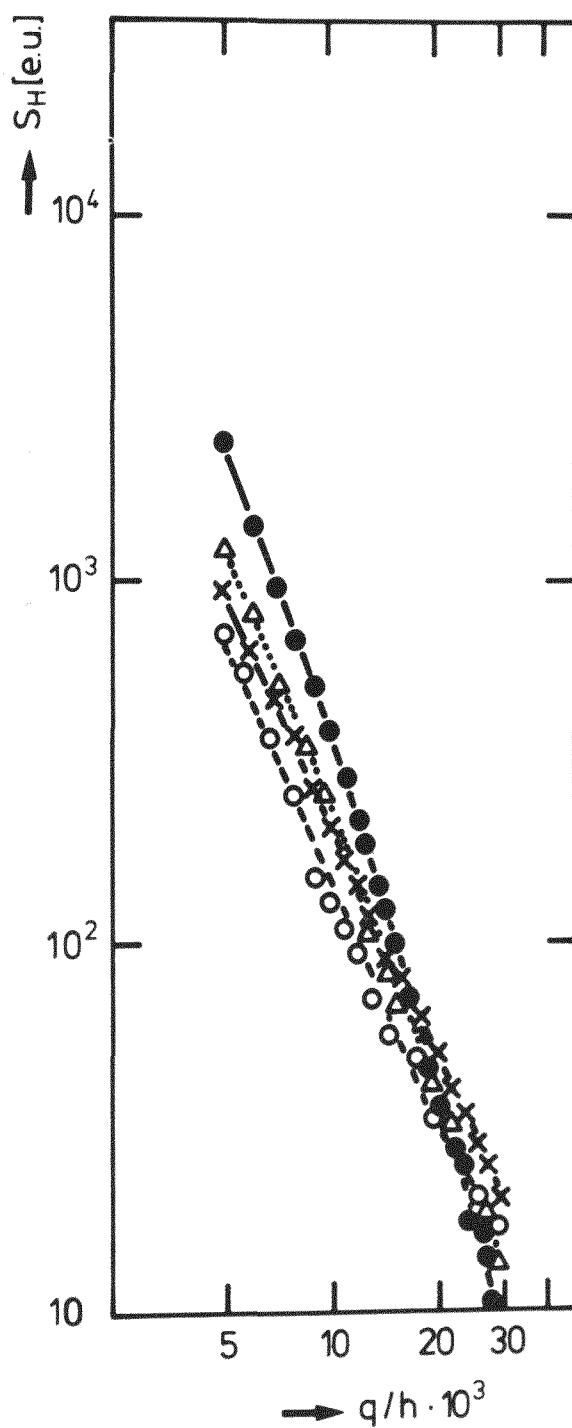


Abb. 28

Erholungsverhalten des symmetrischen Anteils der diffusen Streuintensität in Ni IV (Abb. 27) und Ni III (Abb. 28)

Erholungstemperaturen: $\times \times$ = 6 K
 $\circ \circ$ = 50 K in Ni IV bzw. 45 K in Ni III
 $\triangle \triangle$ = 200 K
 $\bullet \bullet$ = 300 K

q^{-2} -Gesetz der Huangstreuung nach wie vor erfüllt, aber die Intensität hat deutlich abgenommen. Bei der Erholungstemperatur 200K hat sich die Kurvenform verändert: während in Reflexnähe noch der q^{-2} -Anstieg für $q \rightarrow 0$ erhalten ist, zeigt sich bei größeren q -Werten ein stärkerer Abfall. Nach der Erholung bei 300K wird über einen weiten Bereich der Intensitätsverlauf durch eine Gerade der Steigung -4 beschrieben, der somit das Vorliegen von größeren Defektagglomeraten anzeigt. Bei der Probe NiIII mit der kleinsten Bestrahlungsdosis ist der Anstieg proportional zu q^{-4} erst in größerem Abstand vom Reflex voll ausgebildet.

In den Abbildungen 29 und 30, S. 75, wird das Erholungsverhalten ausführlicher dargestellt. Die Abbildung 29 zeigt für alle Nickelproben die Änderung der an den (400)-Reflexen ($q:[100]$) gemessenen Huangstreuung, $S_H^{\parallel} \cdot q^2$, mit zunehmender Anlaßtemperatur, wobei die Intensität, die nach Multiplikation mit q^2 eine Konstante ergibt, jeweils auf den Wert bei 6K, $S_{H_0}^{\parallel} \cdot q^2$, normiert wurde. Da der Huangbereich sich mit zunehmender Erholungstemperatur näher an den Reflex verschiebt und nur in einem kleinen q -Intervall gemessen werden kann, resultieren dann entsprechend größere Fehler. Zum Vergleich ist in dieselbe Abbildung die Widerstandserholungskurve von NiIV eingezeichnet.

Die Abbildung 30 zeigt den Verlauf der in $[010]$ -Richtung an (400)-Reflexen gemessenen Intensität, $S_H^{\perp} \cdot q^2$, die auf die Streuintensität in paralleler Meßrichtung, $S_H^{\parallel} \cdot q^2$, bei derselben Anlaßtemperatur bezogen ist.

Zwischen 6K und 45K nimmt die Huangstreuintensität $S_H^{\parallel}$ (Abb. 29) proportional zum Widerstand ab. In der Meßrichtung senkrecht zum Reflex wird innerhalb der Fehlergrenzen nach wie vor keine Intensität (bzw. in NiIV keine Zunahme, vgl. Kap. 7.1.1, S. 56) beobachtet. Im weiteren Verlauf der Stufe I steigt die Huangstreuung $S_H^{\parallel}$ an und indiziert damit die Bildung kleiner ZGA-Agglomerate, die am Ende der Stufe I aus 2 bis 3 ZGA bestehen (Gl. 4.13). Während der folgenden Temperschritte in Stufe II zeigt der stetige Anstieg von $S_H^{\parallel}$ ständiges Clusterwachstum an.

In den ω -Scans der (400)-Reflexe (s. Abb. 30) sind ab etwa 85K Streubeiträge der Agglomerate zu erkennen; die empfindlicheren ω -Messungen an (200)-Reflexen sind in diesem Temperaturbereich noch nicht auswertbar (vgl. Kap. 7.1.1, S. 54). Entsprechend dem Clusterwachstum nehmen diese Streubeiträge in Stufe II deutlich zu. Gegen Ende der Stufe II wird für die Proben mit den höheren Defektkonzentrationen (NiII und NiIV) ein Intensitätsverhältnis von $S_H^{\perp}/S_H^{\parallel}$

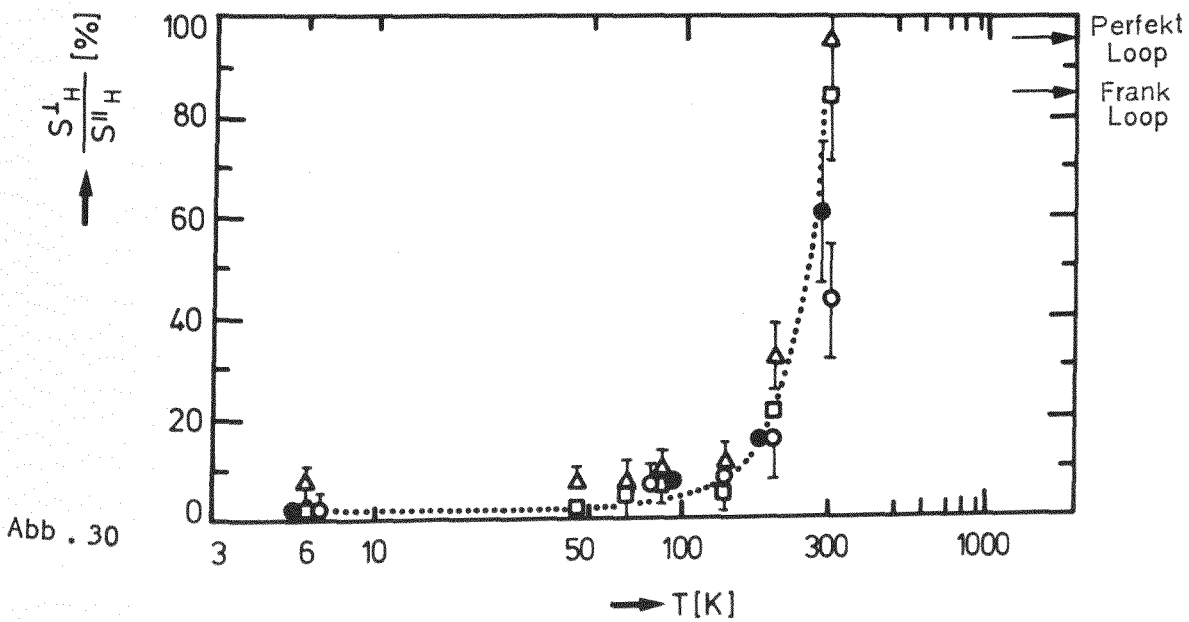
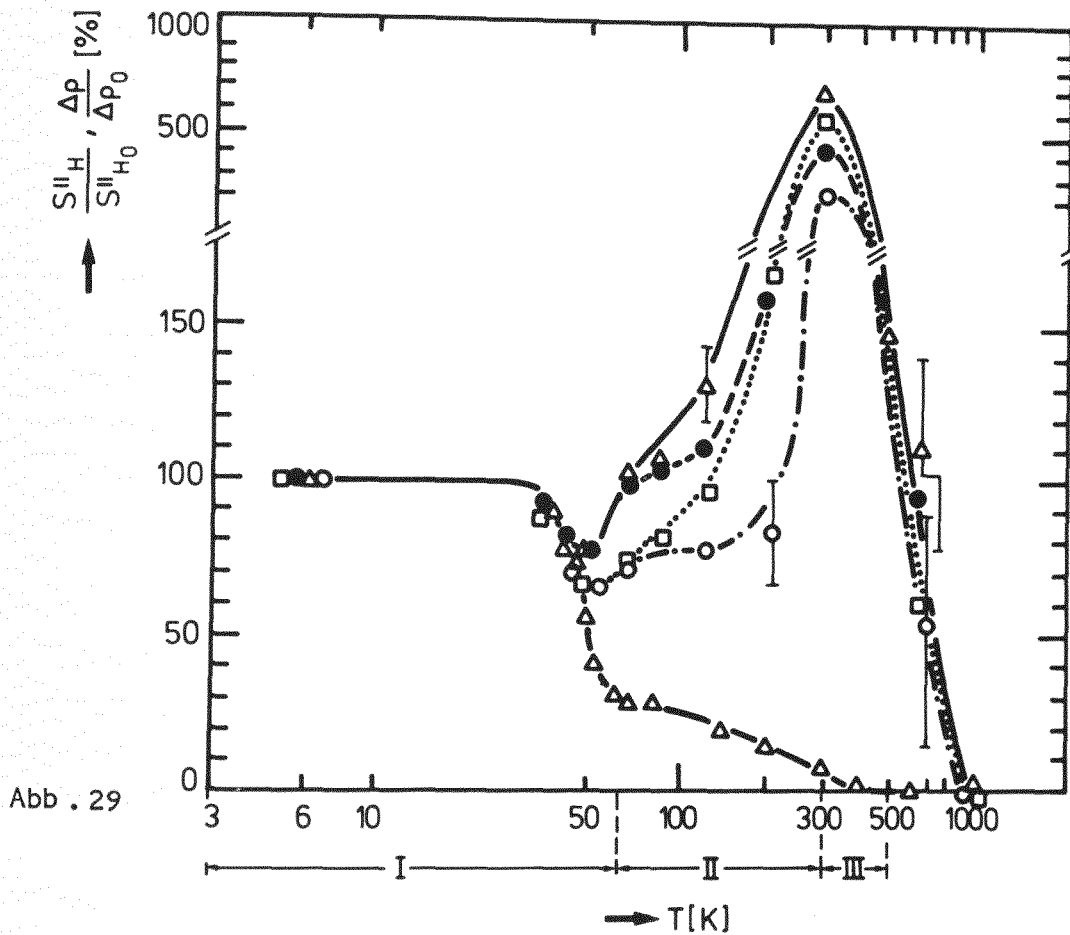


Abb. 29 / 30

Erholungsverhalten der Huangstreuintensität $S_H^{\parallel} \cdot q^2$ ($q : [100]$, Abb. 29) und $S_H^{\perp} \cdot q^2$ ($q : [010]$, Abb. 30) aus Messungen an (400)-Reflexen in Nickel. Zum Vergleich ist in Abb. 29 die Widerstandserholungskurve von Probe Ni IV eingetragen

• : Probe Ni I , □ : Probe Ni II , o : Probe Ni III , Δ : Probe Ni IV

um 90% erreicht; dem entspricht nach Gl. (4.4) und den Tabellen 1 und 3 der Wert $\frac{\pi(3)}{\pi(1)} \approx 0.15$ (± 0.02). Dieser Zahlenwert ist innerhalb der Fehlergrenzen konsistent mit den für Versetzungsringe auf {111}-Ebenen nach der Theorie /45/ zu erwartenden Werten, die z.B. für Frank Loops $\frac{\pi(3)}{\pi(1)} = 0.146$ (entsprechend $S_H^\perp/S_H^\parallel = 0.861$, Abb. 30) und für perfekte Loops $\frac{\pi(3)}{\pi(1)} = 0.164$ ($S_H^\perp/S_H^\parallel = 0.968$) betragen, wobei eine Unterscheidung aus den Meßergebnissen nicht möglich ist. Für die anderen Proben ergeben sich kleinere Werte. Die in der Abb. 30 angegebenen Fehlerbreiten resultieren hier größtenteils aus der Unsicherheit des q^2 -Bereichs der Messungen senkrecht zum reziproken Gittervektor, der bei den großen Agglomeraten (s.u.) auf sehr kleine q -Werte nahe am Reflexzentrum beschränkt ist und nach höheren Anlaßtemperaturen mit zunehmender Agglomeratgröße nicht mehr aufgelöst werden konnte.

Die Tabelle 17, S. 77, faßt die quantitativen Ergebnisse aus der Erholung des Restwiderstandes und der Defektstreuung zusammen; sie enthält die Konzentration c der Zwischengitteratome, die sich mit der bei 6K bestimmten Defektkonzentration c_0 (s. Kap. 7.1.1) aus der Beziehung $c = c_0 \cdot \frac{\Delta\rho}{\Delta\rho_0} = \frac{\Delta\rho}{\rho_F}$ ergibt, und die mittlere Zahl $\langle N \rangle$ der ZGA pro Agglomerat, die für $T \lesssim 300K$ nach Gl. (4.13) und für höhere Temperaturen auch aus dem q^4 -Bereich (s.u.) bestimmt wurde. Die Fehler für $\langle N \rangle$ betragen für Temperaturen zwischen 45K und 200K etwa 10%, und für $T \geq 300K$ bis zu 20%. Mit den Größen c und $\langle N \rangle$ kann man die Konzentration $c_{Cl} = \frac{c}{\langle N \rangle}$ der ZGA-Cluster berechnen.

Aus der Tabelle 17 ersieht man, daß in der Probe NiIV mit der höchsten Defektkonzentration im Verlauf der Stufe II etwas größere Agglomerate aufgebaut werden als in den anderen Proben, was aufgrund der kleineren Defektstände zu erklären ist. Ein starker Anstieg im Clusterwachstum ist bei allen Proben zwischen 200K und 300K festzustellen. Dabei ergibt sich bei 300K für die Probe NiI ein deutlich kleinerer Wert als für die vergleichbare Probe NiII. Dies scheint auf den andersartigen Verunreinigungen zu beruhen, die in NiI die Clusterung unterdrücken. Während die Agglomeratgröße $\langle N \rangle$ für NiI und NiIII nach der Anlaßtemperatur 300K noch aus der Huangstreuintensität $S_H^\parallel$ bestimmt werden konnte, war bei NiII und NiIV ein q^2 -Bereich in $S_H^\parallel$ nur noch nahe am Reflex angedeutet (vgl. Abb. 27). Deshalb liefert hier die Auswertung des asymptotischen q^4 -Bereichs verlässlichere Informationen über die Agglomerate. Die Abbildungen 31 und 32, S. 78, geben den Verlauf der Streuintensität nach Multiplikation mit q^4 als Funktion des Abstandes q beiderseits der Braggreflexe wieder, Abb. 31 zeigt die radialen Messungen an (400)-Reflexen, Abb. 32 an (200)-Reflexen am Beispiel der Probe NiIV nach den Anlaßtemperaturen 300K, 480K und 690K.

T [K]	ZGA-Konz. [ppm] <ZGA/Cluster>	NiIII	NiI	NiII	NiIV
6	c _O <N>	219 1	302 1	304 1	595 1
45	c <N>	157 1	282 1	181 1	445 1
52	c <N>	100 1.4	240 1.1	143 1.4	247 2
65 (Ende Stufe I)	c <N>	50 3	122 2.6	85 2	187 3.5
85	c <N>	47 3	109 3	79 3	182 4
120	c <N>	32 5	80 4	57 5	126 7
200	c <N>	19 9	59 8	39 14	87 18
300 (Ende Stufe II)	c <N>	10 50	36 30	24 120	48 150
480	c <N>	≈ 0 60	5 250	5 300	10 310

Tabelle 17: Thermische Erholung und Clusterwachstum in Nickel. Angegeben ist die aus der Restwiderstandsabnahme berechnete Defektkonzentration c (in ppm) und die mittlere Zahl der ZGA pro Agglomerat <N>. Für $T \leq 300\text{K}$ wurde <N> aus der Huangstreuintensität bestimmt (Gl. 4.13), bei 480K (und bei Ni II und IV auch bei 300K) aus der asymptotischen Streuung.

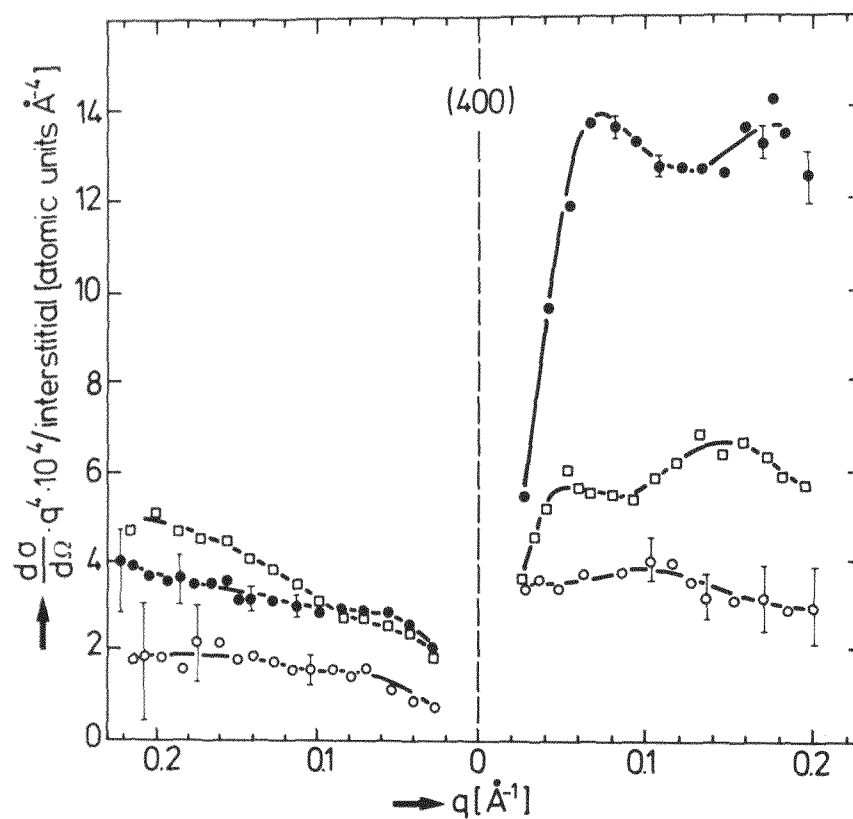


Abb. 31

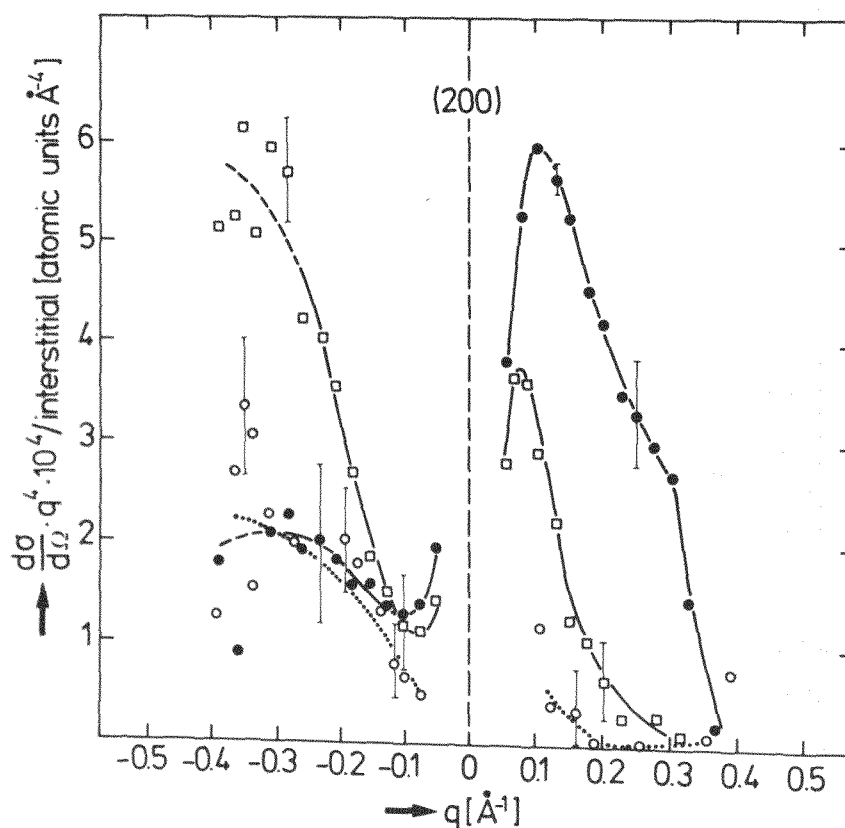


Abb. 32

Abb. 31 / 32

Erholungsverhalten der asymptotischen Streuung in Nickel am Beispiel der Probe Ni IV bei Messungen an (400)-Reflexen (Abb. 31) und (200)-Reflexen (Abb. 32) in $\underline{q} = [100]$ -Richtungen

Erholungstemperaturen: ● = 300 K, □ = 480 K, ○ = 690 K

Bei 300K ist entsprechend der Streuung durch ZGA-Agglomerate die Intensität für $q > 0$ wesentlich höher als für $q < 0$. Man erkennt bei $q > 0$ Oszillationen, die dem q^4 -Verlauf der asymptotischen Näherung (Gl. 4.14) überlagert sind. Diese Strukturen sind durch die Größenverteilung der Agglomerate verschmiert. Deshalb läßt sich aus dem Vergleich des Kurvenverlaufs mit numerischen Rechnungen für die Streuintensität von Loops in Nickel (s. Abb. 8) eine Entscheidung über den Typ der Versetzungsringe nicht eindeutig treffen. Die relativ hohen Intensitäten für $q < 0$ am (400)-Reflex deuten aber darauf hin, daß nicht nur Frank-Loops, sondern auch perfekte Loops zur Streuung beitragen; der Intensitätsverlauf an (200)-Reflexen ist entsprechend der Rechnung (Abb. 8) auf die Art dieser Versetzungsringe nicht spezifisch.

Den Radius R der Versetzungsringe erhält man aus der Lage des 1. Maximums (q_1) mit Hilfe der Beziehung $q_1 \cdot R = \text{const.}$, wobei die Konstante den numerischen Streukurven entnommen wird. Für perfekte Loops ist an (400)-Reflexen $q_1 \cdot R = 1.08$ und an (200)-Reflexen ist $q_1 \cdot R = 1.71$; für Frank Loops ergeben sich mit $q_1 \cdot R = 1.21$ an (400)-Reflexen und $q_1 \cdot R = 1.9$ um ca. 11% höhere Werte für die Radien. Wegen der Unsicherheit über den Looptyp wird in der folgenden Auswertung der Mittelwert genommen, ohne die experimentellen Fehler wesentlich zu vergrößern. Aus den Radien berechnet sich die Anzahl N der ZGA pro Versetzungsring nach $N = \frac{b \cdot F}{V_c}$, wobei b der Burgersvektor und F der Normalenvektor auf die Loopebene ist. Die Ergebnisse für die mittlere Zahl $\langle N \rangle$ der ZGA pro Agglomerat, die man dann als Mittelwert aus den (200)- und (400)-Messungen bei 300K und 480K erhält, sind in der Tabelle 17 (S. 77) angegeben.

Berechnet man die Clustergrößen für dieselben Proben trotz der bestehenden Unsicherheiten aus dem Huangbereich $S_H^{\parallel}$ mit Gl. (4.13), so erhält man (bei 300K) $\langle N \rangle = 70$ (anstatt $\langle N \rangle = 118$) für NiII und $\langle N \rangle = 91$ (anstatt $\langle N \rangle = 150$) für NiIV. Da in Gl. (4.13) noch nicht berücksichtigt ist, daß die Relaxationsvolumina der Atome im Cluster, $\Delta V_I^{\text{Rel}}(N)/V_c$, kleiner als die einzelner ZGA sind und eine entsprechende Korrektur mit zunehmender Clustergröße notwendig wird, ist diese Diskrepanz nicht überraschend; Übereinstimmung läßt sich mit $\Delta V_I^{\text{Rel}}(N)/V_c = 1.3$ (anstatt $\Delta V_I^{\text{Rel}}/V_c = 1.7$) erzielen (vgl. S. 24).

Bei Anlaßtemperaturen oberhalb von 300K beginnt eine teilweise Auflösung der ZGA-Agglomerate, wie an der Rückbildung der Streuintensität im Huangbereich $S_H^{\parallel}$ im Bild 29 und ebenso im q^4 -Bereich für $q > 0$ (Abb. 31/32) zu erkennen ist. Die Verschiebung der Maxima in Abb. 31/32 deutet gleichzeitig ein weiteres

Wachstum der verbleibenden Loops an. Zusätzlich beobachtet man in diesem Temperaturbereich eine Verschiebung der Asymmetrie der Streukurven (s. Abb. 31): im Vergleich zu 300K ist bei 480K die Streuintensität für $q > 0$ deutlich reduziert, während für $q < 0$ ein Anwachsen zu erkennen ist. Dieses Verhalten zeigt LS-Agglomeration an. Da in den Abb. 31/32 innerhalb des Meßbereichs noch kein Abfall von $\frac{d\sigma}{d\Omega} \cdot q^4$ bei $q < 0$ zu erkennen ist, läßt sich über die Größe der LS-Agglomerate keine sichere Aussage machen. Dem q -Wert am Rande des Meßbereichs der (200)-Messung würde ein maximaler LS-Clusterradius von $R = 6\text{\AA}$ entsprechen.

Die in der Tabelle 17 angegebenen Größen der ZGA-Agglomerate wurden bei 480K jeweils aus dem q^4 -Bereich berechnet; insbesondere ist für die Probe NiI bei 480K gegenüber 300K ein starkes Ansteigen der Clustergröße zu beobachten, woraus man schließen kann, daß die Verunreinigungen, die bei 300K im Vergleich zu den anderen Nickelproben das Clusterwachstum noch verzögern, die Agglomeration nicht mehr beeinflussen.

Die Defektkonzentration läßt sich aus der asymptotischen Streuung abschätzen, indem der Mittelwert der Streuintensitäten (Abb. 31,32) auf beiden Seiten des Braggreflexes über entsprechende q -Bereiche gebildet wird und in Relation zum Mittelwert der numerisch berechneten Streuintensität (Abb. 8) gesetzt wird. Wie Abb. 8 zeigt, ist die Intensität am (200)-Reflex praktisch unabhängig vom Looptyp, am (400)-Reflex ergeben sich dagegen Unterschiede. Deshalb wurde am (400)-Reflex der Mittelwert zwischen beiden Looptypen verwendet. Damit erhält man aus den (200)- und (400)-Messungen als Mittelwert bei 300K $c = 100(\pm 40)\text{ppm}$, während aus dem Widerstand 48ppm (s. Tab. 17) berechnet wurde. Zur Erklärung dieses Unterschiedes können zwei Effekte beitragen. Wenn für die ZGA in Loops $\Delta V_{I(N)}^{\text{Rel}} = V_C$ noch nicht erfüllt ist, wird mit der numerischen Rechnung die Streuintensität zu klein berechnet. Das gilt insbesondere für die kleinen ZGA-Agglomerate, die noch nicht gut durch "Loops" beschrieben werden. Der fehlende Abfall der Intensität (i.e. $\frac{d\sigma}{d\Omega} \cdot q^4$, vgl. Abb. 31, Abb. 8) bei großen q -Werten deutet auf eine breite Größenverteilung hin, die diese Erklärung unterstützt. Außerdem besteht die Möglichkeit, daß bei der Bildung größerer Agglomerate der Widerstand pro ZGA abnimmt. Dies konnte während des Agglomeratwachstums bis 200K nicht untersucht werden, weil die Agglomerate noch zu klein waren, um eine quantitative Auswertung der q^4 -Streuung zu erlauben.

Bei 480K berechnet man für NiIV aus dem q^4 -Bereich eine Defektkonzentration von $c = 68(\pm 25)\text{ppm}$. Da die LS stark zur Streuung beitragen (vgl. Abb. 31),

müssen sie hier ebenfalls berücksichtigt werden. Nimmt man zur maximalen Abschätzung den LS-Beitrag zu 50% an, so verbleibt eine ZGA-Konzentration von 34ppm, gegenüber 10ppm, die man aus dem Widerstand berechnet (s. Tab. 17). Da für die großen ZGA-Cluster ($\langle N \rangle \approx 300$) $\Delta V_{I(N)}^{Rel} = V_C$ vorausgesetzt werden kann /43/, bedeutet dies eine Abnahme des "Frenkeldefektwiderstandes" um den Faktor ≈ 3 während der LS-Agglomeration in Stufe III. Bei den anderen Nickelproben ergaben sich ähnliche Verhältnisse.

Nach dem Anlassen bei 690K ist an der Reduktion der Streuintensität in Abb. 31 und 32 eine Auflösung der ZGA- und LS-Agglomerate zu erkennen. Bei 960K ist die thermische Erholung der Nickelproben innerhalb der Fehlergrenzen abgeschlossen.

8.1.2 Diskussion des Erholungsverhaltens für Nickel

Die gemessenen Widerstandserholungskurven sind qualitativ in Übereinstimmung mit vergleichbaren Erholungsspektren von Nickel nach Elektronenbestrahlung /76,77,35/. Die nach Erholungsstufe I verbleibende Restschädigung in NiII, III und IV ist trotz der Probenverunreinigung mit Aluminium sehr ähnlich der von Knöll /76/ an wesentlich reinerem Material gemessenen Schädigung. Die mit Silizium verunreinigte Probe NiI zeigt eine etwas geringere Erholung in Stufe I, aber ebenso wie die anderen Proben eine kontinuierliche Erholung in Stufe II. Unabhängig von den verschiedenen Probenverunreinigungen ist das Erholungsverhalten des Restwiderstandes durch die unvollständige Erholung in Stufe III gekennzeichnet.

Aus der Erholung des Restwiderstandes und der diffusen Streuintensitätsmessung lassen sich die folgenden Aussagen über die Defektreaktionen während der thermischen Erholung ableiten. Zu Beginn der Stufe I nimmt (bis etwa 45K) die Defektkonzentration durch die Rekombination nah benachbarter Frenkelpaare ab; die Struktur der verbleibenden Defekte (Ho-Hanteln, s. Kap. 7.1.1) ändert sich in diesem Temperaturbereich nicht. Mit Stufe I_D erfolgt bis zum Ende der Stufe I eine Zusammenlagerung von Einzelzwischengitteratomen zu kleineren Agglomeraten, die aus $\langle N \rangle \approx 3$ ZGA bestehen. Die Reaktionen erfolgen unabhängig von der Art der Probenverunreinigungen.

In Stufe II bilden sich größere ZGA-Cluster, wobei ein starker Sprung im Wachstum der Agglomerate gegen Ende der Stufe II zwischen 200K und 300K beobachtet wird. Die Agglomerate enthielten bei 300K bis zu 150 ZGA.

Mit dem langsamen Clusteraufbau zu Beginn der Stufe II zeigt Nickel ähnliches Verhalten wie Aluminium /53/. Da in Aluminium die Stufe III bei tieferen Temperaturen (180K) einsetzt als in Nickel, ist das starke Clusterwachstum gegen Ende der Stufe II nicht mehr vergleichbar. Im Unterschied dazu werden in Kupfer /6/ durch die hohe Beweglichkeit von Doppelzwischengitteratomen schon am Ende der Stufe I größere Agglomerate ($N \approx 5-10$) gebildet, die auch zu Beginn der Stufe II schnell weiter wachsen. Obwohl ein quantitativer Vergleich des Clusterwachstums in den verschiedenen Metallen wegen des nicht abschätzbaren Effektes der unterschiedlichen Probenverunreinigungen schwierig ist, deutet die völlig analoge Widerstandserholung der hier untersuchten Nickelproben mit Proben größerer Reinheit darauf hin, daß das langsame Clusterwachstum in Nickel eine intrinsische Eigenschaft der kleinen ZGA-Agglomerate ist.

Über den Einfluß von Verunreinigungen auf das Defektverhalten in elektronenbestrahltem Nickel sind direkt vergleichbare Untersuchungen nur für Silizium-Dotierungen bekannt. Oddou /35/ hat bei der Restwiderstandserholung ($\Delta\rho_0 = 35\text{n}\Omega\text{cm}$, $\hat{=}$ 55ppm) von mit 1000ppm bzw. 5000ppm Silizium dotiertem Nickel eine Erhöhung der Restschädigung nach Stufe I und eine Detrappingstufe um 240K gefunden. Während somit im Falle einer wesentlich höheren Konzentration der Silizium-Haftstellen als der ZGA ein starkes Trapping beobachtet wird, zeigten sich bei der Probe NiI mit ca. 180ppm Silizium und 300ppm ZGA keine deutlichen Effekte (weder im Widerstand noch in der Clustergröße). Das heißt, daß die ZGA-Agglomerate in Stufe II wachsen, obwohl die Konzentration der Fremdatome größer ist als die Konzentration der nach Stufe I verbleibenden ZGA bzw. der Cluster (s. Tab. 17). Dies bedeutet, daß bei den vorliegenden Defektkonzentrationen bzw. den Defektabständen eine stärkere Wechselwirkung zwischen Zwischengitteratomen als zwischen ZGA und Impurity besteht. Ein Einfluß der Detrappingstufe bei 240K auf das Agglomeratwachstum kann nicht festgestellt werden, da in diesem Temperaturbereich auch bei den anderen Proben ein starker Anstieg der Clustergröße beobachtet wurde.

Beim Clusterwachstum in Stufe II deutet sich somit lediglich ein gradueller Unterschied für verschieden verunreinigte Proben an, wobei eine langsamere Clusterentwicklung gegen Ende der Stufe II in der mit Silizium verunreinigten Probe festgestellt wurde. Dies zeigt an, daß die Verunreinigungen, obwohl sie die einzelnen ZGA (unter dem Einfluß der ZGA-ZGA-Wechselwirkung) nicht quantitativ festhalten können, doch die Beweglichkeit der kleinen Agglomerate beeinflussen.

Bei allen Nickelproben wurde gegen Ende der Stufe II verstärktes Clusterwachstum festgestellt, wobei gleichzeitig eine deutliche Änderung der Defektsymmetrie beobachtet wurde. Für die Proben mit den höheren Defektkonzentrationen nimmt dabei der Parameter $\frac{\pi(3)}{\pi(1)}$ für Versetzungsringe auf {111}-Ebenen typische Werte an. Konsistent damit ist die erstmals nach dem Anlassen bei 300K beobachtete Oszillation im asymptotischen Streubereich. Aus beiden Messungen läßt sich der Strukturtyp der Versetzungsringe nicht eindeutig festlegen. Der asymptotischen Streuung würde ein Gemisch aus Frank-Loops und perfekten Loops am besten entsprechen. Ähnlich zu den Verhältnissen in Kupfer /6/ ergibt sich damit eine quantitative Diskrepanz bezüglich der Verteilung der Looptypen zu den Untersuchungen im Hochspannungselektronenmikroskop, bei denen in Nickel (ebenso wie in Kupfer) hauptsächlich Frank-Loops beobachtet wurden /78,79/. In Anbetracht der Fehlermöglichkeiten bei den Messungen an den hier betrachteten Reflextypen erscheint dieser Unterschied nicht als relevant.

In der Erholungsstufe III bilden sich in Nickel LS-Agglomerate, die durch die Änderung der Asymmetrie und der Intensität der asymptotischen Streuung eindeutig nachgewiesen wurden. Mit der LS-Clusterung ist eine Abnahme des Frenkeldefektwiderstandes verbunden. Dies ist analog zu Beobachtungen in anderen Metallen wie Kupfer /6/ und Gold /80/. Infolge der LS-Wanderung beginnt auch eine teilweise Auflösung und Reduktion der Zahl der ZGA-Cluster. Dabei werden kleinere Agglomerate instabil; sie lagern sich anderen Agglomeraten an, so daß größere Cluster entstehen. Als mittlere Zahl der ZGA pro Cluster (die aus einer Größenverteilung von Agglomeraten resultiert) wurde für die Probe mit der höchsten Defektkonzentration am Ende der Stufe III $\langle N \rangle \approx 300$ bestimmt.

Die LS-Agglomeration führt dazu, daß eine vollständige Defektrekombination erst in Stufe V möglich wird. Die Defektreaktionen in Stufe III, d.h. die LS-Agglomeration bei gleichzeitigem ZGA-Clusterwachstum sind völlig analog zu den Beobachtungen in Kupfer.

8.2.1 Experimentelle Ergebnisse des Erholungsverhaltens für die Legierungen Ni_3Fe

Die thermische Erholung der Ni_3Fe Proben erfolgte in einem isochronen Erholungsprogramm mit Anlaßzeiten von 20 Minuten bis zur Erholungstemperatur von 680K, die ca. 95K unterhalb der Temperatur des Ordnungs-/Unordnungsübergangs liegt. Dabei wurden jeweils die zwei Probentypen (ungeordnet bzw. vorgeordnet) eines Bestrahlungszyklus (I bzw. II) gleichzeitig erholt. Die Erholung der elektrischen Restwiderstände sind in der Abbildung 33, S. 85, für die ungeordneten Proben und in der Abbildung 34, S. 86, für die vorgeordneten Proben gezeigt. In diesen Bildern ist auch jeweils die prozentuale Erholung der Huangstreuintensität $S_{\text{H}}^{\parallel} \cdot q^2$ ($q \parallel [110]$) eingetragen, die auf den Meßwert $S_{\text{H}_0}^{\parallel} \cdot q^2$ bei 6 K normiert ist.

Wie aus den Abbildungen 33 und 34 zu ersehen ist, verläuft die Restwiderstandserholung in beiden Probentypen bis zur Anlaßtemperatur 340K sehr ähnlich; bei höheren Temperaturen ergeben sich aber drastische Unterschiede mit einer erheblichen Übererholung in den geordneten Proben. Bei beiden Probentypen sind mehrere verschmierte Erholungsstufen zu erkennen. Während die Restwiderstandsabnahme bis etwa 120K in kleineren Erholungsstufen erfolgt, deutet der relativ steile Abfall zwischen 120K und 200K auf einen effektiveren Erholungsprozeß hin, an den sich ab 300K eine weitere ausgeprägte Stufe anschließt. Die Erholungskurven ergaben im Temperaturbereich zwischen 6K und 340K für die vorgeordneten Proben immer geringfügig höhere Widerstandswerte als für die ungeordneten Proben. Diese Unterschiede betrugen aber höchstens 4%, so daß sich daraus bis 340K innerhalb der Fehlergrenzen kein Hinweis auf unterschiedliches Erholungsverhalten ergibt. Vergleicht man die beiden Erholungszyklen, so liegen für jeden Probentyp beim 2. Erholungsexperiment (Ni_3FeII) die Werte zwischen 35K und 52K auf einem etwas höheren Niveau (bis zu 6%). Da eine Diskontinuität in der Schädigungszunahme gegen Ende der Bestrahlung der Proben II auf eine kurzzeitige Temperaturerhöhung hindeutete, scheint dieser Unterschied, der bei 52K nur noch ca. 2.5% beträgt, auf der reduzierten Zahl der entsprechenden Ausheilprozesse (Rekombination naher Frenkelpaare) zu beruhen.

Wesentliche Unterschiede im Erholungsverhalten der beiden Probentypen wurden erstmals nach dem Anlassen bei 390K festgestellt. Während dieser Temperaturschritt in den ungeordneten Proben lediglich zu einer weiteren Reduktion der bestrahlungsinduzierten Restwiderstandserhöhung führte, waren die Wi-

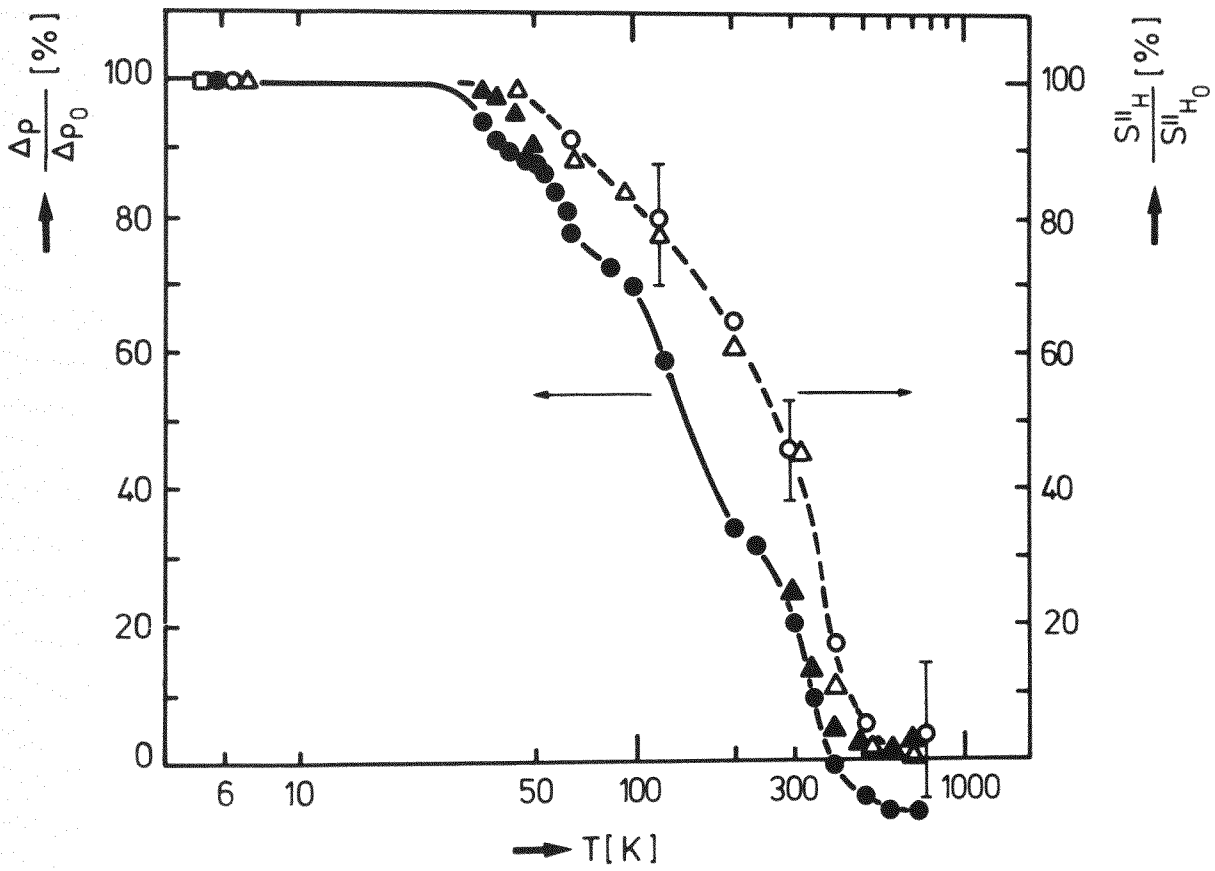


Abb. 33

Erholungsverhalten des elektrischen Restwiderstandes (ausgefüllte Symbole) und der Huangstreuintensität S_H (offene Symbole) in den ungeordneten Ni_3Fe -Proben;
 Probe Ni_3Fe I : ● bzw. ○, Probe Ni_3Fe II : ▲ bzw. △

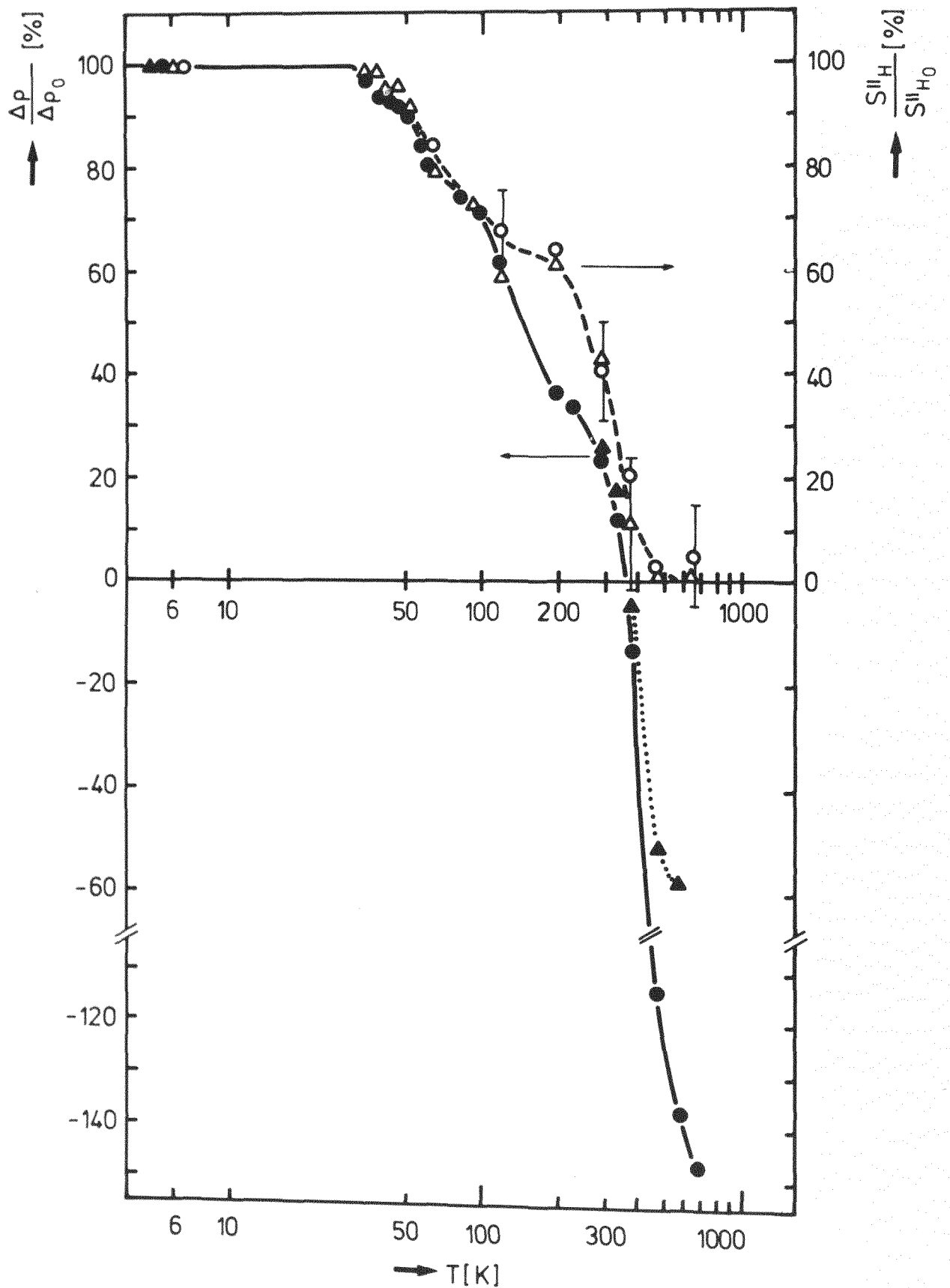


Abb. 34

Erholungsverhalten des elektrischen Restwiderstandes (ausgefüllte Symbole) und der Huangstreuintensität S_H (offene Symbole) in den vorgeordneten Ni_3Fe -Proben;
 Probe Ni_3Fe I: ● bzw. ○, Probe Ni_3Fe II: ▲ bzw. △

derstände der vorgeordneten Proben kleiner als vor der Bestrahlung. Diese Reduktion deutet auf Ordnungsbildung hin. Die Übererholung setzte sich während des weiteren Anlassens fort und betrug $\frac{\Delta\rho}{\Delta\rho_0} = -148\%$ für die Probe Ni_3FeI (geordnet) bei 680K. Um diese Ordnungsprozesse weiter zu verfolgen, wurde dieselbe Widerstandsprobe zum 2. Bestrahlungsexperiment wieder benutzt (Ni_3FeII , geordnet). Beim 2. Erholungszyklus zeigte sich eine weitere Übererholung ($\frac{\Delta\rho}{\Delta\rho_0} = -56\%$ bei 580K). Hier war nach dem Tempern bei 680K die Widerstandsmessung nicht mehr möglich, da ein Potentialabgriff auf der Widerstandsprobe abgebrochen war.

Die ungeordnete Widerstandsprobe Ni_3FeI ließ nach dem Anlassen oberhalb 480K eine geringe Übererholung erkennen ($\frac{\Delta\rho}{\Delta\rho_0} = -8\%$ bei 680K). Um den identischen Ausgangszustand zu erhalten, wurde im 2. Bestrahlungsexperiment eine neue Probe verwendet; hier wurde innerhalb der Fehlergrenzen nach dem thermischen Anlassen Übererholung nicht beobachtet.

Die Huangstreuung zeigt während der thermischen Erholung für beide Probentypen eine ständige Intensitätsabnahme. Dabei ergaben sich innerhalb der Fehlergrenzen bei den zwei Erholungszyklen keine Unterschiede. Für die vorgeordneten Proben verläuft bis etwa 120K die Erholung der Huangstreuung vollkommen parallel zur Restwiderstandserholung. Bei den ungeordneten Proben deutet sich in diesem Temperaturbereich eine etwas geringere Erholung der Streuintensität an. Bei beiden Probentypen ergeben sich aber deutliche Unterschiede zwischen Restwiderstands- und Streuintensitätserholung erst oberhalb 120K. Unabhängig vom Probentyp wird zwischen 390K und 480K die vollständige Erholung der Huangstreuung beobachtet.

Die Erholung der Gitterparameteränderungen wurde an den Ni_3Fe -Proben wegen der großen Meßfehler ($\approx 15\%$) nicht ausführlich untersucht. Nach der Erholungstemperatur 300K wurden Messungen durchgeführt, deren Ergebnisse in der folgenden Tabelle 18 zusammengestellt sind; die Daten geben die prozentuale Erholung $\frac{\Delta a/a}{(\Delta a/a)_0}$, bezogen auf den Meßwert bei 6K ($\frac{\Delta a}{\Delta a}$) (s. Kap. 7.2.1) wieder. Man erkennt, daß bei 300K die Gitterparameteränderung noch nicht völlig zurückgebildet ist und innerhalb der Meßfehler gut mit der prozentualen Erholung von $\Delta\rho$ übereinstimmt. Bei 390K ist im Rahmen der Fehlergrenzen der Gitterparameter vollständig erholt. Für die geordneten Proben deutet sich bei 680K - in Analogie zur Übererholung des Restwiderstandes - ein kleinerer Wert als vor der Bestrahlung an, der mit einer Erhöhung des Ordnungsparameters übereinstimmt. Für die ungeordnete Probe Ni_3FeI ergaben die inkonsisten-

ten Meßwerte an verschiedenen Probenorten bei 390K und 680K Hinweise auf eine Verbiegung der Röntgenprobe.

Erholungs- temperatur [K]	$\frac{\Delta a/a}{(\Delta a/a)_0} [\%]$			
	← ungeordnete Proben		→ vorgeordnete Proben	
	Ni ₃ FeI	Ni ₃ FeII	Ni ₃ FeI	Ni ₃ FeII
300	21	29	19	8
390	(- 8)	2	- 2	0
680	(-10)	0	-15	- 7

Tabelle 18: Prozentuale Erholung der Gitterparameteränderungen $\frac{\Delta a}{a}$ in Ni₃Fe bezogen auf den Meßwert bei 6K (vgl. Kap. 7.2.1)

Die Messungen der integralen Streuintensitäten zur Untersuchung von Ordnungsgradänderungen während der Erholung ergaben die in der Tabelle 19, S. 89, zusammengestellten Werte für die Fernordnungsparameter S. Diese wurden aus der relativen Änderung des Überstruktur-/Fundamentalreflex-Intensitätsverhältnisses als Mittelwert der Messungen an (110), (330) sowie (220), (440) und (660)- Reflexen berechnet (vgl. Kap. 5.3, S. 44). Bei den ungeordneten Proben wurde innerhalb der Fehlergrenzen keine Änderung des Fernordnungsparameters festgestellt. Für die vorgeordneten Proben ergab sich bei 300K im Rahmen der Meßgenauigkeit noch kein Hinweis auf eine Zunahme des Fernordnungsparameters. Während sich nach dem Anlassen bei 390K erstmals geringfügig größere Werte als vor der Bestrahlung andeuten, ergibt die Erholung bei 680K eine beträchtliche Zunahme des Fernordnungsparameters. Für die Probe Ni₃FeI mit einem Ausgangswert von S = 0.69 ergibt sich S = 0.91; beim Nachbestrahlen derselben Probe im 2. Bestrahlungsexperiment (Ni₃FeII) wird eine weitere Zunahme von S = 0.91 auf S = 0.98 beobachtet.

Probentyp Erholungs- temperatur [K]	vorgeordnete Proben		nicht vorbehandelte Proben
	Ni ₃ FeI	Ni ₃ FeII	Ni ₃ FeI/II
	S	S	S
vor Bestrahlung	0.69	0.91 (<u>+0.04</u>)	< 0.1
6	0.70 (<u>+0.04</u>)	0.92 (<u>+0.04</u>)	< 0.1
300	0.72 (<u>+0.05</u>)	0.91 (<u>+0.04</u>)	< 0.1
390	0.77 (<u>+0.05</u>)	0.96 (<u>+0.04</u>)	< 0.1
680	0.91 (<u>+0.04</u>)	0.98 (<u>+0.04</u>)	< 0.1

Tabelle 19: Entwicklung des Ordnungsgrades bei der thermischen Erholung von Ni₃Fe

8.2.2 Diskussion des Erholungsverhaltens für die Legierungen Ni_3Fe

Die folgende Diskussion wird in den Temperaturbereich bis etwa Raumtemperatur und in den sich anschließenden Bereich bis zur Phasengrenze ($T \approx 775\text{K}$) unterteilt. Dabei ist der erste Temperaturbereich durch die Wanderung der ZGA charakterisiert; der Bereich bis etwa 200K entspricht der Stufe I der reinen Metalle und das vergleichsweise enge Temperaturintervall zwischen 200K und 270K entspricht der Stufe II. Der 2. Temperaturbereich ist durch die Beweglichkeit der LS bestimmt; dabei entspricht das Intervall zwischen ca. 270K und 390K der Erholungsstufe III der reinen Metalle.

Beim thermischen Anlassen erholt die Huangstreuintensität für die vorgeordneten Proben bis zur Anlaßtemperatur 120K im gleichen Maße wie der Widerstand und zeigt damit an, daß die Defektkonzentration aufgrund der Rekombination naher Frenkelpaare abnimmt. Auch für die nicht vorbehandelten Proben ist innerhalb der Fehlergrenzen ein paralleler Verlauf der Erholungskurven von $S_{\text{H}}^{\parallel}$ und $\frac{\Delta\rho}{\Delta\rho_0}$ gegeben, obwohl sich eine etwas geringere Rückbildung der Huangstreuintensität andeutet. Daraus ergibt sich aber mit $\langle N \rangle \lesssim 1.3$ bei 120K (Gl. (4.13)) noch kein deutliches Anzeichen einer Agglomeratbildung, so daß auch hier die Defektrekombination nah benachbarter Frenkelpaare vorherrscht. Aufgrund der hohen Defektkonzentrationen (vgl. Tab. 12) und der ZGA-ZGA-Wechselwirkung kann man - ähnlich wie bei den hohen Bestrahlungsdosen in Nickel (vgl. S. 58) - eine geringe Clusterung schon im Temperaturbereich der Rekombination enger Paare erwarten.

Für beide Probentypen ergeben sich deutliche Unterschiede zwischen Restwiderstands- und Streuintensitätserholung erst zwischen 120K und 200K. Dementsprechend findet man unabhängig vom Ordnungsgrad der Proben nach der Anlaßtemperatur 200K kleine Agglomerate, die aus $\langle N \rangle \approx 2$ ZGA bestehen. Daraus folgt eine Verteilung der Defektgrößen, die von einzelnen "getrappten" ZGA über die dominierenden Doppelzwischengitteratome bis zu wenigen größeren Agglomeraten reicht.

Zu Beginn der ZGA Wanderung beträgt (bei einer Konzentration zwischen 400ppm und 570ppm (Ni_3FeI bzw. Ni_3FeII)) der mittlere Abstand der ZGA ca. $32 \text{ \AA}$. Damit zeigt die Agglomeratbildung, daß die ZGA über größere Distanzen gewandert sind. Da die ZGA Konzentration andererseits doch relativ hoch ist, wird eine freie ZGA Wanderung eventuell durch die Wechselwirkung mit benachbarten ZGA beeinflusst, so daß eine exakte Bestimmung der Temperaturlage der Wanderung auch bei genaueren Messungen problematisch erscheint.

Mit zunehmender Anlaßtemperatur werden keine wesentlich größeren Agglomerate gebildet; bei 300K erhält man wie zuvor $\langle N \rangle \approx 2$. Das bedeutet, daß Doppelzwischengitteratome in Ni_3Fe - im Unterschied zu reinen Metallen und zu NiCu (s. Kap. 8.3) - bis Raumtemperatur unbeweglich sind.^{*)} Für diese kleinen Agglomerate wurde innerhalb der Meßfehler (analog zu Nickel) keine Änderung der Symmetrieparameter $\frac{\pi(3)}{\pi(1)}$ bzw. $\frac{\pi(2)}{\pi(1)}$ beobachtet. Dies entspricht einer linearen Überlagerung der Verschiebungsfelder bei der Bildung der Doppelzwischengitteratome.

Nach dem Anlassen bei 300K zeigen die noch nicht erhaltenen Gitterparameteränderungen für beide Proben typen noch das Vorliegen von Defekten an und bestätigen quantitativ die Gültigkeit der vom Widerstand angezeigten Defektkonzentrationen und damit die zuvor bestimmten Clustergrößen.

Die bisher beschriebenen Defektreaktionen können verglichen werden mit Ergebnissen der Messungen der magnetischen Nachwirkung an Ni_3Fe . Blythe et al /81/ haben nach e^- -Bestrahlung in geordneten Ni_3Fe Kristallen ein Maximum der Relaxationsstärke bei 42K beobachtet, das sie der Reorientierung eines Defekts zuschreiben, der zwischen 100K und 150K ausheilt. Da das Relaxationsmaximum in ungeordneten Kristallen (die allerdings mit relativ kleiner Dosis bestrahlt wurden) nicht auftrat, wurde der Effekt als Umorientierung von ZGA aus Oktaederlagen interpretiert, die nur in der geordneten Substanz tetragonale Symmetrie haben können. Obwohl eine Oktaederlage der ZGA mit den vorliegenden Messungen verträglich ist (vgl. Kap. 7.2.1), scheint das Erholungsverhalten eher darauf hinzudeuten, daß es sich um die Umorientierung eines "engen" ZGA-LS-Paares handelt. Denn nach unseren Beobachtungen sollte bei 150K noch ein größerer Prozentsatz der Defekte als Einzelzwischengitteratome vorliegen.

Andererseits könnte das experimentelle Ergebnis, daß innerhalb der Meßgenauigkeit keine Änderung des Ordnungsparameters während Stufe I und II beobachtet wurde, die Annahme einer Oktaederlage der ZGA (d.h. einer echten Zwischengitterlage) unterstützen. Denn eine "Interstitialcy-Konfiguration" könnte zu einer Ordnungsbildung führen (s. Kap. 3, Abb. 5). Ohne eine detaillierte Untersuchung der Aktivierungsenergien der verschiedenen möglichen Sprünge (unter Berücksichtigung der relativ geringen Sprungzahlen der ZGA bis zur Rekombination bzw. Clusterung) erscheint ein solcher Schluß aber reichlich spekulativ.

*) Bei dieser Interpretation der Ergebnisse wird durchweg davon ausgegangen, daß die unterdrückte Agglomeratbildung nicht auf Defekteinfangreaktionen an Verunreinigungen beruht. Obwohl wegen der geringen Menge an Probenmaterial keine direkte Analyse möglich war, wird diese Annahme durch die Analyse der Ausgangslegierung (70 atppm interstitielle und 60 atppm substitutionelle Verunreinigungen) gestützt.

Ein weiterer interessanter Aspekt des Verhaltens der ZGA in Legierungen ergibt sich aus dem Vergleich mit verdünnten NiFe-Legierungen. Die Untersuchungen von Oddou /35/ an Nickellegierungen mit 5000ppm und 10000ppm Eisenanteilen haben zwei "Detrappingstufen" bei 76K und 87K ergeben. Dies zeigt, daß die ZGA in der konzentrierten Legierung erst bei wesentlich höheren Temperaturen wandern, als man aus dem Verhalten in der verdünnten Legierung annehmen würde.

Beim Anlassen der Proben oberhalb 300K ist an der Reduktion der Huangstreuintensität die Auflösung der kleinen ZGA Agglomerate zu erkennen. Im Rahmen der Fehlergrenzen ist die Huangstreuintensität bei 480K erholt. Diese Erholung kann durch die einsetzende LS-Wanderung erklärt werden. Dies ist konsistent mit den Ergebnissen aus Abschreckexperimenten mit Ni_3Fe , die gezeigt haben, daß LS in Ni_3Fe um 100°C beweglich werden /82/.

Die Übererholung des Restwiderstandes in den vorgeordneten Ni_3Fe -Kristallen, die auf weitere Ordnungsbildung hinweist, erfolgt im Temperaturbereich zwischen 340K und 390K (Nulldurchgang bei ca. 370K in Ni_3FeI). Parallel dazu wird bei 390K erstmals eine Zunahme des Fernordnungsparameters beobachtet. Dies zeigt, daß eine merkliche Ordnungsbildung erst in Stufe III erreicht wird. Die Übererholung ist nach dem 1. Erholungszyklus wesentlich größer als nach der 2. Erholung. Dies ist in Analogie zum Grad der Ordnungszunahme, die bei Ni_3FeI ($S=0.69 \rightarrow S=0.91$) größer ist als bei Ni_3FeII ($S=0.91 \rightarrow S=0.98$), weil aufgrund des höheren Ausgangswertes bei Ni_3FeII die Fernordnung schon weitgehend ausgebildet ist.

Im Gegensatz dazu wird eine Änderung des Ordnungszustandes bei den nicht vorgeordneten Proben im Rahmen der Meßgeauigkeit nach der Erholung nicht festgestellt ($S < 0.05$ wie vor Bestrahlung, s. Kap. 5.3). Die geringe Übererholung, die für die Widerstandsprobe Ni_3FeI auf eine Ordnungsbildung hindeutete, wurde im 2. Bestrahlungsexperiment nicht reproduziert. Die bestrahlungsinduzierte Ordnungsbildung scheint somit sehr empfindlich von der Existenz einer vorher bereits vorhandenen geordneten Phase abhängig zu sein.

Dieses unterschiedliche Verhalten der beiden Probentypen im Bereich der LS-Wanderung könnte prinzipiell sowohl durch eine Nukleationsbarriere bei der Ordnungsbildung als auch durch ungleiche Defektmuster, aus denen verschiedenen lange Wege der LS bis zur Rekombination resultieren, als auch durch unterschiedliche Effektivität der LS-Diffusion in den verschieden vorbehandelten

Substanzen erklärt werden. Eine thermodynamische Nukleationsbarriere kann wegen der großen Temperaturdifferenz zur Phasengrenze ausgeschlossen werden /21,24/. Zudem haben Messungen der Nahordnungsparameter von Lefebvre et al /22/ ergeben, daß in Ni_3Fe die Nahordnung sehr ähnlich zur Fernordnung ist. Das bedeutet, daß immer schon Keime für die Fernordnung vorhanden sind.

Im zweiten Fall müßte man annehmen, daß bei der Defekterzeugung in den geordneten Ni_3Fe -Proben wesentlich längere Ersetzungsstoßfolgen ausgelöst werden als in nicht vorgeordneten Kristallen. Aufgrund der ähnlichen Massen der Legierungspartner ist das nicht zu erwarten. Vergleichbare Elektronenbestrahlungsexperimente mit geordneten Ni_3Mn -Kristallen /29/ haben auch keine Hinweise auf längere Stoßfolgen aufgrund der Ordnung (wie sie bisher in geordnetem Ni_3Mn nur nach n-Bestrahlung beobachtet wurden /30/) erbracht. Eine größere Separation von ZGA und LS in den vorgeordneten Ni_3Fe -Proben sollte sich auch in einem unterschiedlichen Erholungsverhalten in Stufe II äußern, was hier nicht beobachtet wurde. Deshalb kann man annehmen, daß die Sprungzahlen der LS bis zur Rekombination an den Doppelzischengitteratomagglomeraten in beiden Probentypen ähnlich sind. Wenn, wie bei Ni_3FeII , bei 300K ca. 200ppm LS vorliegen und 100ppm ZGA-Agglomerate, beträgt der mittlere Abstand zwischen LS und ZGA Cluster ungefähr 38 Å.

Die Zunahme der Fernordnung in der vorgeordneten Probe bedeutet dann, daß die LS-Sprünge effektiver für die Ordnungsbildung sind. Dies kann man sich mit dem folgenden Bild verständlich machen: Bei der Ordnungsbildung entstehen zunächst entsprechend der Nahordnung /22/ viele geordnete Mikrobereiche, die aber noch keine Fernordnung bezüglich der Definition der Untergitter ausmachen. Deshalb sind sehr viele LS Sprünge notwendig, um den Beginn einer Fernordnung sichtbar zu machen, da einzelne vorgeordnete Bereiche wieder zerstört werden müssen. Erst wenn über einen "Domänenbereich" die Untergitter einheitlich vorgebildet sind, d.h. das Perkollationslimit erreicht ist, kann die Ordnungseinstellung effektiv erfolgen. Mit zunehmendem Ordnungsgrad hat das zur Folge, daß die LS Sprünge in der Ni_3Fe -Ordnungsstruktur mehr und mehr auf die Nickel-Untergitter beschränkt werden, weil beim Sprung ins Eisen-Untergitter mit großer Wahrscheinlichkeit eine Fehlordnung resultiert. Da eine LS im perfekten Eisen-Untergitter bei einem nächsten Nachbarsprung ein fehlgeordnetes Atom erzeugt, wird man bei sehr hohen Ordnungsgraden wieder eine Abnahme der Effektivität der LS Sprünge erwarten.

Wie sich an den ungeordneten Ni_3Fe -Proben zeigt, wird allein durch die bestrahlungsinduzierten LS das Perkollationslimit nicht erreicht, weil die LS vorzeitig an den nahen Senken (ZGA-Clustern) rekombinieren. Die geringe Übererholung der thermisch nicht vorgeordneten Widerstandsprobe Ni_3FeI wäre durch eine von den anderen Proben etwas abweichende Ausgangsstruktur erklärbar, wenn während des Abschreckens bei der Probenpräparation, bei der Nahordnung entsteht, eine bessere Vorordnung erreicht worden wäre. Zur experimentellen Untersuchung der Lage einer solchen Schwelle bei der Ordnungsbildung könnten z.B. Elektronenbestrahlungen mit relativ geringen Dosen an Proben mit definierten kleinen Ordnungsgraden dienen.

Im Unterschied zu diesen Elektronenbestrahlungsexperimenten wurde von Ferro und Griffa /82/ in Ni_3Fe nach dem Abschrecken von 1000°C beim Anlassen ($T \geq 100^\circ\text{C}$) Ordnungsbildung beobachtet. Dies ist wegen der wesentlich geringeren Senkendichte (Versetzungen) für die Rekombination der LS in den abgeschreckten Proben möglich.

Vergleichbare Elektronenbestrahlungsexperimente zur Untersuchung bestrahlungsinduzierter Ordnungsbildung in Legierungen wurden von Gilbert et al /32/ an Cu_3Au unternommen. Dabei wurde sowohl in vorgeordneten als auch in abgeschreckten Proben Ordnungsbildung bei der Erholung festgestellt, die - ebenso wie in Ni_3Fe - erst durch die beweglichen LS in Stufe III ermöglicht wird. Der Unterschied zu den Beobachtungen in abgeschrecktem Ni_3Fe könnte durch nicht äquivalente Ausgangsbedingungen, d.h. eine relativ bessere Vorordnung des Cu_3Au nach dem Abschrecken oder die unterschiedliche Ordnungsenergie der beiden Legierungssysteme erklärt werden.

Während bei den Untersuchungen an Ni_3Fe unterschiedliche Ordnungseffekte bei verschiedenen Vorordnungsgraden der Proben beobachtet wurden, haben Riviere et al /83/ an identisch vorgeordneten Fe -40at% Al Legierungen (bcc-Überstrukturzelle) einen Einfluß der Bestrahlungsart auf die bestrahlungsinduzierte Ordnungsbildung festgestellt: während nach Elektronenbestrahlung beim Anlassen in Stufe III Übererholung eintrat, zeigten neutronenbestrahlte Proben keine Ordnungsbildung. In diesem Fall könnten die unterschiedlichen LS-Sprungzahlen bis zur Rekombination für die Ordnungsbildung von Bedeutung sein.

Zusammenfassend hat die thermische Erholung der elektronenbestrahlten Ni_3Fe -Proben gezeigt, daß ZGA - wie in reinen Metallen - schon bei tieferen Temperaturen ($T \approx 120\text{K} - 200\text{K}$) als die LS beweglich werden. Die Wanderung ist aber

gegenüber reinem Nickel und auch gegenüber dem verdünnten System NiFe deutlich verzögert. Die ZGA bilden bei ihrer Wanderung in den Ni_3Fe -Legierungen im wesentlichen nur Doppelzwischengitteratome, die im Gegensatz zu reinen Metallen unbeweglich sind bis in den Bereich der LS-Diffusion. Die wandernden ZGA tragen im Rahmen der Meßgenauigkeit nicht zur Ordnungsbildung bei. Ohne weitere detaillierte Untersuchungen läßt dies aber keinen Schluß auf den Diffusionsmechanismus zu. Die ZGA Cluster werden mit dem Beginn der Stufe III ab ca. 270K durch heranwandernde LS aufgelöst. Diese Defektreaktionen wurden unabhängig vom Probenotyp (ungeordnet bzw. vorgeordnet) beobachtet.

Die LS-Wanderung in Stufe III führt in thermisch vorbehandelten Proben zu einer Zunahme des Fernordnungsgrades, während in ungeordneten Proben eine Ordnungsbildung nicht induziert wird. Dies kann durch die unterschiedliche Effektivität der LS-Sprünge für die Fernordnung je nach dem Grad der Vorordnung erklärt werden.

8.3.1 Experimentelle Ergebnisse des Erholungsverhaltens für die Legierung $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$

Die Ergebnisse der Messungen des elektrischen Restwiderstandes und der Huangstreuintensität im Verlauf des isochronen Erholungsprogramms (Anlaßzeiten 20 min) sind für beide Ni-Cu-Bestrahlungen in der Abbildung 35 (S. 97) zusammengestellt. Die Erholungskurven des Restwiderstandes zeigen bis zur Anlaßtemperatur 600 K eine kontinuierliche Widerstandsabnahme, die zwischen 180 K und 200 K bereits zur Übererholung führt; diese Übererholung ist auf die bestrahlungsinduzierte Entmischung der Legierung zurückzuführen. Obwohl für die mit der kleineren Dosis bestrahlte Probe NiCuII die Übererholung in $\frac{\Delta\rho}{\Delta\rho_0}$ größer ist als für NiCuI, ist die absolute Restwiderstandsabnahme bei derselben Anlaßtemperatur für beide Proben ähnlich, was auf eine nur sehr schwache Abhängigkeit des Entmischungsgrades von der Bestrahlungsdosis hindeutet (s. Kap. 8.3.2). Wie am Beispiel der Probe NiCuI zu sehen ist (Abb. 35), wird mit dem Tempern bei 870 K die Probe wieder in den Ausgangszustand vor Bestrahlung überführt.

Die Veränderungen der Defektmuster während der thermischen Erholung werden qualitativ durch die Abbildung 36 (S. 98) dokumentiert; sie zeigt für NiCuI den symmetrischen Anteil der diffusen Röntgenstreuung aus Messungen an (400)-Reflexen in $q=[100]$ -Richtung bei Anlaßtemperaturen zwischen 6 K und 300 K als Funktion des Abstandes q in doppelt logarithmischer Skala. Wie bei 6 K wird nach dem Anlassen bei 95 K der Kurvenverlauf durch das q^{-2} -Gesetz der Huangstreuung beschrieben, wobei die Intensität der Streuung gegenüber 6 K etwas zugenommen hat ($\approx 8\%$). Während auch mit höheren Anlaßtemperaturen die Asymmetrie der diffusen Streuintensität wie bei 6 K (vgl. Abb. 23) erhalten bleibt – was anzeigt, daß weiterhin Defekte vom ZGA-Typ vorliegen –, nimmt ab 150 K die Steigung des symmetrischen Anteils der Streuintensität für $q \rightarrow 0$ zu. Dieser Anstieg zeigt, daß ZGA gewandert sind und Agglomerate gebildet haben, die mit zunehmender Anlaßtemperatur wachsen. In der gleichzeitig beobachteten Abnahme des Widerstandes kommt zum Ausdruck, daß dabei auch Defektrekombination und zusätzlich Entmischung stattfindet.

Die zusammenfassende Darstellung des Erholungsverhaltens der Huangstreuung in der Abbildung 35 zeigt bei der Erholungstemperatur 70 K eine geringe Intensitätsabnahme bis zu 6%. Mit zunehmender Erholungstemperatur steigt die Huangstreuintensität entsprechend der ZGA-Agglomeration bis zur Erholungstemperatur 230 K an.

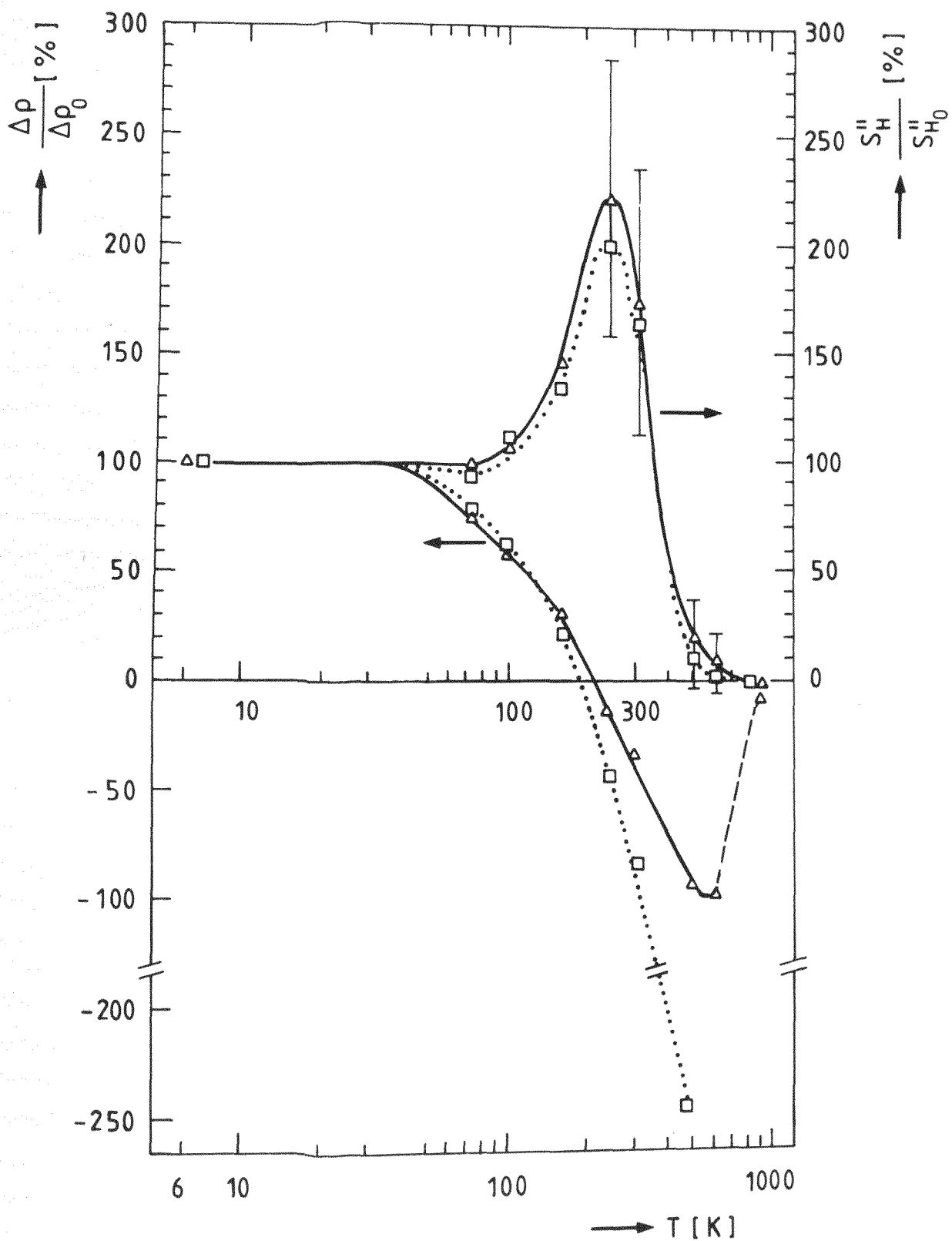


Abb. 35

Erholungsverhalten des elektrischen Restwiderstandes und der Huangstreuung S_H für

$\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$;

$\triangle-\triangle$ = NiCu I

$\dots\square-\square\dots$ = NiCu II

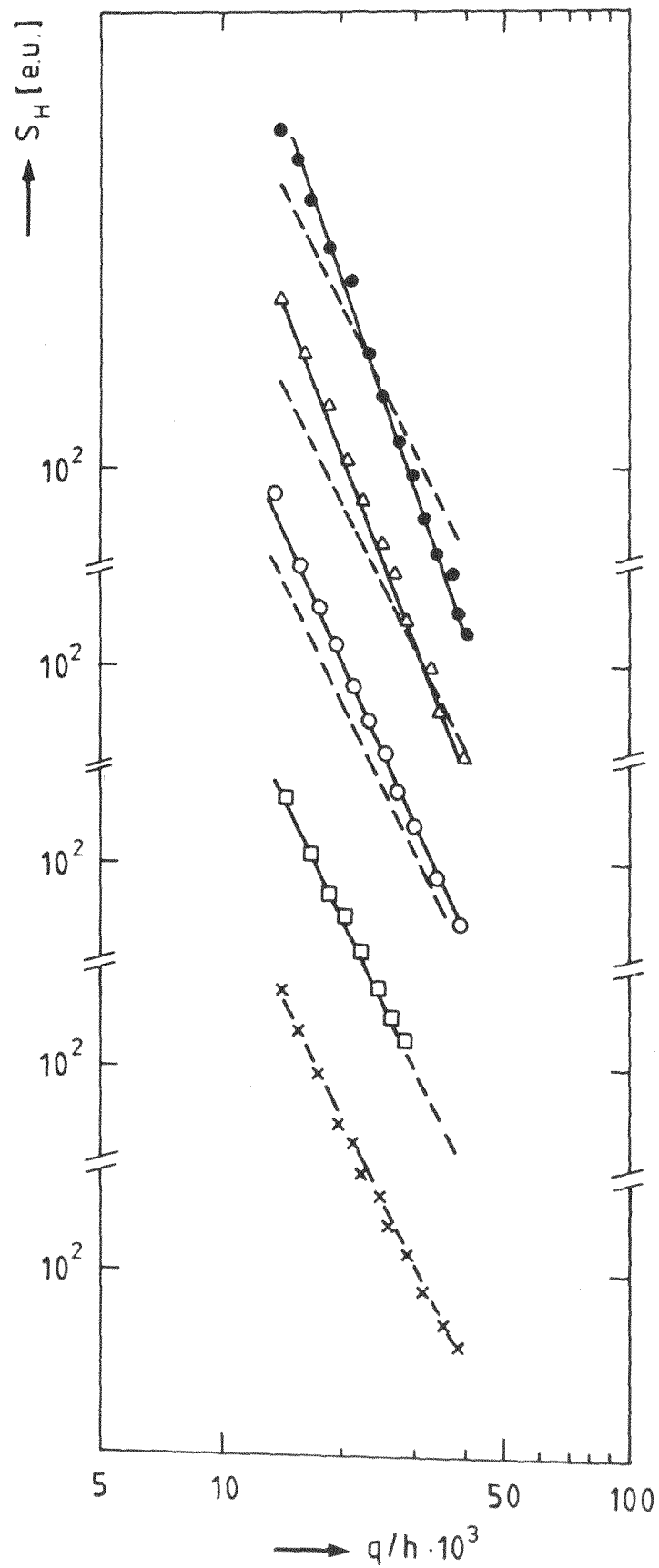


Abb. 36

Erholungsverhalten des symmetrischen Anteils der diffusen Streuintensität in NiCu I aus Messungen an (400)-Reflexen in [100]-Richtung

Erholungstemperaturen: $\times \times$ und gestrichelte Kurven = 6 K, $\square \square$ = 95 K, $\circ \circ$ = 150 K, $\triangle \triangle$ = 230 K, $\bullet \bullet$ = 300 K

Bei der Bestimmung der Agglomeratgröße resultieren Unsicherheiten aus der ungenauen Kenntnis der Defektkonzentration; denn auch in dem Temperaturbereich, in dem Übererholung noch nicht beobachtet wird, kann $\frac{\Delta\rho}{\Delta\rho_0}$ durch die Entmischung der Legierung beeinflusst sein und daher kleinere Werte angeben, als der Defektkonzentration entspricht. Deshalb stellen die Zahlenwerte für $\langle N \rangle$, die in der Tabelle 20 (S. 100) für die Erholung der Probe NiCuI bis 150 K aus der Restwiderstandserholung und der Huangstreuung berechnet wurden (Gl. (4.13)), eher Maximalwerte für die mittlere Zahl der ZGA pro Agglomerat dar. Für höhere Temperaturen fehlt ein direktes Maß für die Defektkonzentration; auch eine quantitative Auswertung des asymptotischen Streubereichs ist nicht möglich, da noch keine Steigung $t=-4$ (vgl. Abb. 36) ausgebildet ist. Deshalb wurde die für die Agglomeration charakteristische Form der Streukurven (Abb. 36) dazu benutzt, um über den Vergleich mit entsprechenden Streukurven von Referenzproben, für die $\langle N \rangle$ bekannt ist, auf die Agglomeratgröße zu schließen. Als Referenzdaten bieten sich hier die Erholungskurven von reinem Nickel an. Bei diesem Verfahren wird die Steigung t der Streukurven außerhalb des Huangbereichs von NiCu und Ni in entsprechenden q -Bereichen verglichen (vgl. z.B. Abb. 27 und Abb. 28 mit Abb. 36); gleiche Steigung bedeutet dann gleiche Agglomeratgröße (s. Tab. 17). Die Auswertung ergibt die in der Tabelle 20 eingetragenen Werte für die mittlere Zahl der ZGA pro Agglomerat. Mit den so bestimmten Agglomeratgrößen läßt sich dann mit den Meßwerten der Huangstreuintensität für NiCu über Gl. (4.13) auch die Defektkonzentration c ausrechnen, die - bezogen auf den Meßwert c_0 bei 6 K - in der Spalte 1 der Tabelle 20 eingetragen ist. Bei 150 K ergibt sich mit dieser Anpassung an Nickel für $\frac{c}{c_0}$ innerhalb der Fehlergrenzen ein mit $\frac{\Delta\rho}{\Delta\rho_0}$ übereinstimmender Wert.

Wie aus der Tabelle 20 weiter hervorgeht, wird mit zunehmender ZGA-Agglomeration auch eine Zunahme der Parameter $\frac{\pi(3)}{\pi(1)}$, d.h. eine Änderung der Defektsymmetrie beobachtet. Ähnlich wie bei reinem Nickel wird die Zusammenlagerung der ZGA in $\frac{\pi(3)}{\pi(1)}$ erst bei Agglomeraten mit $\langle N \rangle$ zwischen 5 und 15 sichtbar. Auch bei 300 K $\frac{\pi(3)}{\pi(1)} = 0.04$ entspricht $S_H^\perp / S_H^\parallel = 24\%$; vgl. Nickel, Abb. 30) mit $\langle N \rangle \approx 29$ bildet die Mehrzahl der ZGA-Cluster noch keine "Loops" (nach der Theorie /45/ wäre für Frankloops $\frac{\pi(3)}{\pi(1)} = 0.126$ und für perfekte Loops $\frac{\pi(3)}{\pi(1)} = 0.141$); dies ist konsistent mit den Beobachtungen für Nickel, wo die Umlagerung zu Versetzungsscheibchen auch erst bei $\langle N \rangle \approx 25$ erfolgt (s. Abb. 30 und Tab. 17).

T [K]	$\frac{c}{c_0}$ [%]	$\langle N \rangle$	$\frac{\pi(3)}{\pi(1)}$
95	57 (a) (± 3)	1.8 (a) (± 0.3)	0.009 (± 0.004)
150	30 (a) (± 3)	5 (a) (± 2)	0.011 (± 0.004)
230	15 (b) (± 8)	15 (b) (± 4)	0.014 (± 0.004)
300	6 (b) (± 3)	29 (b) (± 7)	0.04 (± 0.01)

Tabelle 20: Thermische Erholung und Clusterwachstum für NiCu I

(a): Werte aus der Restwiderstandserholung

(b): Werte aus der Anpassung der Streukurven an Nickel (s. Text))

Voraussetzung für die Anwendung dieses Verfahrens zur Größenbestimmung der Agglomerate ist, daß ähnliche Agglomerattypen in NiCu und Nickel vorliegen; diese Annahme wird durch das ähnliche Verhalten der Symmetrieparameter $\frac{\pi(3)}{\pi(1)}$ gestützt. Aus den Fehlern, mit denen die mittleren Steigungen (vgl. Abb. 36) behaftet sind, ergeben sich die in der Tabelle 20 angegebenen Fehler zu etwa 25 % bei den Daten für $\langle N \rangle$. Da sich mit zunehmender Agglomeratgröße der Huangbereich näher an den Reflex verschiebt, die Auswertung aber wegen der Kristallqualität nur bis ca. 2° - 3° möglich ist (vgl. Abb. 23), resultieren größere Fehler für $S_H^\parallel / S_{H_0}^\parallel$ (s. Abb. 35) und somit für $\frac{c}{c_0}$, die ca. 50 % bei 230 K und 300 K betragen.

Bei Anlaßtemperaturen oberhalb von 230 K zeigt die Rückbildung der Huangstreuung die beginnende Auflösung der ZGA-Agglomerate an, was auf den Beginn der LS-Wanderung zurückzuführen ist. Innerhalb der Fehlergrenzen ist die Huangstreuung zwischen 480 K und 600 K erholt.

8.3.2 Diskussion des Erholungsverhaltens für die Legierung $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$

Die Erholungskurven der elektrischen Restwiderstände sind in guter Übereinstimmung mit entsprechenden Untersuchungen von Poerschke und Wollenberger /13,14,15/ nach e^- -Bestrahlungen von $\text{Ni}_{63}\text{Cu}_{37}$. Zum Vergleich sind in der Abbildung 37 die Restwiderstandsänderungen $(\rho - \rho^V)$ bezüglich des Widerstandes vor der Bestrahlung, ρ^V , als Funktion der Anlaßtemperatur T für die Proben NiCuI und II zusammen mit zwei Erholungskurven nach /15/ angegeben; diese Referenzdaten wurden nach Bestrahlungen mit geringerem Elektronenfluß ($1 \cdot 10^{17} \text{ e}^-/\text{cm}^2$ bzw. $1 \cdot 10^{18} \text{ e}^-/\text{cm}^2$) gemessen, als für die vorliegenden Proben $(1-2) \cdot 10^{19} \text{ e}^-/\text{cm}^2$, s. Tab. 6) gewählt wurde. Die Auftragung in der Abb. 37 erlaubt im Unterschied zu der relativen Restwiderstandserholung einen direkten Vergleich des bestrahlungsinduzierten Entmischungsgrades. In die Abb. 37 ist punktiert auch die Gleichgewichtskurve einer NiCu Legierung mit 58at%

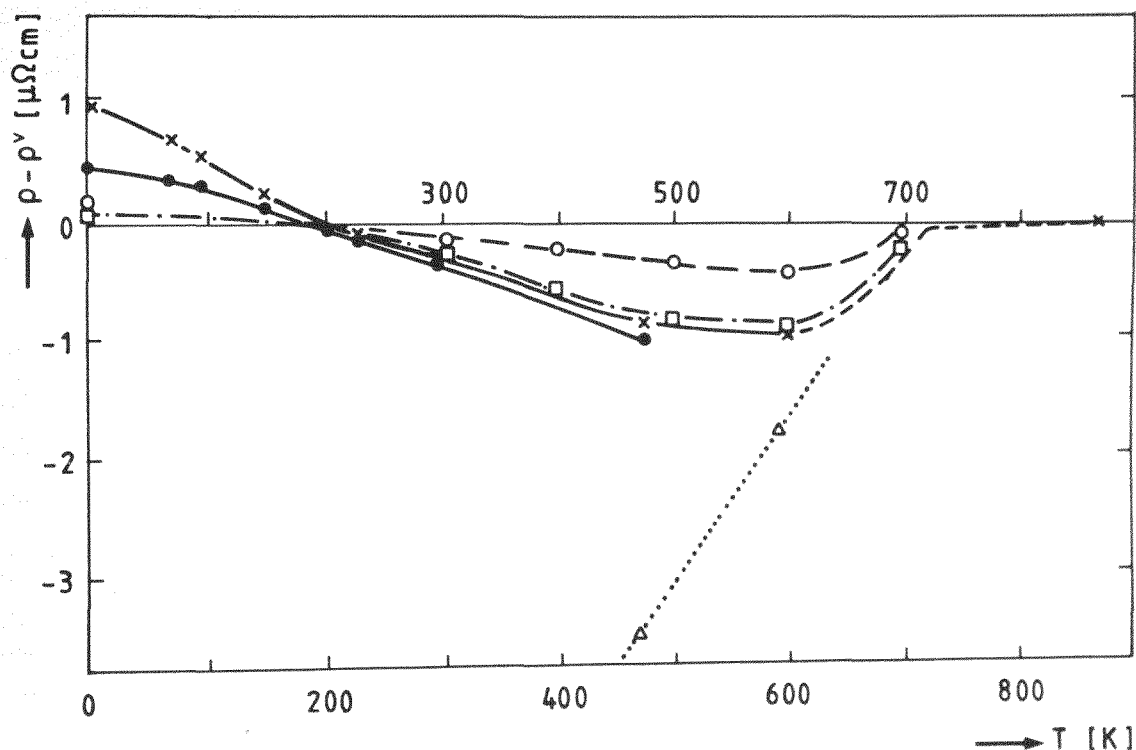


Abb. 37

Erholungskurven des elektrischen Restwiderstandes in Ni-Cu

Probenkennzeichnung:	-x-x-	$\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$ I	(= $1.9 \cdot 10^{19} \text{ e}^-/\text{cm}^2$)
	-•-•-	$\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$ II	(= $1.1 \cdot 10^{19} \text{ e}^-/\text{cm}^2$)
Zum Vergleich nach /15/	--o-o--	$\text{Ni}_{63}\text{Cu}_{37}$	(= $1 \cdot 10^{17} \text{ e}^-/\text{cm}^2$)
	-□-□-	$\text{Ni}_{63}\text{Cu}_{37}$	(= $1 \cdot 10^{18} \text{ e}^-/\text{cm}^2$)

Nickel nach /13/ eingetragen, die nach einer thermischen Behandlung bei 870K durch anschließende Elektronenbestrahlung bei der angegebenen Temperatur in den thermodynamischen Gleichgewichtszustand überführt wurde.

Die Abbildung 37 zeigt für alle Erholungskurven einen qualitativ ähnlichen Verlauf: im Bereich der Erholungsstufe II wird der Widerstandswert vor Bestrahlung unterschritten; die Übererholung setzt sich im Bereich der Erholungsstufe III ($T > 250 \text{ K}$) fort und erreicht für alle Proben Maximalwerte zwischen 500 K und 600 K. Vergleicht man die Übererholung als Funktion der Bestrahlungsdosis, so deutet sich für die hier untersuchten Proben gegenüber der Bestrahlung mit $1 \cdot 10^{18} \text{ e}^-/\text{cm}^2$ noch eine geringe Zunahme des Entmischungsgrades an. Da die Entmischung auch stark von der Zusammensetzung der Legierung abhängt /14/, kann man aus dieser geringen Zunahme allerdings noch nicht auf eine Sättigung schließen. Aus dem Vergleich der Übererholung mit den Gleichgewichtsdaten (extrapolierte Kurve (punktiert)) ist zu entnehmen, daß der thermodynamische Gleichgewichtszustand der Proben durch die Tieftemperaturbestrahlung und die anschließende Erholung nicht eingestellt wurde. Bei Anlaßtemperaturen oberhalb 600 K wird die bestrahlungsinduzierte Entmischung wieder zurückgebildet.

Vergleicht man das Erholungsverhalten der Huangstreuintensität mit der Restwiderstandsänderung, so lassen sich die folgenden Aussagen über die Defektreaktionen ableiten. Bei der Erholungstemperatur 70 K deutet die Reduktion der Streuintensität (im Mittel 4 %) die Abnahme der Defektkonzentration durch die Rekombination naher Frenkelpaare an. Die stärkere Erholung des Widerstandes könnte sowohl auf der hohen Defektkonzentration (die ähnlich wie bei Bestrahlungen mit hohen Elektronendosen in Nickel und Kupfer (vgl. S. 58) schon eine Clusterung im Temperaturbereich der Rekombination naher Paare ermöglicht) beruhen, als auch auf die beginnende Entmischung hinweisen. Die Übereinstimmung der Werte für die Defektkonzentration, die mit verschiedenen Methoden bei 150 K erhalten wurden, deutet darauf hin, daß der Beginn der Clusterung der dominierende Effekt ist.

Mit dem Anstieg der Huangstreuung bei 95 K wird deutlich, daß eine weiterreichende ZGA-Wanderung stattgefunden hat, die zur Bildung kleiner ZGA-Agglomerate ($\langle N \rangle \approx 1.8$) führt. Obwohl eine genauere Bestimmung der Temperaturlage für die Wanderung der Einzelzwischengitteratome in der Legierung nicht möglich erscheint, deutet sich gegenüber den reinen Komponenten Nickel ($T \lesssim 70 \text{ K}$) und Kupfer ($T \lesssim 40 \text{ K}$) eine Verschiebung zu höheren Temperaturen an. Da die

Huangstreuung mit zunehmender Anlaßtemperatur bis 230 K weiter ansteigt, nimmt die Agglomeratgröße entsprechend zu. Das bedeutet, daß in der Legierung $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$ im Unterschied zu Ni_3Fe die Doppelzwischengitteratome beweglich sind. Beim Clusterwachstum im Temperaturbereich bis 230 K zeigt sich gegenüber reinem Nickel keine wesentliche Verzögerung. Das im Vergleich zu Nickel etwas frühere Einsetzen der Erholungsstufe III in NiCu scheint die Bildung größerer ZGA Agglomerate und damit auch den Übergang zur zweidimensionalen Agglomeratanordnung zu verhindern. Dies zeigen die kleinen Werte von $\frac{\pi(3)}{\pi(1)}$, die eine Umlagerung der ZGA-Agglomerate zu Versetzungsscheibchen, wie sie in Nickel zwischen 200 K und 300 K beobachtet wird, während der Erholung nicht erkennen lassen.

Die starke Erholung bzw. Übererholung des Restwiderstandes in Stufe II zeigt an, daß die Legierung entmischt. Interessant erscheint dabei, daß eine starke Entmischung im Temperaturbereich oberhalb 150 K beobachtet wird, wo die ZGA zum größten Teil schon in Form von Agglomeraten vorliegen. Das bedeutet, daß nicht nur die Wanderung der einzelnen ZGA nach dem "Interstitialcy"-Mechanismus /13,14,15/, sondern auch die Agglomeratumlagerungen in Stufe II wesentlich zur Entmischung beitragen.

Die ZGA-Agglomeration in der Erholungsstufe II von $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$ entspricht damit dem Verhalten, das man von den verdünnten Randsystemen erwarten würde; denn in der verdünnten Legierung NiCu wird eine Detrappingstufe schon bei 80 K beobachtet /35/ und in der Legierung CuNi erfolgt kein ZGA-Trapping /33, 34/. Im Gegensatz dazu unterscheidet sich im Legierungssystem Ni_3Fe das Defektverhalten in Stufe II deutlich von der verdünnten Legierung NiFe, wie im Kap. 8.2.2 diskutiert wurde.

Die Reduktion der Huangstreuintensität und damit die Auflösung der ZGA-Agglomerate beginnt oberhalb der Anlaßtemperatur 230 K mit dem Einsetzen der Erholungsstufe III. Da im Unterschied zu den reinen Metallen Nickel und Kupfer für die Legierung NiCu innerhalb der Meßfehler keine LS-Clusterung beobachtet wurde, scheint hier die Bildung großer LS-Cluster unterdrückt zu sein. Andererseits haben Positronenvernichtungsexperimente /15/ ergeben, daß sich in NiCu in Stufe III kleine LS-Komplexe bilden. Dieses Verhalten kann dadurch erklärt werden, daß zu Beginn der LS-Wanderung kleinere ZGA-Agglomerate vorliegen als in den reinen Metallen und damit die LS kürzere Wege bis zur Rekombination zurücklegen, so daß große, stabile LS-Cluster nicht entstehen. Die vollständige Defekterholung wurde für die Legierung $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$ bei Anlaßtemperaturen zwischen 480 K und 600 K beobachtet.

8.4 Zusammenfassung und Vergleich des Erholungsverhaltens

Die Defektreaktionen bei der thermischen Erholung der Nickelproben sind sehr ähnlich dem Erholungsverhalten in Kupfer. Sie sind gekennzeichnet durch die weiterreichende ZGA-Wanderung mit beginnender ZGA-Agglomeration gegen Ende der Stufe I ($T \lesssim 70$ K) und das Wachstum der ZGA-Agglomerate in Stufe II, wobei ein stärkeres Wachstum der Cluster - verbunden mit einer Änderung der Struktur der Agglomerate - gegen Ende der Stufe II zwischen 200 K und 300 K erfolgt. Damit unterscheidet sich die ZGA-Agglomeration in Nickel quantitativ von Kupfer durch die geringere Beweglichkeit der kleinen Agglomerate. Wie in Kupfer bilden die größeren ZGA-Agglomerate ($T \leq 300$ K) Versetzungsringe auf $\{111\}$ -Ebenen. Dabei erfolgt der Übergang von dreidimensionalen ZGA-Agglomeraten zu ZGA-Versetzungsringen (der mit einem deutlichen Anstieg der $\frac{\pi(3)}{\pi(1)}$ -Verhältnisse verbunden ist) in Nickel bei größeren ZGA-Clustern mit $\langle N \rangle \approx 20-30$ ZGA (zwischen 200 K und 300 K) als in Kupfer, wo die Umlagerung am Ende der Stufe I bei $\langle N \rangle \approx 10$ einsetzt.

In der Erholungsstufe III konnte in Nickel (analog wie in Kupfer) durch die Änderung der Asymmetrie und der Intensität der asymptotischen Streuung eindeutig die LS-Clusterung nachgewiesen werden, die mit einer Abnahme des Frenkeldefektwiderstandes verbunden ist. Die vollständige Defektrekombination wird somit erst in der Erholungsstufe V ermöglicht.

Bei der thermischen Erholung der bestrahlten $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$ -Kristalle wird die ZGA-Agglomeration erstmals nach der Anlaßtemperatur 95 K beobachtet. Somit konnte gezeigt werden, daß in der Legierung wie in den reinen Komponenten Nickel und Kupfer eine weiterreichende ZGA-Wanderung bei tiefen Temperaturen stattfindet. Allerdings scheint wegen der geringeren Beweglichkeit der Einzelzwischengitteratome und des frühen Einsetzens der LS-Wanderung, die in Übereinstimmung mit den Untersuchungen von Poerschke und Wollenberger /15/ um 250 K beginnt, gegenüber den reinen Komponenten das Clusterwachstum in Stufe II reduziert zu sein. Da schon während der Erholungsstufe II die Übererholung des elektrischen Restwiderstandes erfolgt, wird die Entmischung, die mit der Wanderung von Einzelzwischengitteratomen gegen Ende der Stufe I beginnt /13,14,15/, wesentlich durch die Beweglichkeit der ZGA-Agglomerate bewirkt.

Mit der Erholungsstufe III beginnt die Auflösung der ZGA-Agglomerate; die vollständige Defektrekombination wird bei Temperaturen zwischen 480 K und 600 K erreicht.

Die thermische Erholung der Ni_3Fe -Legierungen hat ergeben, daß - unabhängig vom Ordnungsgrad - die ZGA-Agglomeration und damit eine weiterreichende ZGA-Wanderung bei Anlaßtemperaturen ab etwa 120 K erfolgt. Da bis zum Beginn der Erholungsstufe III ($T \approx 270$ K) im wesentlichen nur ZGA-Agglomerate mit $\langle N \rangle \approx 2$ beobachtet wurden, kann man annehmen, daß hier Doppelzwischengitteratome unbeweglich sind.

In der Erholungsstufe II wurde im Rahmen der Meßgenauigkeit eine Änderung des Fernordnungsparameters nicht beobachtet. Während somit in Ni-Cu die wandernden ZGA bzw. die beweglichen ZGA-Agglomerate die Entmischung der Legierung einleiten können, trägt die Defektwanderung in Ni_3Fe in Stufe II zur Fernordnungsbildung nicht bei. Dies ist dadurch erklärbar, daß bei der Defektwanderung Nahentmischung schon mit der Umordnung weniger Gitteratome erreicht werden kann, während zur Fernordnungsbildung wesentlich größere Schrittzahlen nötig sind, um die Gitteratome auf die entsprechenden Untergitterplätze anzuordnen.

Die Zunahme des Fernordnungsgrades wurde in Ni_3Fe erst in der Erholungsstufe III (wie z.B. auch in Cu_3Au /32/) beobachtet, allerdings nur, wenn die Legierung schon vorgeordnet war. Dies bedeutet, daß die Diffusion der bestrahlungsinduzierten LS je nach dem Grad der Vorordnung der Legierung unterschiedlich effektiv ist für die Fernordnungsbildung.

Die Defektrekombinationen von LS und ZGA in der Erholungsstufe III führen innerhalb der Fehlergrenzen bis zur Anlaßtemperatur 480 K zur vollständigen Defekterholung der bestrahlten Ni_3Fe -Proben.

Als gemeinsamen Aspekt hat die thermische Erholung der elektronenbestrahlten Legierungen $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$ und Ni_3Fe erbracht, daß in beiden Metallen die ZGA größere Beweglichkeit besitzen als die LS. Im Vergleich zu den reinen Metallen wie Nickel und Kupfer sind aber in den Legierungen $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$ und Ni_3Fe die Mobilitäten der ZGA reduziert (in NiCu in dem Maß, wie die verdünnten Randsysteme erwarten lassen, in Ni_3Fe deutlich stärker). Hingegen ist die Beweglichkeit der LS nicht geringer: die Erholungsstufe III setzt in Ni_3Fe etwa bei derselben Temperatur ein wie in Nickel, in NiCu bei etwas tieferer Temperatur, die aber noch oberhalb der Stufe III von Kupfer liegt. Dies bedeutet einen gegenüber reinen Metallen reduzierten Temperaturbereich der Erholungsstufe II und somit der ZGA-Agglomeration. Während das Verhalten der ZGA in

NiCu noch sehr ähnlich zu dem reiner Metalle ist, scheinen in Ni_3Fe dagegen schon die Doppelzwischengitteratome weniger beweglich zu sein als die LS. Hiermit erscheint es nicht überraschend, daß es auch Legierungssysteme gibt, bei denen die Beweglichkeit der LS größer ist als der ZGA, wie in AgZn beobachtet wurde /3,4/.

Für die hier untersuchten Legierungen wurde innerhalb der Meßfehler keine scharfe Erholungsstufe III beobachtet; vielmehr erfolgt die vollständige Erholung der Bestrahlungsdefekte in einer breiten Stufe, die mit der Wanderung der LS beginnt. Im Gegensatz zu den reinen Metallen Nickel und Kupfer werden dabei keine großen LS-Cluster gebildet, die bis zu höheren Temperaturen stabil sind. Dies kann man darauf zurückführen, daß in den Legierungen zu Beginn der Stufe III kleinere ZGA-Agglomerate vorliegen und somit die mittleren Abstände der LS zu den Senken kürzer sind; damit unterbleibt die Bildung größerer und stabiler LS-Komplexe. Ein analoges Erholungsverhalten wird auch bei reinen Metallen wie Gold /80,84/ und Aluminium /53/ beobachtet.

9. Zusammenfassung

Einkristalle aus reinem Nickel sowie der Legierungen $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$ und Ni_3Fe (sowohl ungeordnete als auch vorgeordnete Proben) wurden bei 4 K mit 3 MeV Elektronen bestrahlt und anschließend mit den Methoden der diffusen Röntgenstreuung, der Gitterparameter- und Restwiderstandsmessungen untersucht. Damit konnten erstmals die Defekteigenschaften (Relaxationsvolumina, absolute Defektkonzentration und Defektstruktur) in konzentrierten Legierungen bestimmt werden. Für die Legierungen Ni_3Fe wurden außerdem Messungen der integralen Intensität der Überstrukturreflexe zur Untersuchung bestrahlungsinduzierter Fernordnungsgradänderungen vorgenommen.

Bei allen bestrahlten Metallen wurden bei 6 K einzelne Zwischengitteratome (ZGA) und Leerstellen (LS) gefunden. Die Einzel-ZGA nehmen in Nickel wie in anderen fcc Metallen die H_O -Hantelkonfiguration ein; für die untersuchten Legierungen ergeben sich keine Hinweise auf eine davon abweichende Defekt-konfiguration.

Die Volumenaufweitung pro ZGA beträgt in Nickel $\frac{\Delta V_I}{V_c} = 1.7(\pm 0.3)$ (V_c = Atomvolumen). Für die Legierungen Ni_3Fe ergeben sich mit $\frac{\Delta V_I}{V_c} = 1.5(\pm 0.3)$ unabhängig vom Ordnungsgrad etwas kleinere Werte.

Die Frenkeldefektwiderstände wurden für Nickel zu $\rho_F = 6.1(\pm 1.1)\mu\Omega\text{cm/at\%}$ bestimmt; für die Legierungen Ni_3Fe erhielten wir unabhängig vom Ordnungsgrad $\rho_F = 7.2(\pm 2.0)\mu\Omega\text{cm/at\%}$. Im Vergleich dazu ist der gemessene Wert für die Legierung $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$ mit $\rho_F = 13.2(\pm 4.0)\mu\Omega\text{cm/at\%}$ signifikant größer.

Das Erholungsverhalten von Nickel ist durch die freie ZGA-Wanderung mit beginnender ZGA-Agglomeration gegen Ende der Erholungsstufe I ($T \lesssim 70$ K), das Agglomeratwachstum in Stufe II mit der Bildung von Versetzungsringen auf $\{111\}$ -Ebenen gegen Ende der Stufe II, sowie die LS-Clusterung in Stufe III gekennzeichnet, wodurch die vollständige Defektrekombination erst in Stufe V möglich ist. Diese Defektreaktionen verlaufen analog zu elektronenbestrahltem Kupfer; es ergeben sich aber quantitative Unterschiede in Stufe II durch die geringere Beweglichkeit der kleinen Agglomerate in Nickel und durch die Umlagerung der ZGA zu Versetzungsringen erst bei größeren Agglomeraten mit $\langle N \rangle \approx 20\text{--}30$ ZGA (zwischen 200 K und 300 K), die in Kupfer schon gegen Ende der Stufe I ($T \approx 40$ K) bei $\langle N \rangle \approx 10$ ZGA erfolgt.

Die thermische Erholung der bestrahlten Legierungen hat gezeigt, daß wie in reinen Metallen sowohl in $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$ als auch in Ni_3Fe ZGA beweglicher sind als LS. In der Legierung $\text{Ni}_{62.3}\text{Cu}_{37.7}$ erfolgt eine weiterreichende ZGA-Wanderung bei Anlaßtemperaturen um 95 K. Das Erholungsverhalten in Stufe II ist ähnlich wie in Nickel, wobei eine Umlagerung der ZGA-Agglomerate zu Versetzungsringen wegen des früheren Einsetzens der Stufe III ($T \approx 250$ K) nicht beobachtet wurde. Aus dem Erholungsverhalten ergibt sich, daß nicht nur die wandernden Einzel-ZGA, sondern auch die ZGA-Komplexe bei ihren Agglomerationsprozessen wesentlich zur Entmischung der Legierung beitragen.

In den Legierungen Ni_3Fe wurde (unabhängig vom Ordnungsgrad) die weiterreichende ZGA-Wanderung oberhalb 120 K beobachtet. In Stufe II wurden im wesentlichen nur Agglomerate mit $\langle N \rangle \approx 2$ ZGA vorgefunden; das bedeutet, daß hier Doppelzwischengitteratome keine größere Beweglichkeit besitzen als LS. Die Wanderung der ZGA hatte im Rahmen der Meßgenauigkeit keinen Einfluß auf den Fernordnungsgrad der Legierungen.

Im Gegensatz zu den reinen Metallen Nickel und Kupfer wurden in den Legierungen keine großen LS-Agglomerate beobachtet, die bis zu hohen Temperaturen (Stufe V) stabil sind. Dies wurde damit erklärt, daß wegen der kleinen ZGA-Agglomerate am Ende der Stufe II (und damit der kurzen Wege der LS zu den Senken) in den Legierungen bei der LS-Wanderung bevorzugt Defektrekombinationen stattfinden, so daß stabile LS-Cluster nicht entstehen.

Die LS-Wanderung führte in NiCu zur weiteren Entmischung der Legierung und in vorgeordneten Ni_3Fe -Legierungen zu einer Erhöhung des Fernordnungsgrades, während in nicht vorgeordneten Ni_3Fe -Legierungen die Diffusion der bestrahlungsinduzierten LS innerhalb der Fehlergrenzen nicht zur Fernordnungsbildung führte. Dieser Unterschied wurde auf die unterschiedliche Effektivität der LS-Sprünge in der ungeordneten Legierung im Vergleich zu einer Legierung mit vordefinierten Untergittern zurückgeführt.

Anhang

Extinktionskorrekturen

Im folgenden Abschnitt wird der Einfluß der Extinktion bei der Bestimmung des Fernordnungsparameters aus den Messungen der integralen Intensitäten der Überstruktur- und Fundamentalreflexe (Relativmessungen, s. Kap. 5.3) diskutiert.

Extinktion führt bei der Messung der Röntgenstreuintensitäten von perfekten Einkristallen zu einer geringeren gestreuten Intensität, als nach der kinematischen Theorie, für die Gl. (5.6) gilt, zu erwarten wäre. Während die kinematische Streutheorie das Reflexionsvermögen für einen Mosaikkristall aus kleinen perfekten Blöckchen unregelmäßiger Orientierung berechnet, wird das Reflexionsvermögen reduziert, wenn die Mosaikblöcke zu groß sind oder gleiche Orientierung haben. Bei großen perfekten Kristallblöcken wird die gestreute Intensität durch destruktive Interferenz infolge von Vielfachreflexionen geschwächt (primäre Extinktion); bei weitgehend paralleler Orientierung hat der auf tiefere Kristallschichten einfallende Röntgenstrahl zuvor schon andere Blöcke unter dem korrekten Beugungswinkel passiert, so daß die Intensität mehr als nur durch die normale Absorption geschwächt ist (sekundäre Extinktion). Der Einfluß der Extinktion wird damit wesentlich durch Kristalleigenschaften, wie z.B. die Versetzungsdichte bestimmt; er hängt von der verwendeten Strahlung ab, und der Effekt ist um so größer, je stärker der Reflex ist. Um die Reduktion der Intensität zu beschreiben, wird ein Extinktionsfaktor y definiert, der das Verhältnis aus gemessener integraler Intensität P und der nach der kinematischen Näherung berechneten Intensität P_k angibt:

$$y = \frac{P}{P_k} \leq 1 \quad (\text{A.1})$$

Das Reflexionsvermögen P realer Kristalle unter Berücksichtigung von Extinktion ist von Zachariasen /62/ berechnet worden. Danach läßt sich für die hier verwendete Reflexionsanordnung der Extinktionsfaktor y schreiben als

$$y = \frac{1}{\sqrt{1 + \gamma \frac{Q}{P} \frac{\cos \vartheta}{\lambda}}} \quad (\text{A.2})$$

Der Faktor γ enthält materialabhängige Konstanten, während der Einfluß der Röntgenstrahlung und der Reflexordnung in die übrigen Faktoren eingeht; Q ist nach der kinematischen Theorie durch Gl. (5.6) gegeben. Wenn die einfallende Strahlung schon vorpolarisiert ist, erhält man den entsprechenden Extinktionsfaktor nach Mittelung über die Polarisationszustände zu /62/:

$$\langle y \rangle = \frac{y + k^2 y_k}{1 + k^2} \quad \text{mit } k^2 = \cos^2(2\theta) \quad (\text{A.3})$$

Dabei ergibt sich y_k aus Gl. (A.2), indem im 2. Summanden des Radikanten der Polarisationszustand durch den zusätzlichen Faktor k^2 eingeführt wird.

Da die Extinktion nur wesentlich die Fundamentalreflexe beeinflusst, ergibt sich der korrigierte Wert S des Fernordnungsparameters aus dem Meßwert S_{Exp} nach

$$S^2 = S_{\text{Exp}}^2 \cdot \langle y \rangle \quad (\text{A.4})$$

Der Korrekturfaktor $\langle y \rangle$ läßt sich nicht direkt ausrechnen, da der Parameter γ , der über Gl. (A.2) eingeht, nicht bekannt ist. Man kann aber mit den Messungen über mehrere Reflexionsordnungen den Kristallparameter γ anpassen, und ihn auch zur Extinktionskorrektur bei der Messung mit anderen Wellenlängen verwenden.

Dazu wird zunächst für einen Reflex $\langle y \rangle$ vorgegeben und entsprechend Gl. (A.2) der zugehörige γ -Wert berechnet; damit wird für die anderen Reflexordnungen $\langle y \rangle$ bestimmt und die Korrektur gemäß Gl. (A.4) durchgeführt. Mit diesem Verfahren wird ein Parameter γ angepaßt, der für alle Reflexordnungen einen konsistenten Wert für den Fernordnungsparameter ergeben muß.

Die so gefitteten Ordnungsparameter der beiden geordneten Ni_3Fe -Proben aus Tabelle 5 (die unkorrigierten Meßwerte sind nochmals in Tabelle A. 1a), S.112, übernommen) sind in die Tabelle A. 1b) eingetragen. Dabei wurden zur Korrektur wegen der großen Fehlerbreiten der Daten aus den (330)-Reflexen nur die Meßwerte aus den (110)-Überstrukturreflexen mit den Fundamentalreflexen berücksichtigt.

Die Tabelle A. 1b) zeigt, daß sich bei der geordneten, unbestrahlten Probe ein konsistenter Datensatz aus den Messungen mit $\text{Mo-K}_{\alpha 1}$ -Strahlung bei $\langle y \rangle = 0.35$ für den (220)-Reflex mit $S = 0.788$ ergibt, bei größeren und kleineren $\langle y \rangle$ -Parametern divergieren die Werte; der entsprechend korrigierte Wert aus der Messung mit $\text{Co-K}_{\alpha 1}$ -Strahlung liefert 0.86.

Im Unterschied dazu läßt sich bei der anderen Probe Ni_3FeII keine gute Anpassung erzielen. Dies ist darauf zurückzuführen, daß hier die integralen Messungen am (220)- Reflex durch Oberflächeneffekte stark beeinträchtigt waren. An höheren Reflexordnungen beeinflußt die Beschaffenheit der Probenoberfläche die Streuintensität weniger, was in dem konstanten Verhältnis der Ordnungsparameter für die beiden Proben zum Ausdruck kommt, die aus Relativmessungen mit (440)- und (660)-Reflexintensitäten bestimmt wurden (vgl. Tab. 5). Derartige Unterschiede in der Oberflächenbeschaffenheit der Proben können bei den Polierverfahren während der Probenpräparation (vgl. Kap. 5.1) nicht ausgeschlossen werden. Auch bei der geordneten unbestrahlten Probe können geringe Oberflächeneffekte bei den Streuintensitätsmessungen dazu geführt haben, daß die gefitteten Daten etwas zu große S-Werte liefern und die korrigierten Werte aus den Messungen mit $\text{Co-K}_{\alpha 1}$ -Strahlung von denen mit $\text{Mo-K}_{\alpha 1}$ -Strahlung abweichen.

Mo-K _{α1}			Co-K _{α1}		
Reflex	Probe unbestr. S _{Exp.}	Ni ₃ Fe II bestr./erh. S _{Exp.}	Reflex	Probe unbestr. S _{Exp.}	Ni ₃ Fe II bestr./erh. S _{Exp.}
(220)	1.333	1.445	(220)	1.609	1.727
(440)	0.904	1.265			
(660)	0.818	1.175			

Mo-K _{α1}				Co-K _{α1}		
Reflex	<Y>	Probe unbestr. S	Ni ₃ Fe II bestr./erh. S	<Y>	Probe unbestr. S	Ni ₃ Fe II bestr./erh. S
(220)	0.10	0.422	0.457	0.081	0.457	0.492
(440)	0.315	0.507	0.710			
(660)	0.554	0.609	0.875			
(220)	0.20	0.596	0.646	0.162	0.647	0.695
(440)	0.548	0.669	0.936			
(660)	0.797	0.731	1.049			
(220)	0.25	0.667	0.723	0.203	0.725	0.778
(440)	0.634	0.720	1.007			
(660)	0.857	0.757	1.088			
(220)	0.30	0.730	0.791	0.245	0.796	0.855
(440)	0.704	0.758	1.061			
(660)	0.896	0.775	1.112			
(220)	0.35	0.789	0.855	0.287	0.862	0.925
(440)	0.761	0.788	1.104			
(660)	0.923	0.786	1.129			
(220)	0.40	0.843	0.914	0.330	0.925	0.992
(440)	0.806	0.812	1.136			
(660)	0.941	0.794	1.140			
(220)	0.50	0.943	1.022	0.420	1.043	1.119
(440)	0.874	0.845	1.183			
(660)	0.965	0.804	1.154			

Tabelle A.1: Extinktionskorrektur für die geordneten Ni₃Fe-Proben

- a) Meßwerte S_{Exp.} (vgl. Tab. 5) aus den Messungen mit MoK_{α1}-Strahlung
b) korrigierte Werte nach Gl. (A.3, A.4)

Literaturverzeichnis

- /1/ W. Schilling J. Nucl. Mat. 69/70, 465 (1978)
W. Schilling Indo German Seminar
1977, Kalpakkam/Indien
- /2/ P. Ehrhart J. Nucl. Mat. 69/70, 200 (1978)
- /3/ M. Halbwachs, J. Hillairet Phys. Rev. B18, 4927 (1978)
M. Halbwachs, J.T. Stanley, Phys. Rev. B18, 4938 (1978)
J. Hillairet
- /4/ M. Halbwachs, N. Yoshida Phil. Mag. A43, 1125 (1981)
- /5/ K.E. Volk (Hrsg.) "Nickel und Nickellegierungen"
Springer Verlag, Berlin (1970)
S.J. Rosenberg "Nickel and its Alloys"
National Bureau of Standards
Monograph 106 (1968)
- /6/ P. Ehrhart, U. Schlagheck J. Phys. F4, 1575, 1589 (1974)
- /7/ R. Becker "Theorie der Wärme"
Springer Verlag, Berlin (1966)
- /8/ B.E. Warren "X-Ray Diffraction"
Addison-Wesley Publ. Comp. (1969)
- /9/ J.M. Cowley Phys. Rev. 77, 669 (1950)
- /10/ W.L. Bragg, E.J. Williams Proc. Roy. Soc. 145, 699 (1934)
- /11/ A. Guinier "X-Ray Diffraction"
W.H. Freeman and Company,
San Franzisko (1963)
- /12/ W. Wagner Diss. TU Berlin, HMI-B 313 (1979)
- /13/ R. Poerschke Berichte der Kernforschungsanlage
Jülich, Jül-1100-77 (1974)
- /14/ R. Poerschke, H. Wollenberger Rad. Eff. 24, 217 (1975)
R. Poerschke, H. Wollenberger Thin Solid Films 25, 167 (1975)
R. Poerschke, H. Wollenberger J. Phys. F6, 27 (1976)
- /15/ R. Poerschke, H. Wollenberger Rad. Eff. 49, 225 (1980)
- /16/ W. Wagner, R. Poerschke, Phys. Rev. B21, 3087 (1980)
A. Axmann, D. Schwahn
- /17/ R. Poerschke, U. Theis, Phil. Mag. F10, 67 (1980)
H. Wollenberger

- /18/ W. Wagner, R. Poerschke, Phil. Mag. B43, 345 (1981)
H. Wollenberger
- /19/ F.A. Shunk "Constitution of Binary Alloys"
2nd Suppl. McCraw Hill (1969)
- /20/ H. Huthmann Diss. TH Aachen (1977)
- /21/ S. Radelaar Phys. Rev. Lett. 34, 1026 (1975)
J.W. Drijver, F. van der Woude Phys. Rev. B16, 985, 993 (1977)
- /22/ S. Lefebvre, F. Bley, Acta Cryst. A36, 1 (1980)
M. Bessiere, M. Fayard,
M. Roth, J.B. Cohen
S. Lefebvre, F. Bley Acty Met. 29, 749 (1981)
M. Fayard, M. Roth
- /23/ R.J. Wakelin, E.L. Yates Proc. Phys. Soc. London B66, 221 (1953)
- /24/ D.G. Morris, G.T. Brown Acta Met. 24, 21 (1976)
R.C. Piller, R.E. Smallmann
- /25/ J. Paulevé, D. Dautreppe Phys. Radium 23, 841 (1962)
J. Lanigier, L. Néel
- /26/ J.M. Pennison, A. Bourret Bull. inf. Sci. et Techn. 207,
59 (1975)
- /27/ J.F. Albertsen, J.M. Knudsen Physica Scripta 22, 171 (1980)
N.O. Roy-Poulsen, L. Vistisen
J.F. Albertsen Physica Scripta 23, 301 (1981)
- /28/ E.M. Schulson J. Nucl. Mat. 83, 239 (1979)
- /29/ D. Becker, F. Dworschak, Phys. Stat. Sol 30, 219 (1968)
C. Lehmann, K.T. Rie, H. Schuster,
H. Wollenberger, J. Wurm
- /30/ M.A. Kirk, T.H. Blewitt, Phys. Rev. B15, 2914 (1977)
T.L. Scott
- /31/ D.L. Schwartz, D.M. Schwartz Rad. Eff. 38, 15 (1978)
- /32/ J. Gilbert, H. Herman, Rad. Eff. 20, 37 (1973)
A.C. Damask
- /33/ F. Dworschak, R. Lennartz, J. Phys. F5, 400 (1975)
H. Wollenberger
- /34/ F. Maury, A. Lucasson, Rad. Eff. 51, 57 (1980)
P. Lucasson, J. Le Henricy,
P. Vajda, C. Dimitrov, O. Dimitrov
- /35/ J.L. Oddou Rapport CEA-R-3605
Centre d'Etudes Nucleaires
Grenoble (1968)

- /36/ F. Dworschak, A. Kraut, K. Sonnenberg, H. Wollenberger
M.L. Swanson, L.M. Hove, A.F. Quenneville
Rad. Eff. 19, 119 (1973)
Can. J. Phys. 55, 1871 (1977)
- /37/ L.E. Rehn, K.-H. Robrock, H. Jacques
W. Petry, G. Vogl, W. Mansel
J. Phys. F8, 1835 (1978)
Phys. Rev. Lett. 45, 1862 (1980)
- /38/ A.C. Damask, J. Gilbert, H. Herman
Rad. Eff. 26, 89 (1975)
- /39/ M. Halbwachs, D. Beretz, J. Hillairet
Acta Met. 27, 463 (1979)
- /40/ M.J. Kogzak, H. Herman, A.C. Damask
Acta Met. 19, 303 (1971)
- /41/ W. Schüle
J. Phys. F10, 2345 (1980)
- /42/ B.D. Sharma, K. Sonnenberg, G. Antesberger, W. Kesternich
Phil. Mag. A37, 777 (1978)
- /43/ P.H. Dederichs, C. Lehmann, H.R. Schober, A. Schulz, R. Zeller
J. Nucl. Mat. 69/70, 176 (1978)
- /44/ K.Y. Liou, P. Wilkes
J. Nucl. Mat. 87, 317 (1979)
- /45/ P.H. Dederichs
J. Phys. F3, 471 (1973)
- /46/ H. Trinkaus
Phys. Stat. Sol. b51, 307 (1972)
- /47/ P. Ehrhart, B.C. Larson, H. Trinkaus
Phys. Rev. B, (1981) wird veröffentlicht
- /48/ H. Trinkaus
Z. angew. Phys. 31, 229 (1971)
- /49/ S. Iida
J. Phys. Soc. Japan 10, 769 (1955)
- /50/ G.J. Dines
J. Appl. Phys. 22, 1020 (1951)
- /51/ Handbook of Chemistry and Physics, 59th ed., 1978-1979
- /52/ W. Schüle, H.P. Kehr
Z. Metallk. 52, 168 (1961)
- /53/ P. Ehrhart
Berichte der Kernforschungsanlage Jülich, Jül-810-77 (1971)
- /54/ P. Ehrhart, W. Schilling
Phys. Rev. B8, 2604 (1973)
- /55/ C.J. Sparks
in: "Anomalous Scattering", Hrsg.: S. Ramaseshan, S.C. Abrahams; Copenhagen, Munsgaard (1975)
- /56/ Ch. Kittel
"Einführung in die Festkörperphysik" R. Oldenbourg Verlag, München (5. Aufl., 1980)

- /57/ P. Turchi, Y. Calvayrac, F. Plicque Phys. Stat. Sol. a45, 229 (1978)
- /58/ Intern. Tables for X-Ray Crystallography Vol IV (1973)
- /59/ M.J. Cooper Acta Cryst. 18, 813 (1965)
- /60/ G. Simmons, H. Wang "Single Crystal Elastic Constants and Calculated Aggregate Properties" 2nd Ed. M.I.T. Press, Cambridge (1971)
- /61/ F. Lihl, H. Ebel, H. Baumgartner Z. Metallk. 62, 42 (1971)
- /62/ W.L. Bond Acta Cryst. 13, 814 (1960)
- /63/ W.H. Zachariasen Acta Cryst. 23, 558 (1967)
- /64/ P. Gay, P.B. Hirsch, J.N. Kellar Acta Cryst. 5, 7 (1952)
- /65/ J. Hemmerich Z. angew. Physik 29, 1 (1970)
- /66/ R.A. Johnson, C.L. Bisson, W.D. Wilson Rad. Eff. 25, 155 (1975)
- /67/ R.C. Birtcher, T.H. Blewitt J. Nucl. Mat. 69/70, 783 (1978)
- /68/ H.G. Haubold in: "Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals", Gatlinburg Conf. 751006, 268 (1975)
- /69/ H.G. Haubold, D. Martinsen J. Nucl. Mat. 69/70, 644 (1978)
- /70/ P. Lucasson in: "Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals", Gatlinburg Conf. 751006-P1, 42 (1975)
- /71/ P. Ehrhart, U. Schlagheck in: "Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals", Gatlinburg Conf-751006-P2, 839 (1975)
- /72/ A. Seeger, E. Mann, R. v. Jan J. Phys. Chem. Solids 23, 639 (1962)
- /73/ K. Forsch, J. Hemmerich, H. Knöll, G. Lucki Phys. Stat. Sol. a23, 223 (1974)
- /74/ C. Dimitrov, M. da Cunha Belo, O. Dimitrov J. Phys. F10, 1653 (1980)
- /75/ P. Jung Rad. Eff. 51, 249 (1980)
- /76/ H. Knöll Berichte der Kernforschungsanlage Jülich, Jül-864-FF (1972)
- /77/ G. Duesing Berichte der Kernforschungsanlage Jülich, Jül-577-FN (1969)

- /78/ T.H. Kosel 9th Int. Cong. on Electron Microscopy
Vol. 1, 376 (1978)
- /79/ M.H. Yoo, J.O. Stiegler Phil. Mag. 36, 1305 (1977)
- /80/ E. Segura, P. Ehrhart Rad. Eff. 42, 233 (1979)
- /81/ H.J. Blythe, F. Walz, Phys. Stat. Sol. a62, 177 (1980)
H. Kronmüller
- /81/ A. Ferro, G. Griffo J. Phys. Chem. Solids 31, 2789 (1970)
- /83/ J.P. Riviere, N. Junqua, Rad. Eff. Letters 57, 75 (1980)
D. Beretz
- /84/ P. Ehrhart, H.D. Carstanjen, Phil. Mag. A40, 843 (1979)
A.M. Fattah, J.B. Roberto

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

Herrn Prof. Dr. W. Schilling danke ich für die Anregung und Unterstützung dieser Arbeit. Mein besonderer Dank gilt Herrn Dr. P. Ehrhart für die aktive Hilfe bei allen auftretenden Problemen und für die vielen klärenden Diskussionen bei der Auswertung und Interpretation der Meßergebnisse.

Weiterhin bedanke ich mich bei der Elektronenbestrahlungsgruppe für den Einsatz bei den Bestrahlungen, Herrn H. Koslowski für seine praktische Mitarbeit bei der Durchführung der Experimente, Herrn A.M. Fattah für seine Hilfe beim chemischen Polieren der Proben und Frau U. Wyrwich für das sorgfältige Schreiben des Manuskripts.

Schließlich danke ich allen Mitarbeitern des Instituts, die auf irgendeine Weise zu dieser Arbeit beigetragen haben.