



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH

Institut für Festkörperforschung

**Bestrahlungsinduzierter
Fremdatomtransport in verdünnten
Gold-, Kupfer- und Silberlegierungen**

von

Paul Vaessen

Jüli - 2191
März 1988
ISSN 0366-0885

1911

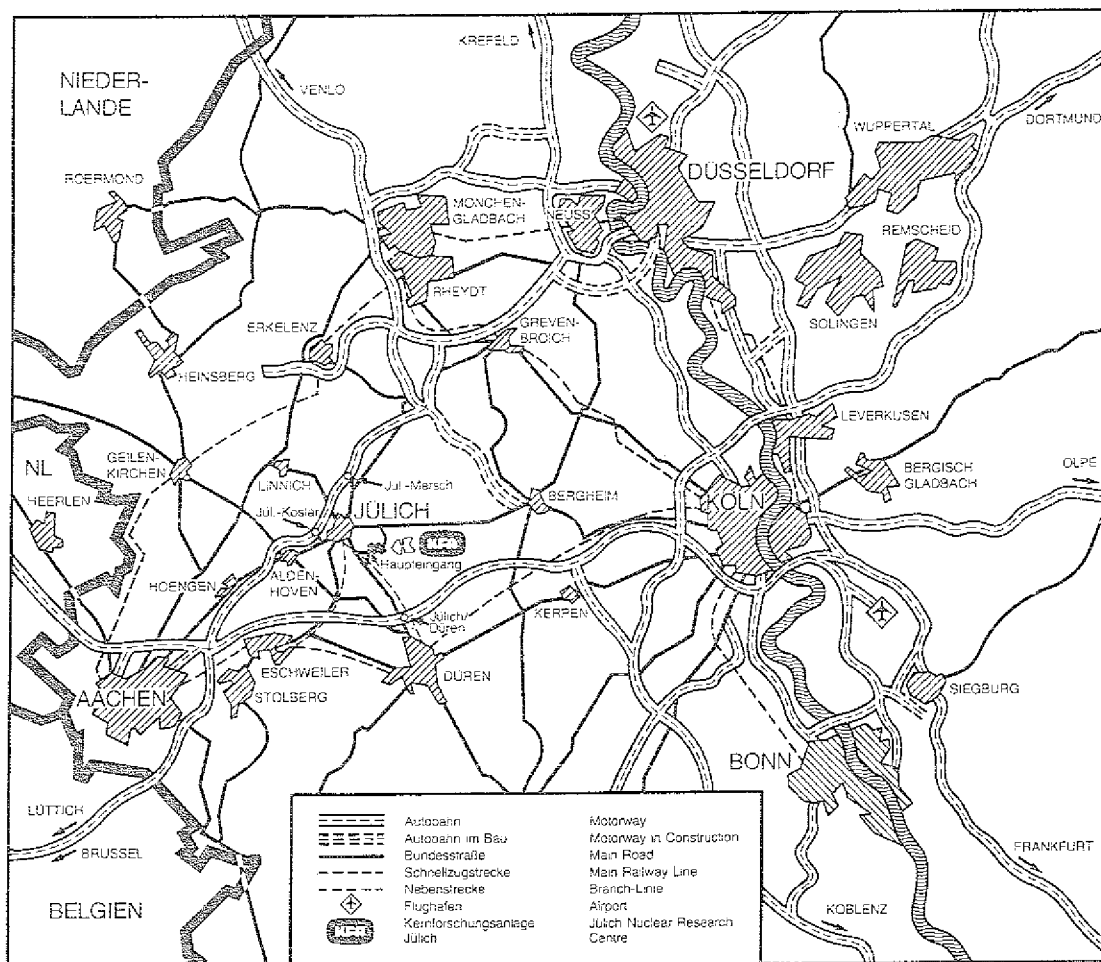
1911

1911

1911

1911

1911



Als Manuskript gedruckt

Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 2191

Institut für Festkörperforschung Jülich - 2191

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH

Postfach 1913 · D-5170 Jülich (Bundesrepublik Deutschland)

Telefon: 02461/610 · Telex: 833556-0 kf d

**Bestrahlungsinduzierter
Fremdatomtransport in verdünnten
Gold-, Kupfer- und Silberlegierungen**

von

Paul Vaessen

D 82 (Diss. T. H. Aachen)

Inhaltsverzeichnis

0.	Liste der verwendeten Abkürzungen	Seite 5
1.	Einführung	7
2.	Modell für das Bestrahlungsverhalten einer Matrix mit geringer Fremdatomkonzentration und hoher Senkendichte	12
2.1.	Defektreaktionen und Ratengleichungen	14
2.2.	Diskussion der Dosiskurve der Entmischung	28
2.2.1.	Anfangsverhalten der Matrixentleerung	28
2.2.2.	Sättigungsverhalten der Matrixentleerung	31
2.3.	Gültigkeitsgrenzen des Entmischungsmodells	33
3.	Experiment	39
3.1.	Proben	39
3.1.1.	Auswahl der Legierungssysteme	39
3.1.2.	Probenpräparation und Probenhalter	41
3.2.	Elektrische Widerstandsmessung	47
3.3.	Heliumimplantation	49
3.4.	Protonenbestrahlung	58
3.4.1.	Bestrahlungsaufbau	58
3.4.2.	Bestimmung von Defektproduktionsraten und stationären Defektkonzentrationen	66
4.	Mikrostrukturelle Entwicklung in den mit Helium implantierten reinen Metallen Au, Cu und Ag	76
4.1.	Heliumimplantation	76
4.2.	Anlaßverhalten	80
4.3.	Diskussion der eingestellten Senkenstruktur	82
5.	Experimentelle Ergebnisse zum bestrahlungsinduzierten FA-Transport	88

5.1.	Ergebnisse der Implantationsexperimente	Seite 88
5.1.1.	Heliumimplantation	88
5.1.2.	Anlaßverhalten	96
5.1.3.	Zusammenfassung der implantationsbedingten Segregationseffekte	101
5.2.	Protonenbestrahlung von verdünnten Legierungen	102
5.2.1.	Au-Legierungen	103
5.2.2.	Cu- und Ag-Legierungen	110
5.2.3.	Anlaßverhalten nach Bestrahlung	113
6.	Diskussion des bestrahlungsinduzierten FA-Transports	116
6.1.	<u>AuFe</u> -Legierung	116
6.1.1.	Auswertung der thermischen Rücklösung	116
6.1.2.	Effektivität der Entmischung	118
6.1.3.	Sättigung der Entmischung	123
6.2.	Übrige Legierungen	126
7.	Zusammenfassung	129
8.	Literaturverzeichnis	132
9.	Danksagung	134

0. Liste der verwendeten Abkürzungen

FA (Index s)	substitutionell gelöstes Fremdatom
FD	Frenkeldefekt
LS (Index v)	Leerstelle
ZGA (Index I)	Zwischengitteratom
ZGA-FA-Komplex (Index i)	Komplex aus Fremdatom und Matrixatom
ν	Sprungrate des Defekts
ν^0	Versuchsfrequenz
c	atomare Defektkonzentration
$\dot{c}$	zeitliche Änderung der Konzentration
c_s	Konzentration der gelösten FA
c^{th}	thermische Gleichgewichtskonzentration
$c_{FA}(=c_s(0))$	Ausgangskonzentration der gelösten FA
c_B	Blasenkonzentration
c'_B	Senkenstärke der Blasenstruktur
r_v	Rekombinationsradius der LS
r_s	Einfangradius des FA
r_B	Einfangradius einer Heliumblase
a	Gitterkonstante
d	Sprungweite
A_v	normierter Einfangradius der LS
A_s	normierter Einfangradius des FA
Ω	Atomvolumen
Ω_{sf}	Volumen-Size-faktor
k	Boltzmannkonstante ($8,61 \times 10^{-5}$ eV/K)
Δ	Differenz der Dissoziations- und Wanderungsenergie des ZGA-FA-Komplexes (siehe Glg.(2.6) auf Seite 16)

B	(siehe Glg.(2.5), Seite 15)
B'	(siehe Seite 29)
P_F^*	Produktionsrate der erzeugten FD (bei 4K)
P_F	Produktionsrate der freiwandernden FD
$\Delta\rho$	bestrahlungsinduzierte Widerstandsänderung
$\Delta\rho_B$	Widerstandsbeitrag der Heliumblasen
$\Delta\rho_{FA}$	Widerstandsbeitrag der gelösten FA
$\rho - \rho_{Ref}$	Widerstandsänderung der Probe zu der Referenz
RRR	Restwiderstandsverhältnis
E^f	Bildungsenergie
E^m	Wanderungsenergie
G^b	Bindungsenthalpie
S^f	Bildungsentropie
c_{He}	atomare Heliumkonzentration
ρ_{He}	spezifische Widerstandsänderung durch He-implantation
φ	Dosisrate
ϕ	Bestrahlungsdosis
t_A	Anlaßzeit
T_A	Anlaßtemperatur
T_{irr}	Bestrahlungstemperatur
EFF	Effektivität der bestrahlungsinduzierten Entleerung
M	relative Matrixentleerung
/0.0/	Literaturstelle
(0.0)	mathematischer Ausdruck

1. Einführung

Nur bei ausreichender Kenntnis der Materialeigenschaften war der Mensch zu jedem Zeitpunkt der Geschichte in der Lage die Grenzen der Technik zu seinen Gunsten zu verschieben. Dabei kann man den Anfang der Bronzezeit durchaus vergleichen mit den aktuellen Entwicklungen auf den Gebieten der Mikroelektronik oder der friedlichen Nutzung der Kernenergie. Ein qualitativer Unterschied der beiden Epochen liegt jedoch darin, daß in der heutigen Zeit der Versuch gemacht wird, den Materialaufbau systematisch zu erforschen. Dies zeigt sich vor allem in den Hauptthemen der modernen Grundlagenforschung wie z.B. die Entwicklung bestrahlungsresistenter Materialien für zukünftige Fusionsreaktoren oder die Entwicklung von reproduzierbaren Schichtsystemen für die Herstellung von elektronischen Bauelementen /1.1/.

Eine gezielte Problemlösung dieser beiden Beispiele ist eng verknüpft mit dem Wissensstand der modernen Materialwissenschaft, insbesondere der Festkörperphysik. Sie macht den Versuch, den Aufbau der kondensierten Materie zu verstehen, sowie das statische und dynamische Verhalten des Festkörpers zu ergründen. Einer der Aspekte der Festkörperphysik beschäftigt sich mit dem Bestrahlungsverhalten von Festkörpern. Neben der direkten Anwendung für Reaktormaterialien ist das Bestrahlungsverhalten als Materialeigenschaft vor allem auch für die Ionentechnik zur Herstellung von atomaren Schichtsystemen von großer praktischer Bedeutung.

Das Verhalten der einfachsten Modellsubstanzen (i.e. hochreine Metalle) unter Bestrahlung mit hochenergetischen Teilchen (e^- , p^+ , n , Schwerionen) wurde in den letzten 30 Jahren eingehend

untersucht, und die grundlegenden Eigenschaften von Bestrahlungsdefekten sind heute in hohem Maße verstanden /1.2,1.3/:

Der Beschuß eines kristallinen Festkörpers mit hochenergetischen Teilchen erzeugt durch Stoßprozesse atomare Verlagerungen. Dabei werden sogenannte Frenkeldefekte erzeugt; das sind Paare aus Leerstellen (LS, als unbesetzte Gitterplätze), und den zugehörigen Zwischengitteratomen (ZGA). In Metallen ergibt sich für die Struktur des ZGA auf Grund theoretischer Rechnungen /1.4/ und experimenteller Nachweise /1.5/ eine Hantelkonfiguration, aufgebaut aus zwei Atomen, deren Schwerpunkt am Ort eines regulären Gitterplatzes liegt.

Beide Defektarten können bei erhöhten Temperaturen durch das Gitter diffundieren. Im Vergleich zu der LS besitzt das ZGA eine hohe Beweglichkeit. So ist z. B. das ZGA in Ag bereits bei $T = 29 \text{ K}$ beweglich, während die LS in Ag erst oberhalb $T \approx 270 \text{ K}$ diffundiert /1.6/.

Auf Grund der gegenüber den thermodynamischen Gleichgewichtskonzentrationen während der Bestrahlung erhöhten Defektkonzentrationen ist mit der Defektwanderung ein Ausheilen dieser Defekte verbunden. Dies kann entweder durch direkte Rekombination von ZGA mit LS oder durch Annihilation an Senken erfolgen. Als Senken können innere Oberflächen (z.B. Korngrenzen, Hohlräume oder Gasblasen), Versetzungen oder die äußere Kristalloberfläche dienen. Die Rekombination und die Annihilation an Senken stehen zu einander in Konkurrenz. Liegt unter Bestrahlung eine hohe Senkendichte im Gitter vor, so werden sich bei erhöhten Temperaturen vor allem Defektströme zu den Senken hin ausbilden. Beispielsweise kann es auf Grund der unterschiedlichen Wechselwirkung der LS und ZGA mit Versetzungen und kleinen Poren zu einem Wachstum von Poren kommen, das für das Schwellen eines Materials unter Bestrahlung verantwortlich ist /1.7/. Quantitativ lassen sich die

Defektreaktionen in Form von Ratengleichungen als die zeitlichen Änderungen der mittleren Defektkonzentrationen für eine homogene Verteilung aller Defektsorten beschreiben /z.B. 1.8-1.10/.

Bei dem Übergang von reinen Metallen auf Legierungssysteme können zusätzliche Diffusionseffekte durch die unterschiedliche Ankopplung der verschiedenen Legierungsatome an die Defektströme auftreten. Dieses Phänomen nennt man strahlungsinduzierte Segregation (in der Literatur bezeichnet als Radiation Induced Segregation). Ein bekanntes Beispiel dafür ist das System NiSi. Dabei liegt das Si substitutionell gelöst vor. In dieser homogenen Legierung beobachtet man unter Bestrahlung die Bildung einer Ni_3Si -Phase an den Korngrenzen und Oberflächen /z.B. 1.11/. Diese Phasentransformation konnte durch einen strahlungsinduzierten Si-Transport zu den Korngrenzen erklärt werden. Die Legierung befindet sich dabei in einem Zustand weg vom thermodynamischen Gleichgewicht; nach Abschalten der Bestrahlung lösen sich die unter Bestrahlung existierenden Ausscheidungen wieder auf. In einer Reihe von anderen Legierungen konnten ähnliche strahlungsinduzierte Phasentransformationen beobachtet werden /1.12,1.13/. Diese beobachteten Segregationseffekte sind qualitativ verstanden. Für eine quantitative Beschreibung fehlt bisher die genaue Kenntnis der Wechselwirkung zwischen den Legierungsatomen und den Defektarten. Die vorliegende Arbeit soll einen Beitrag zum Verständnis der Segregationskinetik liefern, wobei speziell der ZGA-Transportmechanismus untersucht werden soll.

Um möglichst einfache Bedingungen zu schaffen, wurden verdünnte Legierungssysteme auf Au-, Cu- und Ag-Basis mit Fremdatomkonzentrationen $C_{\text{FA}} = 500 - 2000$ atppm untersucht. Zusätzlich wurde die Beschreibung der Defektströme dadurch vereinfacht, daß eine definierte Senkenstruktur mit hoher

Senkendichte eingestellt wurde. Erreicht wurde dies durch eine homogene Heliumimplantation der Proben mit einem anschließenden, geeigneten thermischen Anlaßprogramm, so daß eine hohe Dichte gleichmäßig verteilter Heliumblasen in der Matrix vorlag. Diese hohe Blasendichte ermöglichte das Einstellen senkendominanter Bestrahlungsbedingungen: Die Rekombination wurde stark unterdrückt und bei Ankopplung der Fremdatome (FA) an die Defektströme wurde somit die Ablagerung der FA an die Heliumblasen begünstigt.

Als Meßmethode wurde die elektrische Widerstandsmessung zur Charakterisierung der Proben eingesetzt. Dabei wird angenommen, daß nur in der Matrix gelöste Fremdatome zum Probenwiderstand beitragen. Der Anteil der Fremdatome, die unter Bestrahlung an die Heliumblasen transportiert wurden, soll praktisch nicht mehr zum Widerstand beitragen.

Die Auswahl der Legierungssysteme erfolgte nach folgenden Gesichtspunkten:

- Die Fremdatome sollen bis zur maximal verwendeten Konzentration von ca. 2000 atppm substitutionell in der Matrix gelöst sein (innerhalb der α -Phase). Zur Auswahl wurden die Phasendiagramme aus der Literatur verwendet /1.14-1.17/.

- Die Fremdatome sollen ein kleineres Atomvolumen als die Matrixatome besitzen. Auf Grund des sogenannten Misfit-Modells (siehe Abschnitt 3.1) kann man erwarten, daß unter dieser Bedingung die Bildung eines ZGA - FA - Komplexes begünstigt wird, der dann den FA-Transport bewirken kann. Zur Auswahl wurden die Volumenmisfits Ω_{sf} nach King /1.18/ verwendet.

-Der Widerstandsbeitrag der substitutionellen Fremdatome soll so groß sein, daß eine teilweise Matrixentleerung unter Bestrahlung als Widerstandsänderung auch bei Raumtemperatur gemessen werden kann. Dazu wurden die Werte

$\frac{\Delta \rho_{FA}}{c_{FA}}$ nach Bass /1.19/ zugrunde gelegt.

Im folgenden Kapitel 2 wird zunächst ein theoretisches Modell für den FA-Transport in verdünnten Legierungssystemen mit hoher Senkendichte diskutiert. In Kapitel 3 wird der experimentelle Aufbau beschrieben. In Kapitel 4 werden die Ergebnisse zur Heliumimplantation der reinen Metallen Au, Cu und Ag vorgestellt. Insbesondere wird die durch die Implantation eingestellte Senkenstruktur diskutiert. In Kapitel 5 werden die experimentellen Ergebnisse zum bestrahlungsinduzierten Fremdatom-Transport vorgestellt. Diese Ergebnisse werden im abschließenden Kapitel 6 mit Hilfe der in Kapitel 2 vorgestellten Ratengleichungen diskutiert.

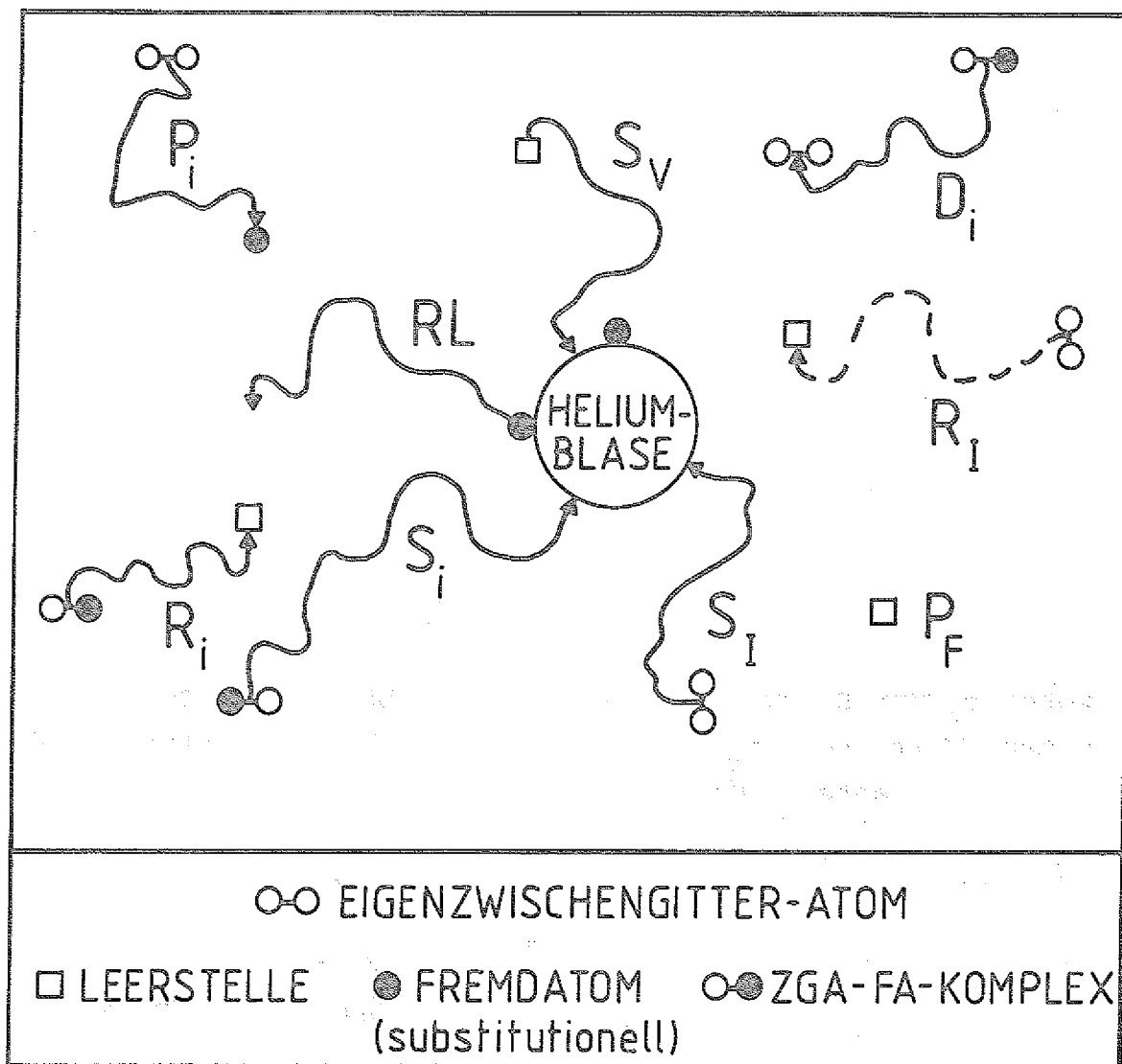
2. Modell für das Bestrahlungsverhalten einer Matrix mit geringer Fremdatomkonzentration und hoher Senkendichte

In diesem Abschnitt wird ein theoretisches Model für das Bestrahlungsverhalten von verdünnten Legierungen diskutiert. Dazu wird eine Matrix mit einer geringen Konzentration substitutioneller Fremdatome sowie einer vorgegebenen Senkenstruktur betrachtet. Die Defektströme werden in einem System von Ratengleichungen als die zeitlichen Änderungen der mittleren Defektkonzentrationen beschrieben. Dabei wird versucht, die experimentellen Bedingungen mit möglichst wenigen Ratengleichungsparametern zu beschreiben.

Die Situation ist schematisch in Abbildung 2.1 dargestellt. Es wurden folgende Defekte berücksichtigt: das Eigen-Zwischengitteratom (I), die Leerstelle (V), der ZGA-FA-Komplex (i) und das substitutionell gelöste FA (S), die in den Konzentrationen c_I , c_V , c_i , c_s vorliegen sollen und bei der Bestrahlungstemperatur beweglich sein sollen (mit den Sprungraten ν_I , ν_V , ν_i bzw. ν_s). Dabei gilt der Ausdruck $\nu = \nu^0 \cdot \exp(-E^m/kT)$. Als Senken werden Helium-Blasen mit der Konzentration c_B berücksichtigt, an die im Verlauf der Bestrahlung FA angelagert werden. Diese angelagerte FA reduzieren die Zahl c_s der substitutionell gelösten FA.

Im folgenden werden zunächst in Abschnitt 2.1 die Defektreaktionen und die Ratengleichungen vorgestellt. Im anschließenden Abschnitt 2.2 werden die Lösungen dieses Ratengleichungssystems vorgestellt. Im Abschnitt 2.3 werden schließlich die bei der theoretischen Beschreibung gemachten Vereinfachungen diskutiert.

Abb. 2.1: Schematische Darstellung der Defektreaktionen in der Matrix einer verdünnten Legierung in der Nähe einer Heliumblase unter Bestrahlung



2.1. Defektreaktionen und Ratengleichungen

Für die Aufstellung der Ratengleichungen werden folgende Prozesse berücksichtigt (s. auch Tabelle 2.1):

- a) Die Produktion von freibeweglichen ZGA und LS mit der Rate P_F durch die Bestrahlung.

Diese Erzeugungsrate unterscheidet sich von der Verlagerungsrate P_F^* , die auch diejenigen Frenkelpaare mitberücksichtigt, die aufgrund der korrelierten Rekombination ausheilen, ohne daß die LS oder ZGA größere Schrittzahlen zurücklegen (s. Kap. 3.4.2).

- b) Die Rekombination von ZGA und LS, gemäß $I + V \rightarrow 0$

Unter der Annahme $v_I \gg v_V$, ist die Rate gegeben durch

$$R_I = 4 \cdot \frac{r_V}{a} \cdot v_I \cdot c_I \cdot c_V, \quad (2.1)$$

wobei r_V der Rekombinationsradius der LS für die ZGA ist und einen Wert von $r_V \approx 1-2a$ hat. Dabei bedeutet a die Gitterkonstante. Der Ausdruck R_I enthält nicht die korrelierte Rekombination.

(Da in fcc-Metallen für die Sprungweite d und das Atomvolumen Ω gilt, daß $d^2 = \frac{a^2}{2}$ und $\Omega = \frac{a^3}{4}$, wurde in Glg. (2.1) angenommen, daß $4\pi \cdot r_V \cdot \frac{d^2}{6 \cdot \Omega} \approx 4 \cdot \frac{r_V}{a}$ ist.)

c) Die Bildung von ZGA-FA-Komplexen, gemäß $I + S \rightarrow i$.

Die Rate ergibt sich analog zu R_I zu

$$P_i = 4 \cdot \frac{r_s}{a} \cdot v_I \cdot c_I \cdot c_S \quad (2.2)$$

Dabei ist r_s der Einfangradius des gelösten FA. Die Glg. (2.2) stellt insofern nur eine Näherung dar, als die gegenseitige Abschirmung der FA vernachlässigt wurde.

Eine Berücksichtigung dieser Abschirmung nach /2.1/ würde r_s um den Faktor $(1 + 7 \cdot [\frac{r_s}{a}]^{3/2} \cdot c_S^{1/2}) \approx 1,2$ für $c_S \approx 10^{-3}$ und $r_s \approx a$ erhöhen.

d) Die Dissoziation der ZGA-FA-Komplexen, gemäß $i \rightarrow I + S$.

Sie ist die Umkehrreaktion des in Punkt c) beschriebenen Assoziationsprozesses. Die Dissoziationsrate läßt sich darstellen als

$$D_i = v_{I,S}^{\text{Diss.}} \cdot c_i \quad (2.3)$$

mit

$$v_{I,S}^{\text{Diss.}} = 4 \cdot \frac{r_s}{a} \cdot v_I \cdot \exp(-G_{I,S}^b/kT) = 4 \cdot \frac{r_s}{a} \cdot v_i \cdot B \quad (2.4)$$

mit

$$B = \frac{v_I^o}{v_i^o} \cdot \exp(-\Delta/kT) \quad (2.5)$$

und

$$\Delta = G_{I,S}^b - E_i^m + E_I^m = E_i^{\text{Diss}} - E_i^m \quad (2.6)$$

Dabei stellen $G_{I,S}^b$ die freie Bindungsenthalpie des ZGA zum substitutionellen Fremdatom, sowie E_i^m bzw. E_I^m die Wanderungsenergien des ZGA-FA-Komplexes bzw. des ZGA dar. Es sind dabei außerdem ν_i^0 und ν_I^0 die Versuchsfrequenzen für den ZGA-FA-Komplex bzw. das ZGA.

Der Ausdruck (2.4) ergibt sich aus der Bedingung, daß im thermischen Gleichgewicht die Bildung und die Dissoziation von ZGA-FA-Komplexen gleich häufig sein sollen. Außerdem wird angenommen, daß die mögliche Zahl von Konfigurationen pro Gitterplatz für das ZGA und den ZGA-FA-Komplex gleich groß ist.

Die Größe $\frac{\nu_i}{\nu_{I,S}^{\text{Diss}}} = \frac{a}{4 \cdot r_s \cdot B}$ gibt die mittlere Zahl der

Schritte der ZGA-FA-Komplexe bis zu ihrer Dissoziation an.

Für $\Delta > 0$ nimmt sie mit zunehmender Temperatur wie $\exp(\Delta/kT)$ ab.

- e) Die Rekombination von ZGA-FA-Komplexen mit LS, gemäß
 $i + V \rightarrow S$.

Die Rate ergibt sich analog zu R_I zu

$$R_i = 4 \cdot \frac{r_v}{a} \cdot (\nu_i + \nu_v) \cdot c_i \cdot c_v, \quad (2.7)$$

wobei hier zunächst offengelassen wurde, ob der ZGA-FA-Komplex schneller oder langsamer als die LS diffundiert. Falls $\nu_i \gg \nu_v$ bzw. $\nu_v \gg \nu_i$, vereinfacht sich der Term R_i entsprechend.

f) Die Annihilation von LS an Senken.

Unter der Annahme kugelförmiger Senken (Heliumblasen) mit Einfangradius r_B gilt für die Annihilationsrate

$$S_V = 4 \cdot \frac{r_B}{a} \cdot v_V \cdot (c_V - c_V^{th}) \cdot c_B \quad (2.8)$$

Es wird dabei angenommen, daß die LS-FA-Wechselwirkung und damit den Abschirmungseffekt der Blasen durch die FA vernachlässigt werden kann. Voraussetzung ist ferner, daß die gegenseitige Abschirmung der Blasen vernachlässigt werden kann. Dies gilt nach /2.1/ und unter der Voraussetzung, daß die FA die LS-Wanderung nicht wesentlich beeinflussen, wenn

$$7 \cdot \left(\frac{r_B}{a}\right)^{3/2} \cdot c_B^{1/2} \ll 1 \quad (2.9)$$

was für die experimentellen Bedingungen in dieser Arbeit ($c_B \approx 3 \times 10^{-6}$, $r_B/a \approx 3$) gut erfüllt ist.

In Glg. (2.8) ist zusätzlich berücksichtigt, daß für den Nettofluß der LS in die Senke nur die Differenz der aktuellen durch die Bestrahlung erhöhten LS-Konzentration zur thermischen Gleichgewichtskonzentration c_V^{th} eingeht. Es ist

$$c_V^{th}(T) = \exp(S_V^f/k) \cdot \exp(-E_V^f/kT) \quad (2.10)$$

mit der Bildungsentropie S_V^f und der Bildungsenergie E_V^f der

Leerstelle. Die Gestalt von S_v gewährleistet, daß ohne Bestrahlung $S_v = 0$ ist, d.h. die Blase stabil bleibt.

g) Die Annihilation von ZGA-FA-Komplexen an Senken.

Analog zu S_I gilt für die Rate

$$S_i = 4 \cdot \frac{r_B}{a} \cdot v_i \cdot c_i \cdot c_B \quad (2.11)$$

Im Prinzip verschwindet der ZGA-FA-Komplex nicht, sondern wird in ein substitutionelles FA am Rand der Blase umgewandelt. Eine Abschätzung für $c_{FA} = 1000$ atppm FA gibt bei völliger Entleerung aus der Matrix mit $c_B \approx 3 \times 10^{-6}$ und $r_B \approx 3a$ im Mittel zwei Atomlagen um jede Blase. Die genaue Art der FA-Ablagerung an die Helium-Blase ist unbekannt. Es könnte sich auch eine intermetallische Phase mit hoher FA-Konzentration ausbilden. Für den Nachweis der FA-Segregation wird im folgenden vorausgesetzt, daß ein FA an der Blase einen wesentlichen geringeren Beitrag zum elektrischen Widerstand liefert als ein gelöstes FA.

h) Die Annihilation von ZGA an Senken.

Ihre Rate ist analog zu S_v gegeben durch

$$S_I = 4 \cdot \frac{r_B}{a} \cdot \left(1 + 7 \cdot \frac{r_B}{a} \cdot \left[\frac{r_s}{a} \cdot c_s\right]^{\frac{1}{2}}\right) \cdot v_I \cdot c_I \cdot c_B \quad (2.12)$$

Die gesamte Senkenstärke enthielte grundsätzlich auch die gegenseitige Abschirmung der Blasen. Da aber eine starke ZGA-FA-Wechselwirkung und somit eine Abschirmung der Blasen

durch die FA angenommen wird, hat die Glg. (2.12) zunächst die obige Gestalt. Innerhalb der Unsicherheit mit der die Reaktionsradien bekannt sind, wird in der weiteren Betrachtung der Einfluß der Abschirmung der Blasen durch die FA jedoch auch vernachlässigt.

i) Die Rücklösung.

Für die Rücklösungsrate der an den Blasen abgelagerten FA wird der Ansatz

$$RL = 4 \cdot c_B \cdot \frac{r_B}{a} \cdot v_v \cdot c_v^{th} \cdot 4 \cdot Z \cdot [c_s^B - c_s] \quad (2.13)$$

gemacht. Dabei ist c_s^B die Konzentration von FA an der Blasenoberfläche.

Der Ansatz beschreibt die Netto-Rücklösung als Differenz der Rücklösungsrate und der Ablagerungsrate. Im thermischen Gleichgewicht ist die Rücklösung gleich Null. Dabei ist

$v_v \cdot c_v^{th} \cdot 4 \cdot Z = v_s$ die Rate von effektiven Diffusionssprüngen der FA über die thermischen LS. Der Faktor $4 \cdot Z$ beinhaltet Korrelationseffekte, sowie den Einfluß einer LS-FA-Wechselwirkung bei der FA-Diffusion (siehe Abschnitt 2.3). Der Faktor Z gibt dabei die mittlere Zahl der Diffusionssprünge der LS-FA-Komplexe bis zu ihrer Dissoziation an (s. Glg. 2.44).

Wegen der Erhaltung der Zahl an FA gilt

$$\frac{16\pi \cdot r_B^2 \cdot b}{a^3} \cdot c_B \cdot [c_s^B - c_s] = c_s(0) - c_s \quad , \quad (2.14)$$

wobei $c_s(0)$ die Ausgangskonzentration der FA zum Beginn der Bestrahlung und b die Dicke der Anreicherungszone um die Blase bedeuten.

Setzt man die Glg. (2.14) in die Glg.(2.13) ein und definiert man

$$Z' \equiv Z \cdot \frac{1}{\pi} \cdot \frac{a^2}{b \cdot r_B} \quad , \quad (2.15)$$

so ergibt sich die Rücklösungsrate zu

$$RL = Z' \cdot v_v \cdot c_v^{th} \cdot [c_s(0) - c_s] \quad . \quad (2.16)$$

In Glg.(2.13) wurde ferner eine mögliche Wechselwirkung der FA untereinander vernachlässigt.

Bei der Übertragung von Glg. (2.16) auf den Bestrahlungsfall erhebt sich die Frage, welcher Wert anstelle von c_v^{th} einzusetzen ist. Aufgrund der Überlegung, daß auch die Überschuss-LS-Konzentration $(c_v - c_v^{th})$, i.e. die bestrahlungsinduzierten LS, zur Rücklösung beitragen können, wird dies durch einen Zusatzterm, gewichtet mit einem Faktor $0 \leq \epsilon \leq 1$, berücksichtigt. Somit bekommt der Rücklösungsansatz unter Bestrahlung folgende Gestalt:

$$RL = Z' \cdot \left[v_v \cdot c_v^{th} + v_v \cdot (c_v - c_v^{th}) \cdot \epsilon \right] \cdot [c_s(0) - c_s] \quad (2.17)$$

In der nachfolgenden Tabelle 2.1 sind die verschiedenen Reaktionen zusammengefaßt, wobei zur Abkürzung folgende

Definitionen verwendet wurden: $c'_B \equiv \frac{r_B}{r_v} \cdot c_B$; $A_v \equiv 4 \cdot \frac{r_v}{a}$;

$$A_s \equiv 4 \cdot \frac{r_s}{a} .$$

Tabelle 2.1: Defektreaktionen und Ratenterme

Reaktion	Ratenterm
Produktion LS und ZGA	P_F
Rekombination ZGA mit LS	$R_I = v_I \cdot c_I \cdot c_V \cdot A_V$
Komplex mit LS	$R_i = (v_i + v_V) \cdot c_i \cdot c_V \cdot A_V$
Bildung ZGA-FA-Komplex (Einfang des ZGA an FA)	$P_i = v_I \cdot c_I \cdot c_S \cdot A_S$
Dissoziation ZGA-FA-Komplex	$D_i = v_i \cdot c_i \cdot B \cdot A_S$
Annihilations ZGA (an Senke)	$S_I = v_I \cdot c_I \cdot c'_B \cdot A_V$
LS	$S_V = v_V \cdot (c_V - c_V^{th}) \cdot c'_B \cdot A_V$
Komplex	$S_i = v_i \cdot c_i \cdot c'_B \cdot A_V$
Rücklösung FA an Senke in Lösung	$RL = Z' \cdot \left[v_V \cdot c_V^{th} + v_V \cdot (c_V - c_V^{th}) \cdot \epsilon \right] \cdot [c_S(0) - c_S]$

Mit Hilfe der Defektreaktionen aus Tabelle 2.1 erhält man folgenden Satz von Ratengleichungen für die zeitliche Änderung der verschiedenen Defektkonzentrationen:

$$\dot{c}_I = P_F - S_I - P_i + D_i - R_I \quad (2.18)$$

$$\dot{c}_V = P_F - S_V - (R_i + R_I) \quad (2.19)$$

$$\dot{c}_i = P_i - S_i - D_i - R_i \quad (2.20)$$

$$\dot{c}_S = -P_i + D_i + R_i + RL \quad (2.21)$$

Bei der Aufstellung des Ratengleichungssystems wurden weitere Vereinfachungen gemacht, die in Kap. 2.3 diskutiert werden. Im einzelnen wurde angenommen, daß die effektive Senkendichte c'_B konstant bleibt, daß der Einfluß von i-S-Komplexen, LS-FA-Komplexen, Doppel-Leerstellen etc. auf den Transport der FA zu den Senken vernachlässigbar ist, d.h. daß es im wesentlichen die ZGA-FA-Komplexe sind, die die bestrahlungsinduzierte Segregation treiben. Ein bestrahlungsinduzierter FA-Transport mittels LS ist wegen der im allgemeinen höheren Dissoziationsrate der LS-FA-Komplexe ineffektiver und bedarf, erfahrungsgemäß, zu seiner Beobachtung wesentlich höherer Bestrahlungsdosen (in der Größenordnung von einigen dpa) als in den vorliegenden Experimenten (bis zu 0,1 dpa) verwendet wurden.

Für die Lösung der Ratengleichungen (2.18-21) wird nun Quasi-Stationarität für die Konzentrationen aller beweglichen Defekte angenommen, d.h.

$$\dot{c}_I = \dot{c}_V = \dot{c}_i = 0 \quad . \quad (2.22)$$

Die Voraussetzung hierfür ist, daß nur Zeiten betrachtet werden, die groß sind gegen die Diffusionszeit des langsamsten Defekts (Leerstelle) zu den Senken (Heliumblasen).

Typische Aufbauzeiten zum Erreichen von 90% der stationären LS-Konzentration sind in der Abb. 3.12 als Funktion der Temperatur gezeigt.

Tabelle 2.2: Experimentelle Daten für Einzelleerstellen in Au

Versuchsfrequenz	$\nu_V^0 = 5,2 \cdot 10^{13}/s$	/2.2/
Wanderungsenergie	$E_V^m = 0,71 \text{ eV}$	/2.3/
Bildungsentropie	$S_V^f = 1,5 \cdot k$	/2.4/
Bildungsenergie	$E_V^f = 1,02 \text{ eV}$	*

(*Die Bildungsenergie E_V^f ergibt sich dabei als die Differenz der gemessenen Selbstdiffusionsenergie /2.5/ und der Wanderungsenergie /2.3/.

Dabei ergab sich ν_V^0 aus $D_V^0 = \frac{d^2}{6} \cdot \nu_V^0 \cdot f \cdot \exp(S_V^f/k) = 0,04 \text{ cm}^2/s$

Mit Hilfe der Stationaritätsbedingung (Glg.(2.22)) vereinfacht sich Glg. (2.21) zu

$$\begin{aligned} \dot{c}_s &= \dot{c}_s + \dot{c}_i = -S_i + RL \\ &= -\nu_i \cdot c_i \cdot c_B' \cdot A_V + Z' \cdot \left[\nu_V \cdot c_V^{th} + \nu_V \cdot (c_V - c_V^{th}) \cdot \epsilon \right] \cdot [c_s(0) - c_s] \end{aligned} \quad (2.23)$$

Durch Aufsummation der Glgn. (2.18, 2.20) und anschließende Subtraktion der Glg. (2.19), ergibt sich ferner die einfache Beziehung

$$\nu_i \cdot c_i + \nu_I \cdot c_I = \nu_V \cdot [c_V - c_V^{th}] \quad (2.24)$$

für die stationären Konzentrationen.

Aus Glg. (2.20) erhält man für den stationären Fall ($\dot{c}_i = 0$) mit Hilfe der Glg. (2.24) und für $A_v \approx A_s$, d.h. $r_v \approx r_s$, sowie $v_i \gg v_v$

$$v_i \cdot c_i = v_v \cdot (c_v - c_v^{th}) \cdot \frac{c_s}{c_s + c'_B + B + c_v} \quad (2.25)$$

Die Glgn. (2.19) und (2.24) ergeben für $\dot{c}_v = 0$ mit $v_i \gg v_v$

$$P_F = v_v \cdot (c_v - c_v^{th}) \cdot [c'_B + c_v] \cdot A_v \quad (2.26)$$

Damit läßt sich die zeitliche Entwicklung von c_s nach Glg. (2.23) allein durch die stationäre LS-Konzentration c_v ausdrücken zu

$$\begin{aligned} \dot{c}_s = -P_F \cdot \frac{c'_B}{c'_B + c_v} \cdot \frac{c_s}{c_s + c'_B + B + c_v} \\ + Z' \cdot \left[v_v \cdot c_v^{th} + v_v \cdot (c_v - c_v^{th}) \cdot \epsilon \right] \cdot [c_s(0) - c_s] \end{aligned} \quad (2.27)$$

Das in Glg. (2.27) eingehende c_v ergibt sich dabei durch Lösung der Glg. (2.26).

Für die weitere Betrachtung ist nun insbesondere die Unterscheidung zwischen dem senkendominanten und rekombinationsdominanten Fall (s. Abschnitt 2.2) wichtig. Im senkendominanten Fall können die Rekombinationsterme R_I und R_i vernachlässigt werden. Im rekombinationsdominanten Fall ist dagegen $R_I + R_i \gg S_v$. Der Übergang erfolgt bei einer LS-Konzentration für die $R_I + R_i = S_v$ gilt; d.h. aus Glg. (2.1)+(2.7)=(2.8) ergibt sich mit Glg. (2.24) als Bedingung für Senkendominanz

$$c_v < c'_B \quad , \quad (2.28)$$

mit der Annahme: $v_i \gg v_v$. Die Glg. (2.28) bedeutet, daß für die Senkendominanz die stationäre LS-Konzentration wesentlich kleiner sein muß als die effektive Blasenkonzentration c'_B .

Für die weitere Diskussion ist es nun zweckmäßig verschiedene Temperaturbereiche zu betrachten, in denen sich die Ratengleichungen durch einfachere Näherungen ausdrücken lassen (s. Abschnitt 2.2).

Für einen fest vorgegebenen, großen Wert von c'_B lassen sich vier charakteristische Temperaturbereiche für die LS-Konzentration angeben (s. Abbildung 2.2):

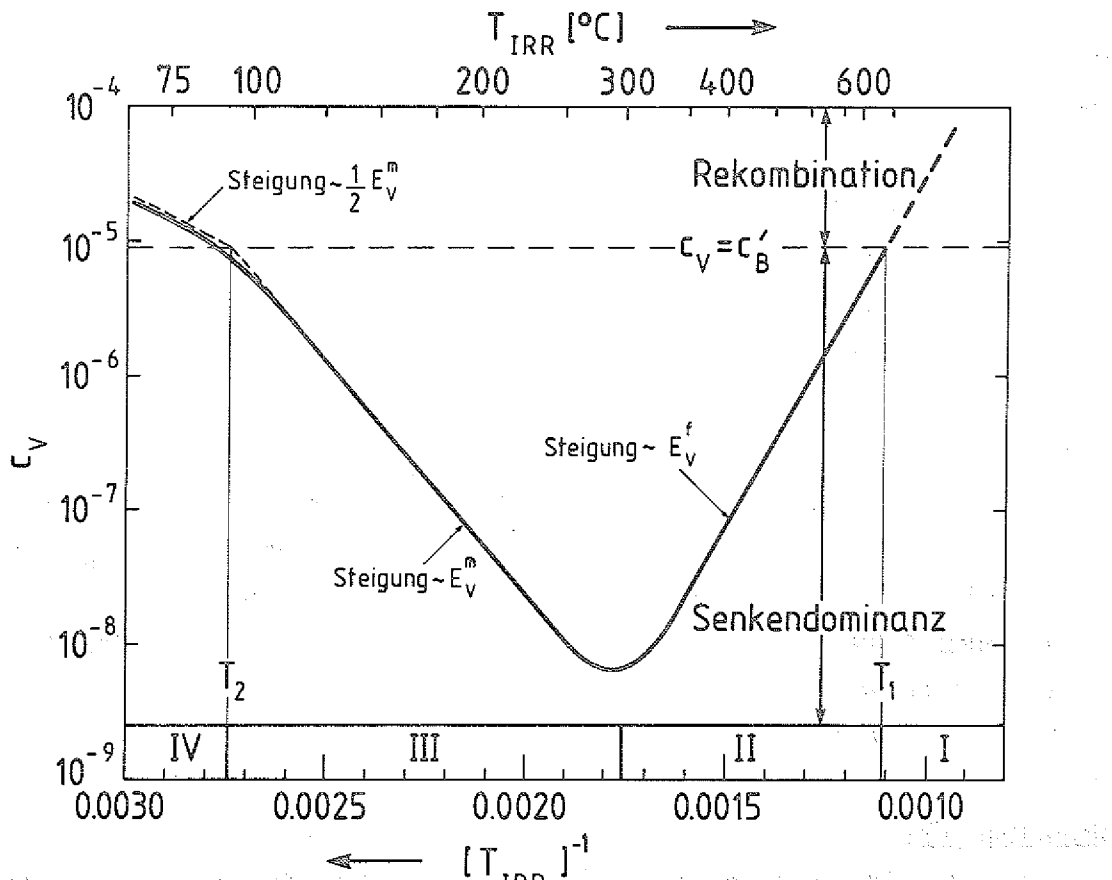
Bereich I:

Bei hohen Temperaturen ist c_v im wesentlichen von den thermischen Leerstellen bestimmt und groß gegen c'_B . Für die Defektströme gelten rekombinations-dominante Bedingungen. Dieser Bereich ist uninteressant, da in ihm die Effektivität der Entmischung zu schwach und die Rücklösung zu stark ist, um meßbare Effekte zu ermöglichen.

Bereich II:

Die thermischen LS bestimmen zwar noch die Konzentration c_v , aber sie ist klein gegen die effektive Senkenkonzentration, d.h. $c_v \ll c'_B$. Hier liegt der senkendominante Fall vor. Die Temperatur T_1 des Übergangs von Bereich I nach II folgt aus der Bedingung $c_v^{th} = c'_B$. Für Au und $c'_B \approx 9 \times 10^{-6}$ hat sie nach den Daten aus Tabelle 2.2 den Wert $T_1 \approx 620^\circ\text{C}$. Die Temperaturabhängigkeit von c_v ist im Bereich II gegeben durch $\exp(E_v^f/kT)$.

Abb. 2.2: Stationäre LS-Konzentration in Au als Funktion der Bestrahlungstemperatur T_{irr}
(gerechnet mit Hilfe der Daten aus Tab.2.2)



Bereich III:

Zu tieferen Temperaturen sinkt die Zahl der thermischen LS so stark ab, daß c_v durch die bestrahlungsinduzierten LS dominiert wird, d.h. $c_v \gg c_v^{th}$. Aus der Bedingung $P_F = S_v$

ergibt sich dann

$$c_V = \frac{P_F}{A_V \cdot c'_B \cdot \nu_V} \quad (2.29)$$

d.h. mit sinkender Temperatur steigt die LS-Konzentration wie $\exp(E_V^m/kT)$ an. Zunächst ist c_V noch klein gegen die Senkenzahl, so daß immer noch senkendominante Bedingungen vorliegen. Die Temperatur des Übergangs von Bereich II nach III beträgt für Au, $P_F \approx 3 \times 10^{-6}$ FD/s, $A_V \approx 4$ und $c'_B \approx 9 \times 10^{-6}$ ca. 300°C .

Bereich IV:

Bei tiefen Temperaturen nimmt, wegen der Abnahme der LS-Mobilität, ihre stationäre Konzentration weiter zu, so daß schließlich $c_V > c'_B$ wird. In diesem Temperaturbereich ist das Verschwinden der Defekte wieder durch die Rekombination bestimmt. Es gilt dann $P_F \approx R_I + R_i$. Damit gilt für die LS-Konzentration in diesem Bereich

$$c_V \approx \left[\frac{P_F}{A_V \cdot \nu_V} \right]^{1/2} \quad (2.30)$$

d.h. mit sinkender Temperatur steigt jetzt die LS-Konzentration nur noch wie $\exp(E_V^m/2kT)$ an.

Für die Übergangstemperatur T_2 von Bereich III nach IV ergibt sich aus der Bedingung

$$\left[\frac{P_F}{A_V \cdot \nu_V} \right]^{1/2} = c'_B \quad (2.31)$$

und aus den Werten der Tabelle 2.2 mit $P_F \approx 3 \times 10^{-6}$ FD/s
der Wert $T_2 \approx 90$ °C.

2.2. Diskussion der Dosiskurve der Entmischung

Der Zeitverlauf von c_s ergibt sich aus der Integration der Glg. (2.27).

Zu Beginn ergibt sich eine lineare Abnahme von c_s und für große Dosen eine Sättigung. Diese beide Grenzfälle sollen nun genauer betrachtet werden.

2.2.1. Anfangsverhalten der Matrixentleerung

Zu Beginn der Bestrahlung ist $c_s \approx c_s(0)$ und $RL \approx 0$, so daß

$$\dot{c}_s = -P_F \cdot \frac{c'_B}{c'_B + c_v} \cdot \frac{c_s(0)}{c_s(0) + c'_B + B + c_v} \equiv -P_F \cdot \text{EFF} \quad , \quad (2.32)$$

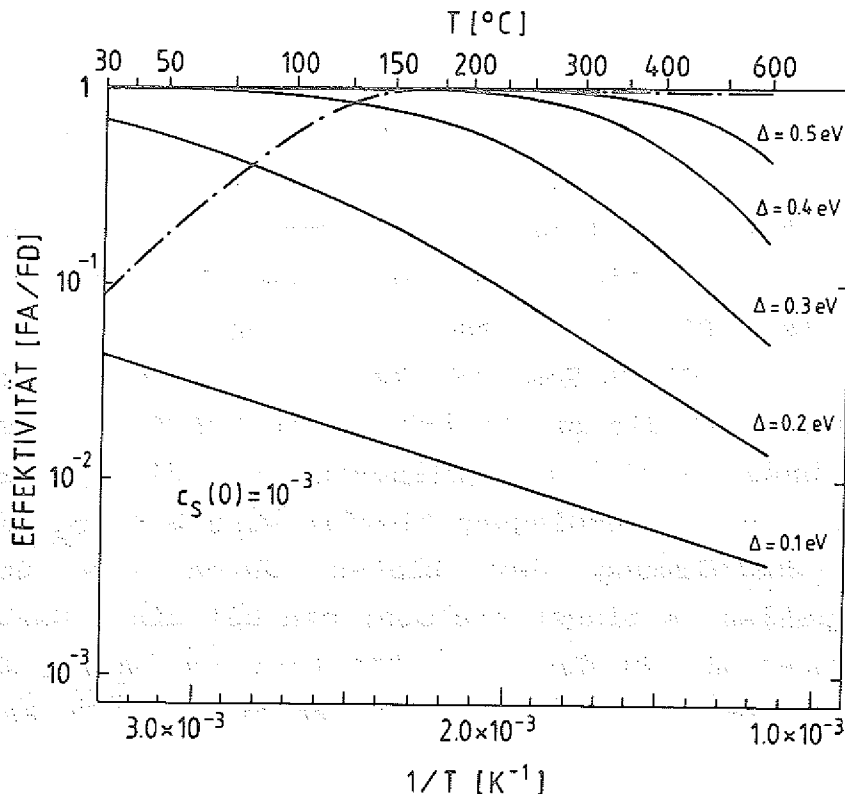
wobei durch die rechte Seite die sogenannte Effektivität des FA-Transports definiert wurde:

$$\text{EFF}(T) = \frac{\dot{c}_s(0)}{P_F} = \frac{c'_B}{c'_B + c_v} \cdot \frac{c_s(0)}{c_s(0) + c'_B + B + c_v} \quad . \quad (2.32a)$$

Der Ausdruck $\text{EFF}(T)$ stellt die Zahl der FA dar, die pro ZGA aus der Lösung zu den Senken transportiert werden. Da unter den

vorgegebenen Untersuchungsbedingungen stets $c_s(0) \gg c'_B + c_v$ gilt, enthält die Effektivität gemäß Glg. (2.32) im wesentlichen die beiden Faktoren $\frac{c'_B}{c'_B + c_v}$ und $\frac{c_s(0)}{c_s(0) + B}$. Der erste Faktor stellt dabei die Abhängigkeit der EFF(T) in die Rekombination da, während der zweite Faktor den Wert der EFF(T) durch $c_s(0)$ und B im senkendominanten Bereich bestimmt. Die Temperaturabhängigkeit dieser beiden Faktoren ist in Abbildung 2.3 veranschaulicht.

Abb. 2.3: Faktoren $\frac{c'_B}{c'_B + c_v}$ (---) und $\frac{c_s(0)}{c_s(0) + B}$ (—) der Effektivität EFF(T), gerechnet mit Hilfe der Daten aus Tab. 2.2, als Funktion der Bestrahlungstemperatur und für verschiedene Δ -Werte



Für den Fall der Senkendominanz ($c_v \ll c'_B$) gilt für den ersten Faktor $\frac{c'_B}{c'_B + c_v} = 1$, während in dem rekombinationsdominanten Bereich mit $c_s(0) \gg c_v \gg c'_B$ der Wert für c_v durch Glg. (2.30) bestimmt wird. Der Übergang erfolgt ungefähr bei $T = T_2$ in der Abbildung 2.2.

Für den zweiten Faktor gilt gemäß Glg. (2.24), (2.25) und (2.32)

$$\frac{c_s(0)}{c_s(0) + B} = \frac{v_i \cdot c_i}{v_i \cdot c_i + v_I \cdot c_I} \quad (2.33)$$

d.h. er gibt denjenigen Bruchteil aller ZGA (sowohl freie ZGA als auch ZGA-FA-Komplexen) an, die an der Senke in Form von ZGA-FA-Komplexen und nicht als (Eigen-)ZGA ankommen.

Für den Ausdruck (2.33) lassen sich zwei Grenzfälle diskutieren:

a) $B \ll c_s(0)$; Gemäß Glg. (2.4) bedeutet dies, daß die gebildeten ZGA-FA-Komplexe so stark gebunden sind, daß ihre Schrittzahl bis zur Dissoziation groß ist gegenüber der Schrittzahl eines Eigen-ZGA bis zum Einfang an einem substitutionellen FA. In diesem Fall spielt die mögliche Dissoziation der ZGA-FA-Komplexe keine Rolle. Man beachte, daß in diesem Grenzfall die primär gebildeten ZGA-FA-Komplexe nicht unbedingt ohne vorherige Dissoziation die Heliumblasen erreichen müssen. Die Bedingung hierfür wäre $B \ll c'_B$. Wegen der effektiven Abschirmung der Blasen durch die umgebenden substitutionellen FA findet vielmehr ein bei einer Dissoziation frei gewordenes ZGA wieder ein substitutionelles FA, sodaß ein neuer ZGA-FA-Komplex entstehen kann bevor das ZGA selbst zur

Senke geht. Die Effektivität hat dann im senkendominanten Bereich den Wert $EFF \approx 1$ und ist unabhängig von $c_s(0)$ und der Bestrahlungstemperatur.

b) $B \geq c_s(0)$; In diesem Fall ist die Schrittzahl eines ZGA-FA-Komplexes bis zu seiner Dissoziation kleiner oder gleich der Schrittzahl des dabei frei werdenden ZGA bis zu dem neuerlichen Einfang an einem neuen FA. D.h. die Abschirmung der Senken für den Einfang von ZGA durch die FA wird damit ineffektiv. Die Effektivität EFF wird dann abhängig von $c_s(0)$ und der Bestrahlungstemperatur. Diese Temperaturabhängigkeit ist für hohe Temperaturen durch $\exp(\Delta/kT)$ gegeben, wobei Δ die durch Glg. (2.6) definierte Aktivierungsenergie darstellt (s. Abbildung 2.3).

2.2.2. Sättigungsverhalten der Matrixentleerung

Definiert man bei hohen Bestrahlungsdosen als die maximale relative Matrixentleerung

$$M^{Max} \equiv \frac{c_s(0) - c_s(\infty)}{c_s(0)} \quad , \quad (2.34)$$

so ergibt sich aus der Bedingung $\dot{c}_s = 0$ und Glg. (2.27) eine quadratische Gleichung für $c_s(\infty)$. Daraus folgt

$$M^{Max} = \frac{1}{2} \cdot \left[1 + B' + Y \pm \left[(1 + B')^2 - 2 \cdot (1 - B') \cdot Y + Y^2 \right]^{1/2} \right] \quad , \quad (2.35)$$

wobei $B' \equiv \frac{B + c'_B + c_v}{c_s(0)}$ und

$$Y = \frac{A_v \cdot c'_B}{Z' \cdot c_S(0)} \left[\epsilon + \frac{c_v^{th}}{(c_v - c_v^{th})} \right]^{-1} \quad (2.36)$$

verwendet werden.

Für den Fall, daß $B' \ll 1$, (d.h. für tiefere Temperaturen oder eine sehr starke Bindung des ZGA-FA-Komplexes), ergeben sich für $Y \geq 1$ die Lösungen $M^{Max} = 1$ bzw. $M^{Max} = Y$. Wegen der Bedingung $M^{Max} \leq 1$ ist jedoch nur der Lösungszweig $M^{Max} = 1$ physikalisch sinnvoll.

Nur für den Fall, daß $Y < 1$ wird, ist auch die Lösung $M^{Max} = Y$ physikalisch sinnvoll. Der Fall $Y < 1$ kann nur erreicht werden, wenn $\epsilon > \frac{A_v \cdot c'_B}{Z' \cdot c_S(0)}$ ist, d.h. für den Fall, daß die Rücklösung

mit Hilfe der bestrahlungsinduzierten LS den Wert $M^{Max} < 1$ ergibt.

Das Verhalten von M^{Max} bei hohen Temperaturen, wenn $1 + B' \gg Y$ ist, ist gegeben durch

$$M^{Max} \approx Y \cdot (1 + B')^{-1} \quad (2.37)$$

D.h. M^{Max} fällt sehr steil, wie $\exp [(\Delta + E_v^m + E_v^f)/kT]$ mit zunehmender Temperatur ab.

Nimmt man ferner an, daß $\epsilon \ll \frac{c_v^{th}}{(c_v - c_v^{th})}$ ist, so ergibt sich mit Glg. (2.26) und $c'_B \gg c_v$

$$M^{\text{Max}} = \frac{P_F \cdot \text{EFF}}{Z' \cdot c_S(0) \cdot v_V \cdot c_V^{\text{th}}} \quad (2.38)$$

Für die Temperatur des Abfalls von M^{Max} vom Wert $M^{\text{Max}} = 1$ auf den Wert $M^{\text{Max}} = \frac{1}{2}$ ergibt sich die Bedingung

$$P_F \cdot \text{EFF} = \frac{1}{2} \left[Z' \cdot c_S(0) \cdot v_V \cdot c_V^{\text{th}} \right] \quad (2.39)$$

Daraus läßt sich der Wert von $v_V \cdot c_V^{\text{th}}$ bzw. die Temperatur ableiten, bei der dieser Abfall beobachtet wird.

2.3. Gültigkeitsgrenzen des Entmischungsmodells

Es wurde in den vorherigen Betrachtungen versucht, mit möglichst wenigen Parametern zu rechnen. Die Einbeziehung von weiteren Defektreaktionen ist in Prinzip möglich macht aber das Ratengleichungssystem größer und unübersichtlicher. Sie sollen im folgenden deshalb nur qualitativ in ihren Auswirkungen auf das Entmischungsverhalten unter Bestrahlung insbesondere für das am meisten untersuchte System AuFe diskutiert werden.

1) Die Veränderung der Senkenstruktur.

Bei der modellmäßigen Beschreibung der Defektreaktionen und der Matrixentleerung wurde die effektive Senkendichte c'_B als konstant angenommen. Wegen $c'_B \approx r_B \cdot c_B$ bedeutet dies, daß sowohl r_B als auch c_B annähernd unverändert bleiben sollen.

Da im Mittel bei der Bestrahlung gleich viele LS und ZGA an jeder Blase reagieren, bleibt auch die mittlere Blasengröße unverändert. Die Ablagerung der FA könnte einen gewissen, vermutlich jedoch geringen Einfluß auf den Einfangradius r_B haben. Eine Auflösung von den Blasen und damit eine Verringerung von c_B unter Bestrahlung ist nur durch relativ große Stoßkaskaden möglich. Dieser Prozeß dürfte bei Protonenbestrahlung, bei der entsprechend hochenergetische Primärprozesse selten sind, vernachlässigbar sein; noch dazu bei den geringen Dosen bis 0,1 dpa.

Aus dem gleichen Grund ist vermutlich auch die Bildung von genügend großen, und somit bei den erhöhten ($T > 200^\circ\text{C}$) Bestrahlungstemperaturen stabilen, Defektagglomeraten durch Kollaps von Primärkaskaden vernachlässigbar, da im Bereich der Stufe V erwartet wird, daß eine Wiederauflösung von kleinen Defektagglomeraten stattfindet. Damit sollten keine zusätzlichen, durch die Bestrahlung erzeugten Senken zu den Blasen in Konkurrenz treten.

2) Die Bildung von Doppel-Leerstellen.

Die Bildung von Doppel-Leerstellen ist zumindest im Bereich der Senkendominanz (d.h. $c_v \ll c'_B$) vernachlässigbar. Außerdem würde, wegen der höheren Beweglichkeit der Doppel-Leerstellen nur die stationäre LS-Konzentration abgesenkt und somit die Übergangstemperatur T_2 (s. Abb. 2.2) zu kleineren Werten verschoben werden. Die Entmischung selbst sollte nicht beeinflußt werden.

3) Die Bildung von i-S-Komplexen.

Da die vorliegende Senkenstärke c'_B stets sehr klein gegen c_s ist, haben Komplexe, bestehend aus einem interstitiellen und einem substitutionellen FA, an sich eine hohe Bildungswahrscheinlichkeit. Für die Struktur solcher Komplexe wird eine Hantel aus 2 FA auf einem Gitterplatz vorgeschlagen /2.6/. Es ist jedoch kein Diffusionsmechanismus für einen solchen i-S-Komplex bekannt, d.h. dieser i-S-Komplex ist als ganzes unbeweglich. Die wahrscheinlichste Möglichkeit für ein Weiterwandern der FA zu den Senken ist deshalb die thermische Dissoziation der i-S-Komplexe. Die ständige Bildung und anschließende Dissoziation von i-S-Komplexen wirkt sich deshalb als eine Erniedrigung der Sprungrate v_i^{eff} , gemäß /2.7/

$$v_i^{\text{eff}} = \frac{v_i}{1 + 4 \cdot \frac{r_s}{a} \cdot c_s \cdot \exp(G_{i,s}^b / kT)} \quad (2.40)$$

aus, wobei $G_{i,s}^b$ die freie Bindungsenthalpie des i-S-Komplexes bedeutet. Der Übergang von v_i zu v_i^{eff} führt nicht zu einer Änderung in der Effektivität des Transports, solange die Bedingung der Senkendominanz dadurch nicht verändert wird. Dies ist sicher gegeben wenn $v_i^{\text{eff}} > v_v$ ist, d.h. solange immer noch die LS der langsamste Defekt ist.

Falls $v_i^{\text{eff}} \ll v_v$, so erhöht sich die Übergangstemperatur T_2 vom senken- zum rekombinationsdominanten Bereich, da jetzt (analog zu Glg.(2.31)) für die Senkendominanz gelten muß

$$v_i^{\text{eff}} \gg \frac{P_F}{A_v \cdot (c'_B)^2} \quad (2.41)$$

4) Die Bildung von LS-FA-Komplexen.

Wegen $c'_B \ll c_s$, haben im senkdominanten Bereich die LS-FA-Komplexe eine hohe Bildungswahrscheinlichkeit, d.h. eine LS trifft auf ihrem Weg zur Senke sehr oft auf ein substitutionelles FA. Dabei kann einen LS-FA-Komplex gebildet werden, der durch eine freie Bindungsenthalpie $G_{v,s}^b$ und eine Sprungrate $v_{v,s}^m$ für effektive Diffusionssprünge charakterisiert wird. Für fcc-Metalle gehen im Rahmen des sogenannten Fünf-Frequenzen-Modells nach /2.8/ in $v_{v,s}^m$ im wesentlichen die Sprungraten ω_2 des FA in die benachbarte LS, sowie die Sprungrate ω_1 der LS auf den nächsten Nachbarplätzen um das FA herum ein:

$$v_{v,s}^m \approx \frac{\omega_2 \cdot \omega_1}{\omega_1 + \omega_2} \quad , \quad (2.42)$$

wobei der Einfachheit halber eine starke Bindung der LS an das FA (d.h. $G_{v,s}^b \geq 3 \cdot kT$) vorausgesetzt wurde.

Die Dissoziationsrate des LS-FA-Komplexes ist analog zu der ZGA-FA-Dissoziation gemäß Glg.(2.4) gegeben durch

$$v_{v,s}^{\text{Diss}} = v_v \cdot \frac{1}{3} \cdot \frac{r_s}{a} \cdot \exp(-G_{v,s}^b/kT) \equiv v_{v,s}^m \cdot \frac{1}{Z} \quad . \quad (2.43)$$

Dabei gibt

$$Z = \exp(G_{v,s}^b/kT) \cdot \frac{\omega_2 \cdot \omega_1}{\omega_2 + \omega_1} \cdot \frac{3}{v_v} \cdot \frac{a}{r_s} \quad (2.44)$$

die Zahl der effektiven Diffusionssprünge an, die ein LS-FA-Komplex vom Zeitpunkt seiner Bildung bis zum Zeitpunkt

seiner Wiederauflösung durch Dissoziation in eine LS und ein substitutionelles FA im Mittel ausführt. Dieser Faktor Z ist (für $r_s \approx a$) identisch mit dem zur Beschreibung der Rücklösung

eingeführten Faktor $Z = \frac{v_{V,S}^m \cdot c_{V,S}}{4 \cdot c_s \cdot c_v \cdot v_v}$. Die Konzentration an LS-FA-Paare ist dabei gegeben durch

$$c_{V,S} = c_s \cdot 12 \cdot c_v \cdot \exp(G_{V,S}^b / kT) \quad (2.45)$$

Für den Fall, daß keine Wechselwirkung zwischen dem FA und der LS besteht, ergibt sich $Z \approx 0,2$.

Die Bildung von beweglichen LS-FA-Komplexen hat im senkendominanten Bereich dreierlei Einfluß auf die Entmischungsrate:

- zum einen wird die effektive Wanderungsgeschwindigkeit der LS zu den Senken verändert (und unter Umständen auch die Gleichgewichtskonzentration der LS gemäß /1.20/),
- zum anderen erhöht sich der FA-Transport zu den Senken dadurch, daß jetzt auch die LS Fremdatome mitschleppen
- und außerdem wird die Rücklösung verändert, was aber bereits durch den Faktor Z aus Glg. (2.13) berücksichtigt wird.

Für die veränderte Wanderungsgeschwindigkeit der LS gilt nach /2.7/

$$v_v^{\text{eff}} \approx v_v \cdot \frac{1 + Z \cdot 4 \cdot \frac{r_s}{a} \cdot c_s}{1 + 12 \cdot c_s \cdot \exp(G_{V,S}^b / kT)} \quad (2.46)$$

Eine genauere Betrachtung von v_v^{eff} zeigt, daß nur unter besonderen Verhältnissen, z.B. einer sehr starken Bindung, eine wesentliche Veränderung gegenüber v_v zu erwarten wäre.

Dies würde dann aber auch nur die Temperatur für den Übergang vom senken- in den rekombinationsdominanten Fall verschieben.

Für die Abschätzung des zweiten Effekts, des Beitrags der LS-FA-Komplexe zur bestrahlungsinduzierten Entmischung, ist das Verhältnis

$$\frac{v_{v,s}^m \cdot c_{v,s}}{v_i \cdot c_i} \approx Z \cdot 4 \cdot (c_s + B) \quad (2.47)$$

maßgeblich. Diese Beziehung folgt für $c_v \gg c_v^{th}$ aus der Glg.(2.25) und $Z = \frac{v_{v,s}^m \cdot c_{v,s}}{4 \cdot c_s \cdot v_v \cdot c_v}$. Der Beitrag der LS-FA-Komplexe zur Entmischung ist demnach vernachlässigbar, wenn $Z \cdot 4 \cdot (c_s + B) \ll 1$ ist.

Falls $B > c_s$ (d.h. bei $EFF < 1$) so bedeutet dies, daß die Schrittzahl der ZGA-FA-Komplexe bis zu ihrer Dissoziation (charakterisiert durch B) groß gegen die Schrittzahl Z der LS-FA-Komplexe bis zu deren Dissoziation sein muß.

Falls $B < c_s$ (d.h. bei $EFF \approx 1$) so muß die Schrittzahl Z des LS-FA-Komplexes bis zur Dissoziation sehr klein gegen die Schrittzahl einer LS bis zum Erreichen eines FA sein, damit die LS-FA-Komplexe keinen Beitrag zur Entmischung liefern. Die LS kommen dann in überwiegenderem Maße als freie LS und nicht als LS-FA-Komplexe an die Senken an.

3. Experiment

In Abschnitt 3.1 werden zunächst die Auswahl und Präparation der Legierungen diskutiert. Die Proben wurden auf einem neuentwickelten Probenhalter (Abschnitt 3.1.2) montiert, der die simultane Bestrahlung und In-Situ-Messung des elektrischen Widerstands (Abschnitt 3.2) von zehn Proben ermöglichte. In Abschnitt 3.3 werden die Helium-Implantationen besprochen, die am Zyklotron des CCR Ispra durchgeführt wurden, sowie in Abschnitt 3.4 die anschließenden Bestrahlungsexperimente am Protonenbeschleuniger des Instituts für Festkörperforschung der KFA Jülich.

3.1. Proben

3.1.1. Auswahl der Legierungssysteme

Als FA in den Edelmetallen Au, Cu und Ag wurden "kleine" FA gewählt, da für diese Atome eine starke Wechselwirkung mit dem ZGA erwartet wird. Im Rahmen des einfachen Misfitmodells /3.1/ sollte der Volumenmisfit Ω_{sf} ein wesentliches Maß für die Bindung zwischen ZGA und FA sein. Er ist definiert als

$$\Omega_{sf} = \frac{1}{\Omega_M} \cdot \frac{d\Omega}{dc_{FA}} \quad (3.1)$$

mit Ω_M als Atomvolumen der Matrix.

Anschaulich läßt sich dieser Sachverhalt durch die Reduzierung der Gitterverzerrung eines ZGA beim Einbau eines kleineren FA in die Hantelkonfiguration verstehen.

In der Tabelle 3.1 ist der Volumenmisfit Ω_{sf} für die in dieser Arbeit untersuchten Fremdatome aufgelistet /3.2/. Nahezu alle Fremdatome in der jeweiligen Matrix sind unterdimensioniert, d.h. $\Omega_{sf} < 0$.

Tabelle 3.1: spezifische Widerstandsänderung und Misfit von unterschiedlichen Fremdatomen in Au, Cu und Ag

Legierung	$\frac{\Delta \rho_{FA}}{c_{FA}} \left[\frac{\mu\Omega cm}{at\%} \right] / 3.3 /$ (4,2 K)	$\frac{\Delta \rho_{FA}}{c_{FA}} (exp) \left[\frac{\mu\Omega cm}{at\%} \right]$ (4,2 K)	$\Omega_{sf} [\%] / 3.2 /$
Au-Al	1,87	$2,3 \pm 0,6$	-10,17
Fe	(7,2-8,0)	$9,6 \pm 0,5$	-19,87
Mn	2,4	$2,8 \pm 0,2$	-5,35
Ni	(0,69-0,79)	$1,9 \pm 0,1$	-21,92
Pt	(0,96-0,99)	$2,2 \pm 0,1$	-12,62
Ti	(12,1-12,6)	$10,5 \pm 0,3$	-7,76
V	(14,5-17,7)	$15,8 \pm 1,4$	-8,94
Zn	(0,85-0,94)	$1,1 \pm 0,1$	-13,82
Cu-Ni	1,138	$1,20 \pm 0,04$	-8,45
Si	3,25	$3,70 \pm 0,26$	+5,08
Ag-Al	1,82	$1,65 \pm 0,18$	-9,18
Au	(0,36)	$0,33 \pm 0,02$	-1,78
Ge	(4,9-5,4)	$3,90 \pm 0,29$	+1,66
Mn	(1,53-1,77)	$1,77 \pm 0,09$	+0,09
Pd	0,44	$0,39 \pm 0,03$	-17,21
Pt	1,32	*	-20,05
Zn	(0,51-0,71)	$0,53 \pm 0,04$	-13,74

Ein weiteres Kriterium bei der Auswahl der Legierungssysteme ist der spezifische Widerstandsbeitrag der FA beim Zulegieren. Um die Empfindlichkeit der Widerstandsmessung auf Segregationseffekte zu erhöhen, sollte der Wert möglichst groß sein. Die Literaturwerte nach /3.3/ sind in Tabelle 3.1, Spalte 2 dargestellt. Wenn mehrere Werte aufgeführt waren, sind die obersten und untersten Grenzwerte angegeben. In dieser Arbeit

wurden für eine Reihe von Legierungen die Werte $\frac{\Delta \rho_{FA}}{c_{FA}}(\text{exp})$ aus den elektrischen Restwiderstandsänderungen von Proben mit unterschiedlichen FA-Konzentrationen bestimmt. Die Fehler der experimentellen Werte sind typischerweise $\leq 10\%$. Sie stimmen im allgemeinen gut mit den Literaturwerten überein (Tabelle 3.1, Spalte 3).

Nur für die Systeme AuNi und AuPt wurden Abweichungen festgestellt. Die Ursache konnte nicht aufgeklärt werden.

3.1.2. Probenpräparation und Probenhalter

Es wurden für diese Arbeit zusätzlich zu den verdünnten Au-, Cu- und Ag-Legierungen (500-2000 atppm) noch hochreine Au-, Cu- und Ag-Proben (5-6N) hergestellt.

Die Ausgangsmaterialien für die Probenherstellung, die nominelle Reinheit und die Hersteller sind in der Tabelle 3.2 aufgelistet. Die Herstellung der verdünnten Au-, Cu- und Ag-Legierungen erfolgt durch das Aufschmelzen der zwei Komponenten eines binären Systems unter 1 Bar hochreinem Argon mit Hilfe einer Hochfrequenzheizung im kalten Kupfer-Tiegel. Es wurden zunächst Vorlegierungen mit $c_{FA} \approx 1$ at% hergestellt. In einem zweiten Schritt wurde die gewünschte verdünnte Legierung durch Zugabe des Matrixelements erschmolzen.

Tabelle 3.2: Information zu den Ausgangsmaterialien

Ausgangsmaterial	nominelle Reinheit	Hersteller	RRR
<u>Matrix</u>			
Au	5N	Demetron	250
Cu	6N	Outokumpu(SF)	115
Ag	6N	Hoboken(B)	200
<u>Fremdatom</u>			
Al	6N	VAW	
Fe	5-6N	JMC(GB)	
Ge	5-6N	Hoboken(B)	
Mn	4N	JMC	
Ni	4N	Frank & Schulte	
Pd	6N	Demetron	
Pt	5N	JMC	
Si	5-6N	Siemens	
Ti	5N	MRC(GB)	
V	4N	TWCA(USA)	
Zn	6N	Cominco(USA)	

Die Legierungen wurden von der Zentralabteilung für chemische Analyse der KFA Jülich mit der Methode der Atomemissionsspektroskopie mit induktiv gekoppeltem Argonplasma charakterisiert. Die Analysenwerte, sowie die Anlaßtemperaturen T_A zum Tempern der jeweiligen Legierungssysteme, sind in Tabelle 3.3 dargestellt. Bis auf Au(5N) und Ag (6N), die an Luft getempert wurden, wurden alle Proben unter Vakuumbedingungen ($P < 3 \times 10^{-6}$ mBar) eine Stunde getempert.

Tabelle 3.3: chemische Analysen und Anlaßtemperaturen
der hergestellten Legierungen

Matrix	Fremdatom	c_{FA} [atppm]	Analysenwert [atppm]	T_A [°C]
Au	Al	1000	875 ± 219	700
		500	550 ± 27	700
		1000	775 ± 71	700
		3000	3210 ± 160	700
		5000	4600 ± 230	700
		8400	8400 ± 420	700
	Mn	1000	896 ± 72	700
	Ni	1000	905 ± 67	700
	Pt	1000	787 ± 50	700
	Ti	1000	*	700
	V	1000	889 ± 77	700
	Zn	1000	873 ± 60	550
Cu	Ni	500	400 ± 22	800
		1000	790 ± 32	800
		2000	1547 ± 54	800
	Si	500	475 ± 45	800
		1000	972 ± 68	800
		2000	1920 ± 113	800
Ag	Al	500	520 ± 80	400
		1000	1079 ± 120	400
		2000	2156 ± 160	400
	Au	500	526 ± 33	400
		2000	2030 ± 82	400
	Ge	500	520 ± 45	450
		1000	980 ± 74	450
		2000	2124 ± 119	450

(Fortsetzung der Tabelle 3.3)

Mn	500	432 ± 39	450
	1000	765 ± 39	450
	2000	1354 ± 59	450
Pd	500	568 ± 51	400
	2000	2433 ± 101	400
Pt	500	606 ± 55	400
	1000	1151 ± 51	400
	2000	2077 ± 83	400
Zn	500	330 ± 33	420
	1000	660 ± 50	420
	2000	1221 ± 83	420

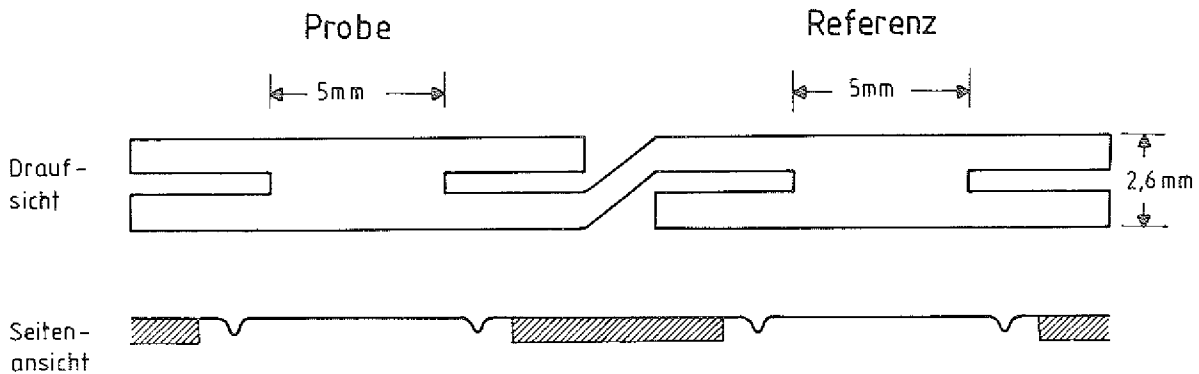
*Nicht durchgeführt: Analyse Au- 1 at%Ti Vorlegierung

$c_{FA} = (0,99 \pm 0,03) \text{ at\%}$

Anschließend wurden aus den verdünnten Legierungen und den hochreinen Proben 10µm dicke Folien durch Walzen hergestellt. In einem nächsten Schritt wurde aus den Folien die endgültige Probenform funkenerosiv geschnitten. Die Probe wurde als eine Doppelprobe (s. Abb. 3.1) ausgebildet, um immer eine unbestrahlte Referenzprobe bei möglichst gleicher Temperatur mitmessen zu können.

Nach einer weiteren Temperung unter gleichen Bedingungen wie in Tabl.3.3, wurden diese Proben schließlich an vier Stellen mit einer Schablone eingeknickt (Abb. 3.1). Diese Knicke sollen Längenänderungen der Probe in Folge einer Heliumimplantation auffangen.

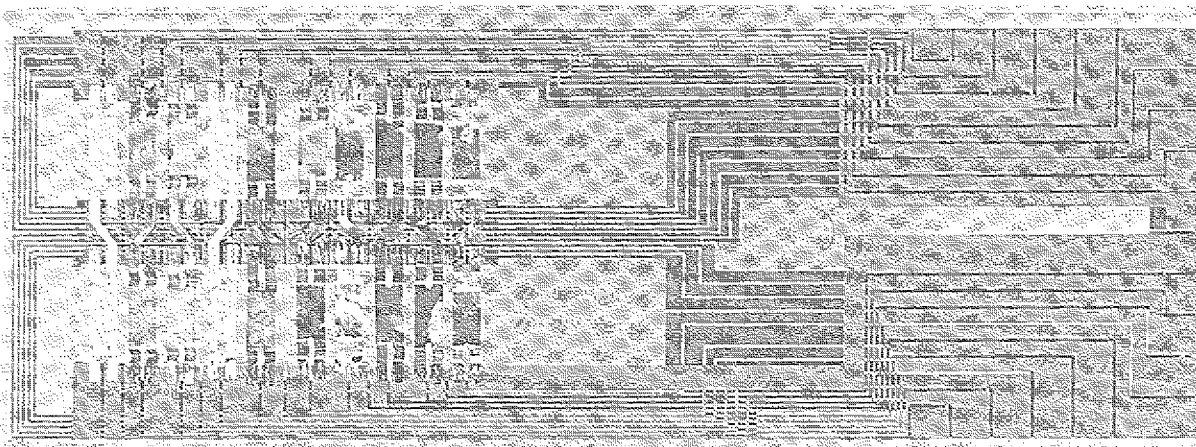
Abb. 3.1: Geometrie der Doppel-Probe



Die Ausgangsmaterialien wurden vor dem Schmelzen geätzt und während des ganzen Herstellungsprozesses in Bädern mit destilliertem Wasser, Azeton und Äthanol hinreichend oft gesäubert.

Die fertiggestellten Proben wurden auf einem neuartigen Probenhalter montiert, der die elektrische Widerstandsmessung der zu untersuchenden Materialien während den verschiedenen Prozeßschritten des Bestrahlungsexperimentes ermöglicht. Eine fotografische Aufnahme des endgültigen Probenhalters, bestückt mit zehn Doppelproben, zeigt Abb. 3.2.

Abb. 3.2: Frontseite des Probenhalters



Zunächst wurde versucht einen Probenhalter aus 1 mm dickem Al_2O_3 herzustellen. Dieses Konzept erwies sich als zu thermoshock empfindlich, so daß sich Mikrorisse an den scharfen Kanten des Keramikhalters bildeten. Hingegen eignet sich SiO_2 als Material für den Probenhalter wesentlich besser. Als Träger wurde eine Quarzglasplatte mit einer Dicke von 2,0 mm und äußeren Abmessungen von 120mm x 40mm verwendet. In die Platte wurden mechanisch zwei Rechtecke (40mm x 9mm) am Ort der Proben gefräst. Weiterhin wurden noch fünf Kreislöcher für die Montage des Probenhalters an den Ansaugblock (s. Abschnitt 3.4.1) gebohrt. Mit Hilfe eines Siebdruckverfahrens wurde mittels einer Platinpaste ein Muster von Leiterbahnen sowohl auf die Frontseite als auch auf die Rückseite der Quarzglasplatte gedruckt. Die beidseitig bedruckte Platte wurde an Luft bei 850 °C erhitzt. Durch Einbrennen des Platins entsteht ein gut haftendes System von Platinleiterbahnen auf der Quarzglasplatte.

Im letzten Schritt wurden die zehn Doppelproben mit einer Mikro-Punkt-Schweißmaschine an den entsprechenden Positionen auf der platinbeschichteten Platte montiert. Das System der Leiterbahnen ermöglicht in dieser Konstruktion die Widerstandsmessung der 20 in Serie geschalteten Proben. Hierfür konnte am Ende des Halters ein spezieller Stecker an die Platte angekoppelt werden. Der Stecker enthält für jede der beiden Stromzuführungen und jeden der 40 Potentialabgriffe einen elektrolytisch vergoldeten Cu-Stift, der mit CuBe-Federn auf die Leiterbahnen gepreßt wird. Als strahlenresistentes Isolationsmaterial wurde Vespel verwendet: ein Kunststoff, der in inerten Gasatmosphären Temperaturen bis 320°C aushält. Von den Cu-Stiften aus, gehen dann Cu-Drähte zu der Elektronik für die Widerstandsmessung, außerhalb der Bestrahlungsapparatur.

3.2. Elektrische Widerstandsmessung

Sämtliche Widerstandsmessungen erfolgten mit Hilfe der Vierpolmethode. Den Proben wird dabei ein konstanter Meßstrom $I=(100,00 \pm 0,01)$ mA zugeführt und an zwei Potentialabgriffen wird die Spannung gemessen. Die 10 Doppelproben (bestehend aus je einer Bestrahlungs- und Referenzprobe) sind auf dem Probenhalter in einer Serienschaltung angeordnet.

Die Spannungssignale der Proben werden über einem Multipolmeßstellenwähler nacheinander abgefragt. Das Signal wird von einem Keithley 140 Nano-Volt-Verstärker verstärkt und dann von einem Prema 6040S integrierenden Voltmeter ausgelesen. Mit Hilfe eines Umpolers kann das Vorzeichen des Meßstromes geändert werden. Bei jeder Meßstromumpolung mittelt das Voltmeter 50mal den Wert des Spannungssignals einer Probe. Die Mittelung der Spannungswerte der zehn Proben und ihrer Referenzproben sowie alle anderen Prozeßschritte während der Widerstandsmessung, werden vollautomatisch von einem Digital-PDP-11-Rechner gesteuert. Ein entsprechendes Rechnerprogramm ermittelt die bestrahlungsinduzierte Widerstandsänderung $\Delta R=R-R_{\text{Referenz}}$. Die relative Meßgenauigkeit ist im wesentlichen durch die Temperaturkonstanz der Proben bestimmt und hat bei Raumtemperatur einen Wert von ca. 5×10^{-4} .

Die elektrische Widerstandsmessung in den Bestrahlungsanlagen für die Heliumimplantation als auch für die Protonenbestrahlungen wurde bei Raumtemperatur durchgeführt. Um aus dem gemessenen Widerstand $R(T)$ den spezifischen Widerstand $\rho(T)$ zu bestimmen, muß man den Geometriefaktor G kennen. Es gilt

$$\rho(T) = G \cdot R(T) \quad (3.2)$$

Nach der Matthiessen Regel /3.4/ gilt für den spezifischen Widerstand

$$\rho(T) = \rho_{ph}(T) + \rho_i \quad (3.3)$$

die Additivität des temperaturabhängigen Phononenanteils und des temperaturunabhängigen Anteils der Gitterfehlordnung (Versetzungen, Leerstellen, Fremdatome u.a.).

Dann ergibt sich für den Geometriefaktor der Probe

$$G = \frac{\rho_{ph}(RT)}{R(RT) - R(4,2K)} \quad (3.4)$$

d.h. bei Kenntnis des Phononenbeitrags $\rho_{ph}(RT)$ bei Raumtemperatur, kann man mit Hilfe einer elektrischen Widerstandsmessung $R(RT)$ bei Raumtemperatur und $R(4,2K)$ in flüssigem Helium den Geometriefaktor der Probe errechnen. Die Tabelle 3.4 zeigt die zu Grunde gelegten Phononenwiderstände $\rho_{ph}(RT)$ bei $T=298,00$ K sowie die Temperaturkoeffizienten α_T für die untersuchten Materialien /3.3/.

Tabelle 3.4

	$\rho_{ph}(298\text{ K})[\mu\Omega\text{cm}]$	$\alpha_T(273\text{ K})[/^{\circ}\text{C}]$
Au	2,2640	0,0040
Cu	1,7170	0,0043
Ag	1,6406	0,0041

Für verdünnte Legierungssysteme unter Bestrahlung ist der Widerstandsbeitrag der Gitterfehlordnung ρ_i aus der Gleichung (3.3) als Summe aus dem Widerstandsbeitrag der in Lösung

befindlichen Fremdatome ρ_{FA} und dem Widerstandsbeitrag der Defektstruktur (Defektagglomerate, Heliumblasen) gegeben.

Nach der Implantation und dem Anlaßprogramm (s. Abschnitt 4.3) trägt praktisch nur noch die erzeugte Blasenstruktur mit $\Delta\rho_B$ zum Defektwiderstand bei.

Wenn sich bei der Protonenbestrahlung der Blasenanteil nicht ändert, erhält man durch Vergleich mit der weiterhin unbestrahlten und unimplantierten Vergleichsprobe aus dem Ausdruck

$$(\rho(\phi) - \rho_{\text{Referenz}}) - \Delta\rho_B = \Delta\rho(\phi) \quad (3.5)$$

ein Maß für den bestrahlungsinduzierten Fremdatomtransport zu den Senken. Die Abhängigkeit der gelösten FA-Konzentration $c_{FA}(\phi)$ von der Dosis ergibt

$$c_{FA}(\phi) = c_{FA} \cdot \left(\frac{\Delta\rho(\phi)}{\Delta\rho_{FA}} + 1 \right) \quad (3.6)$$

Durch diese Gleichung wird im Folgenden bei Protonenbestrahlung die momentane Konzentration der in Lösung befindlichen FA bestimmt (in Kapitel 2 als c_s bezeichnet). Hierbei wurde angenommen, daß die Fremdatome nach der Ausscheidung an den internen Senken nicht mehr zum Widerstand beitragen.

3.3. Heliumimplantation

Zunächst sollte eine definierte Senkenstruktur in den zu untersuchenden Proben sichergestellt werden. Diese Senkenstruktur wurde durch die Bildung von Heliumblasen in der Probenmatrix realisiert. Mit Hilfe einer kontrollierten

Heliumimplantation und eines geeigneten, thermischen Anlaßprogramms werden Proben definiert mit homogen verteilten Heliumblasen dotiert.

Die Heliumimplantationsversuche wurden an dem 40 MeV-Zyklotron des Centro Comune di Ricerca Euratom, Ispra (Italien) durchgeführt. Der Beschleuniger lieferte einen Strahl von α -Teilchen, die über einen Ablenkmagnet in das Strahlrohr gelenkt werden, an dessen Ende die Bestrahlungskammer für die Implantation aufgebaut ist.

Zwischen dem Strahlrohr ($\text{ca. } 10^{-6} \text{ mBar}$) und der Bestrahlungskammer mit einer Heliumatmosphäre von 1500 mBar befindet sich ein ca. 50 μm dickes, kreisförmiges Aluminium Strahlfenster (Durchmesser 7 mm).

In der Abbildung 3.3 ist der Weg des Strahls nach Eintritt in die Kammer schematisch dargestellt. Zwischen dem Strahlfenster und den Proben befindet sich ein Energiedegraderrad, welches während der Bestrahlung mit 180 Umdrehungen/min rotiert. Es enthält 18 unterschiedlich dicke Aluminium- Kreissegmente. Bei einer geschickten Wahl der Segmentdicken tritt hinter dem Degraderrad ein α -Strahl aus, dessen Energieverteilung eine homogene Heliumimplantation ermöglicht.

Bei einer vorgegebenen Probendicke $d = (10 \pm 2) \mu\text{m}$ für verdünnte Au-, Cu- und Ag-Legierungen kann man aus der Literatur die Energie E^{Max} von He^{2+} -Ionen mit einer Reichweite $R = 10 \mu\text{m}$ entnehmen. In der Tabelle 3.5 sind diese Werte aufgelistet /3.5/.

Abb. 3.3: Schematische Darstellung der Bestrahlungsanlage zur Heliumimplantation

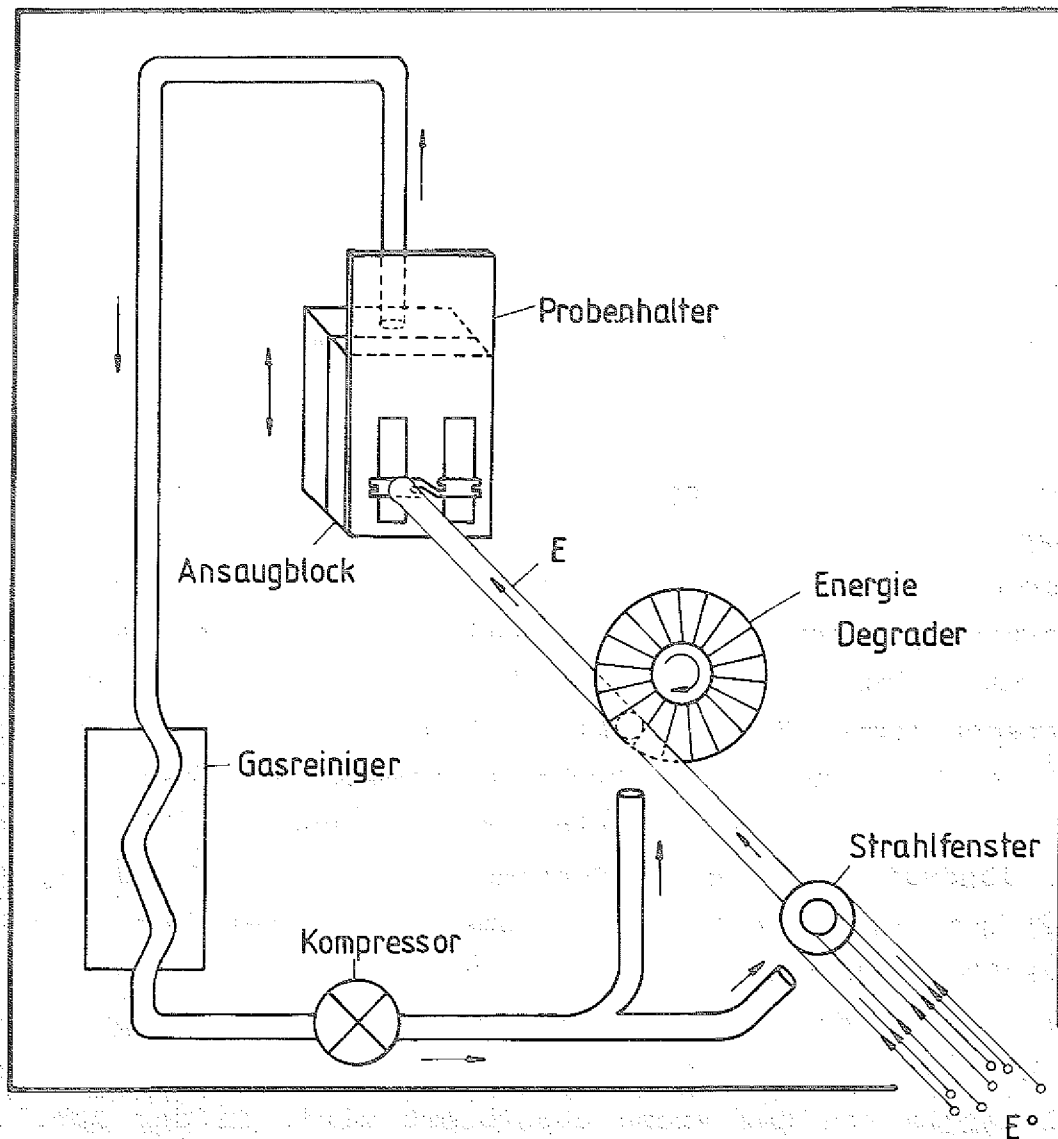


Tabelle 3.5

Matrix [10 μ m]	E^{Max} [MeV]
Au	5,4
Cu	4,6
Ag	5,0

Für eine homogene Implantation muß die Energie E der α -Teilchen zwischen $0 \leq E \leq E^{\text{Max}}$ variiert werden, was durch die entsprechende Konstruktion des Degraderrad ermöglicht wird.

Als Teil der Vorbereitung zu den Implantationsversuchen wurde ein Experiment zu der Festlegung der Ausgangsenergie E^0 des Zyklotrons durchgeführt, die den Energieverlust im Fenster und im Energiedegraderrad festlegen sollte. Dazu wurde als Maß für die in der Probe absorbierte Strahlenergie die Probentemperaturerhöhung ΔT durch die elektrische Widerstandsänderung einer Probe bestimmt. Bei verschiedenen Energien E^0 wird ΔT als Funktion der Stellung des Degraderrads θ bei langsam rotierendem Degraderrad (ca. 1 Umdrehung pro Minute) gemessen. Die Aluminiumsegmente des Degraderrads lagen im Dickenbereich von 225-265 μ m. Falls $\Delta T > 0$ beobachtet wird, bedeutet dies, daß der α -Strahl mit $E > 0$ das entsprechende Segment des Degraderrad verläßt, so daß ein Teil der Strahlenergie von der Probe absorbiert wird. In der Abb. 3.4 sind für $E^0 = 28,0$ MeV und $E^0 = 27,0$ MeV die Probentemperaturerhöhungen ΔT als Funktion des Drehwinkels θ bzw. der Dicke d der Degraderradsegmente dargestellt. Die Spitzen (Maxima und Minima) der Temperaturerhöhung rühren davon her, daß bei der kontinuierlichen Drehung des Degraderrads auch

die teilweise überlappenden Bereiche bzw. die Spalten zwischen den Segmenten einen Beitrag zum Signal lieferten. Es ergibt sich bei der Zyklotronenergie $E^0 = 28,0$ MeV, daß für alle Segmente $\Delta T > 0$ ist. Dieser Befund deutet darauf hin, daß keine Oberflächenimplantation auf der Strahlseite der Probe stattfindet (mit $E = 0$ MeV). Für $E^0 = 27,0$ MeV liefern die Aluminium-Segmente mit $d > 260 \mu\text{m}$ (Drehwinkel $\theta > 270^\circ$) praktisch $\Delta T = 0$. Damit ergibt sich unter Berücksichtigung der Strahlensterdicke eine totale Reichweite $R = 310 \mu\text{m}$ für die α -Teilchen. Dies ist in guter Übereinstimmung mit der Literatur /3.5/.

Eine Sättigung der Widerstandszunahme ΔT bei den Segmenten geringerer Dichte ergibt sich dann, wenn die Energie so hoch ist, daß die α -Teilchen die Proben durchsetzen und auf der Rückseite die Probe wieder verlassen. Dies ist bei $E^0 = 27,0$ MeV für $d \leq 240 \mu\text{m}$ ($\theta < 90^\circ$) der Fall.

Der beobachtete, lineare Anstieg der Temperaturerhöhung im Bereich $90^\circ < \theta < 270^\circ$ zeigt, daß bei dieser Wahl der Zyklotronenergie von $E^0 = 27,0$ MeV homogen implantiert werden kann. Allerdings wird nur etwa 50% des α -Strahls für die Implantation ausgenutzt. Der übrige Anteil bleibt entweder im Degraderrad stecken oder geht durch die Probe hindurch. Diese Auslegung gewährleistet, daß auch dickere Proben noch homogen implantiert werden können bzw. ein gewisses Schwanken der Primärenergie E^0 toleriert werden kann.

Für die simultane Bestrahlung der zehn Proben eines Halters muß der Strahl einen Bereich von $4\text{cm} \times 1\text{cm}$ überdecken. Aufgrund unterschiedlicher Randbedingungen für die Bestrahlungsapparaturen zur Protonenbestrahlung und zur

Heliumimplantation ergaben sich verschiedene Lösungswege für die simultane Bestrahlung: Bei der Protonenbestrahlung konnte der Strahl über die zehn Proben mit Hilfe periodischer magnetischer Ablenkungen gewobbelt werden.

Da am Zyklotron diese Möglichkeit nicht vorhanden war und außerdem das Wobbeln ein größeres Degraderrad erfordern würde, wurde deshalb bei der Heliumimplantation der Probenhalter mit Hilfe einer motorisch angetriebenen Schiebevorrichtung periodisch hin und her gefahren. Abbildung 3.5 zeigt diesen Schiebemechanismus, der an die Bestrahlungskammer angeflanscht wird.

Abb. 3.5: Schiebemechanismus als Einschub für die Heliumimplantation

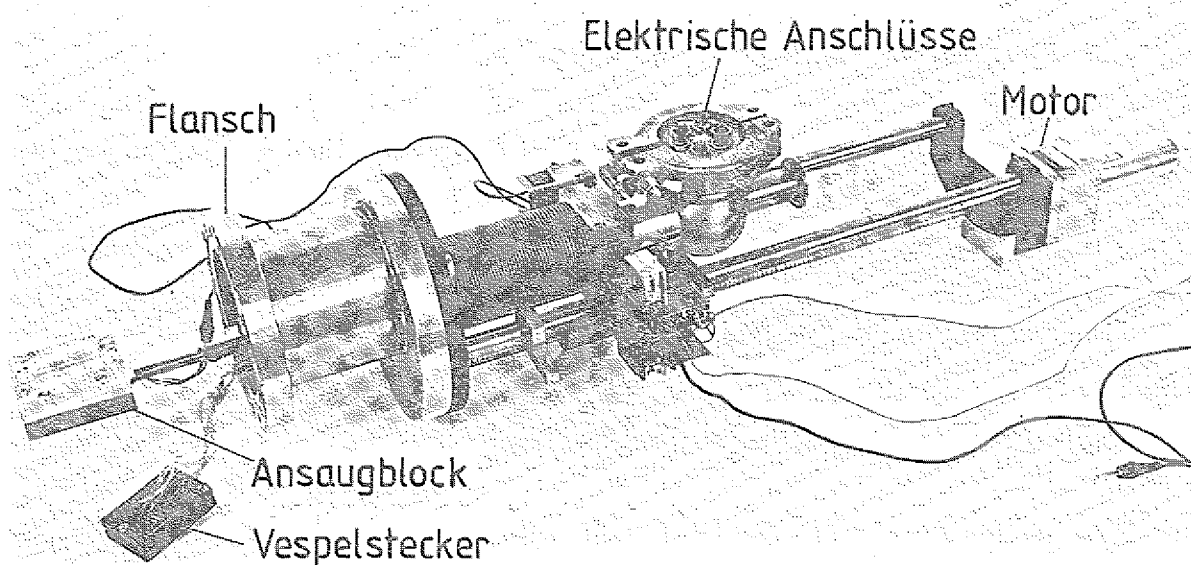
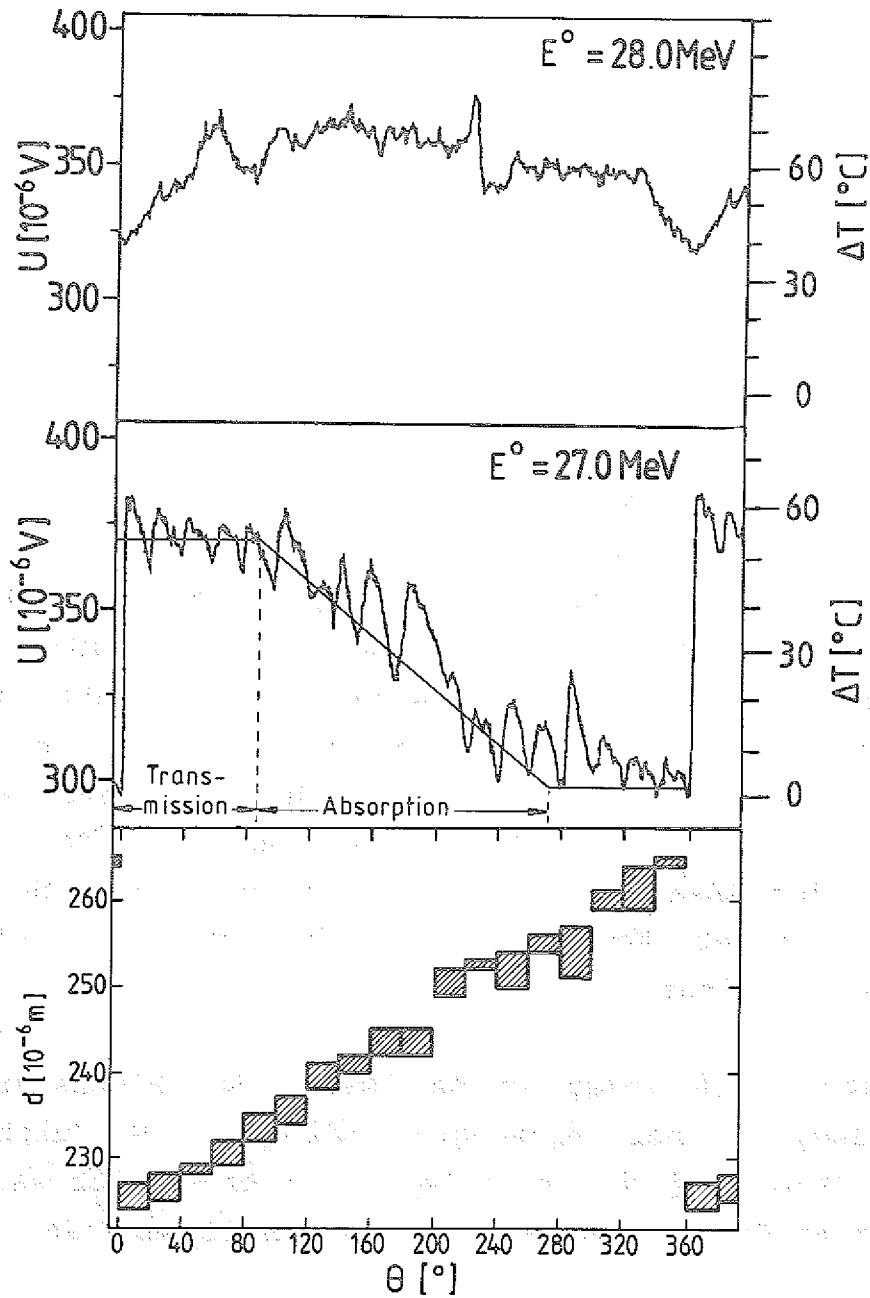


Abb. 3.4: Probentemperaturerhöhung ΔT einer Testprobe bei verschiedenen Zyklotronenergien E^0 als Funktion der Segmentdicken d des Degraderrads



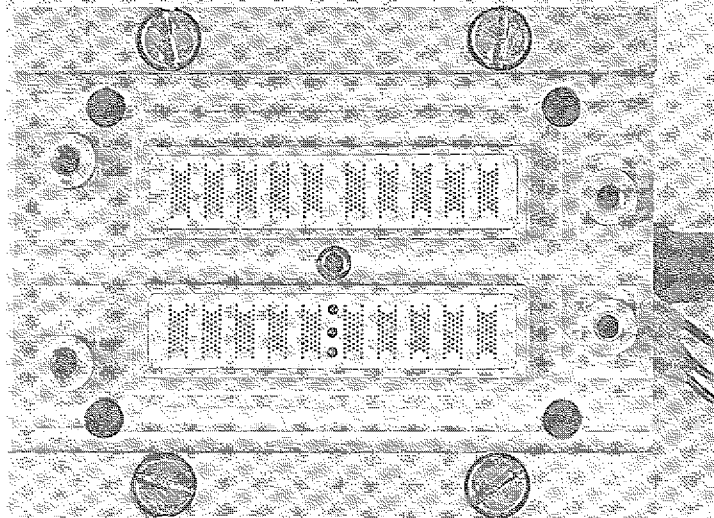
Am Ende dieses Abschnitts soll die Probenkühlung diskutiert werden. Die Implantation wird mit einem typischen Strahlstrom $I_{\alpha} = 30 \text{ } \mu\text{A}/\text{cm}^2$ auf der Probe durchgeführt, dem eine Energieabsorption von $\approx 70 \text{ W}/\text{cm}^2$ entspricht.

Um eine unkontrollierte Aufheizung zu vermeiden, wurde eine spezielle Heliumgas-Kühltechnik verwendet; dabei wurde der Probenhalter auf einem Aluminiumblock befestigt, so daß die dünnen Proben auf der Oberfläche des Blocks anliegen. Der Block ist in der Abb. 3.6 gezeigt.

An den Probenpositionen wurde der Aluminium-Block mit 0,2 mm großen Löchern ($350 \text{ Löcher}/\text{cm}^2$) mit Hilfe eines Elektronenstrahlverfahrens perforiert. Mittels eines elektrochemischen Verfahrens wurde auf der Aluminiumoberfläche eine $20 \mu\text{m}$ dicke Al_2O_3 -Oxydschicht gebildet. Diese Isolationsschicht verhindert einen Massekontakt bei der elektrischen Widerstandsmessung der Proben. Durch die Erzeugung eines Unterdrucks auf der Rückseite der Ansaugstellen können die Proben mit einem Anpreßdruck von 600 mBar auf die Oberfläche des Ansaugblocks gedrückt werden. Dadurch wird ein guter thermischer Kontakt der Proben mit dem eloxierten Ansaugblock erreicht.

Die Abbildung 3.6 zeigt in der Mitte des Blocks noch eine By-Pass-Düse, die bei angesaugten Proben den Gasdurchsatz und damit die Druckdifferenz definiert. Ein Kompressor saugt dabei das Helium am Ort des Ansaugblocks aus der Kammer ab.

Abbildung 3.6: Ansaugblock aus Aluminium



Im weiteren Verlauf des Heliumkreises wird das Heliumgas in einer Kühlfalle mit flüssigem Stickstoff gereinigt, um die inerte Eigenschaft des Kühlgases zu gewährleisten und dann wieder in die Kammer zurückgedrückt. Die Einspeisung erfolgt am Ort des Energiedegraderrads und Strahlfensters, um eine zusätzliche Gaskühlung dieser Teile, die dem hochenergetischen α -Strahl direkt ausgesetzt sind, zu erreichen.

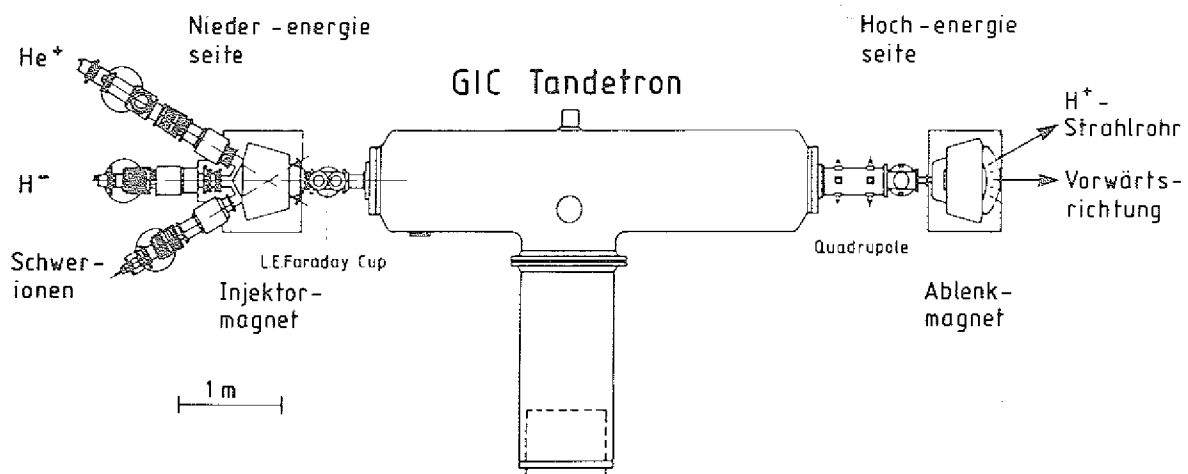
Zusammenfassend hat sich ergeben, daß sich die Proben­temperatur bei Strahlbetrieb nicht um mehr als ca. 100°C erhöht. Damit erfolgt die Implantation bei einer Temperatur $< 130^{\circ}\text{C}$.

3.4. Die Protonenbestrahlung

3.4.1. Bestrahlungsaufbau

Eine schematische Darstellung des Tandembeschleunigers des IFF der KFA Jülich, an dem die Experimente zur bestrahlungsinduzierten Segregation in verdünnten Au-, Cu- und Ag-Legierungen durchgeführt wurden, zeigt nach /3.6/ die Abbildung 3.7.

Abbildung 3.7: Aufsicht des Tandem-Ionenbeschleunigers



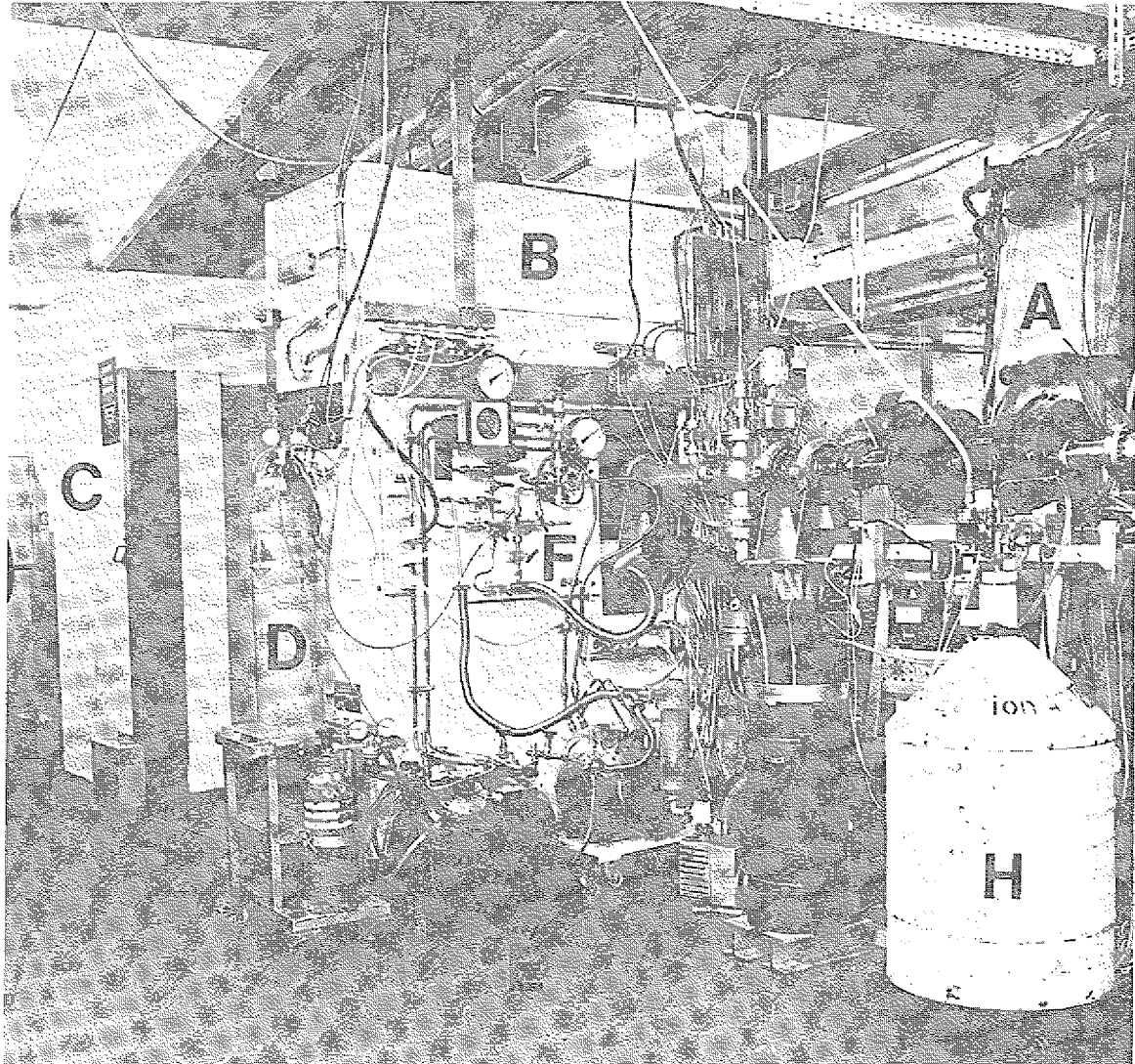
Neben den extern angeordneten Ionenquellen für Helium und Schwerionen werden im Duoplasmatron der Wasserstoffionenquelle aus dem molekularen H_2 -Gas zunächst H^- -Ionen erzeugt, die mit Hilfe einer Vorbeschleunigungsstrecke (ca. 50 kV) in den Tandembeschleuniger injiziert werden. Bis zu der Mitte des Beschleunigers durchlaufen die H^- -Ionen eine Beschleunigerspannung $U = 1,70 \times 10^6$ V. Dort werden mit Hilfe

eines N_2 -Strippergases den H^- -Ionen die zwei Elektronen entzogen; die H^+ -Ionen werden dann bis zum Ende des Tandembeschleunigers ein zweites Mal von der Spannung U beschleunigt. Die erzeugten Protonen (H^+ -Ionen) haben insgesamt eine kinetische Energie $E_p = 3,45$ MeV. Über einen Ablenkmagneten auf der Hochenergieseite des Geräts gelangt der Protonenstrahl schließlich in das Strahlrohr, an dessen Ende die Experimentiereinrichtung aufgebaut ist.

Die Abbildung 3.8 zeigt von der Beschleunigerseite aus gesehen einen Teil des aufgebauten Strahlrohrs (A), sowie den Strahlenschutzbunker (B) aus 50 cm dicken Betonwänden mit einer fahrbaren Rückwand (C), in dessen inneren Bereich die Bestrahlungskammer an das Ende des Strahlrohrs angeflanscht ist. Der Betonbunker dient zur Abschirmung des Bestrahlungsaufbaus während der Bestrahlung, da 3,45 MeV-Protonen sowohl Neutronen als auch γ -Strahlung erzeugen. In der Abbildung 3.8 sind die vor dem Bunker angeordneten Teile für den Gaskreislauf zur Kühlung der Proben und der Aluminiumfenster sichtbar: (D) die Heliumgasflasche (Reinheit 6N), (E) zwei Doppelmembrankompressoren, (F) das Verteilerbrett mit Ventilsystemen als Gasregulierung, (G) die Kühlfälle als Gasreiniger, betrieben mit flüssigem Stickstoff aus dem LN_2 -Behälter (H).

Im Gaskreislauf ist ein hochreiner Eisenfaden ($RRR \approx 100$) eingebaut, der mit einem Strom von ca. 2,5 A geheizt wird. Der Fe-Faden erreicht damit eine Temperatur von etwa $500^\circ C$ und ist bei dieser Temperatur ein effektiver O_2 -Detektor bei Lecks im Inertgaskreislauf. In Folge einer Oxydation des Fe-Fadens würde dessen Widerstand rasch ansteigen.

Abb. 3.8: Strahlrohr und Versuchsaufbau zur Protonenbestrahlung
am Tandembeschleuniger



Am Strahlrohr stehen Steerer, Quadrupolsysteme, Strahlwobbler und Blendensysteme zur Verfügung, um dem Strahlprofil am Ort des Experiments eine definierte Form zu geben. Zur simultanen Bestrahlung der Proben in der Kammer kann der Strahl in einem

Bereich von 4cm mit ca. 60 Hz gewobbelt werden. Beam-scanner, Faraday-becher und Viersektorenblenden stellen unmittelbar hinter dem Ablenkmagnet und vor der Bestrahlungskammer die Strahldiagnostik dar. Im Inneren des Strahlenschutzbunkers tritt der Protonenstrahl durch ein 30 μm dickes Aluminiumstrahlfenster (40 $\times$ 7mm) in die Bestrahlungskammer ein (Abb. 3.9).

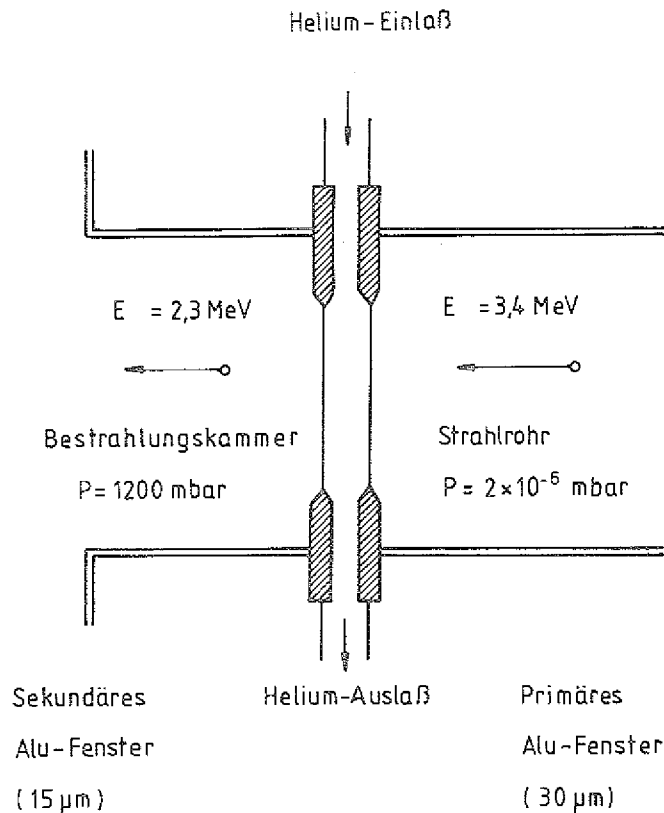
Zwischen dem primären Fenster und einem sekundären 15 μm dicken Aluminium-Fenster (Abstand der Fenster ca. 2mm) wird mit Hilfe eines Kompressors hochreines Heliumgas mit hoher Geschwindigkeit hindurchgeblasen, um bei der hohen Energieabsorption ($I \leq 60 \mu\text{A}/\text{cm}^2 \times \Delta E \approx 0,7 \text{ MeV}$) in dem primären Fenster eine ausreichende Kühlung zu erreichen.

Die gesamte Absorberdicke von ca. 45 μm Aluminium reduziert die Protonenenergie zu $E_p = 2,3 \text{ MeV}$. Für diese Energie zeigt die Tabelle 3.6 die theoretischen Reichweiten R /3.7/ in den verwendeten Metallen.

Tabelle 3.6

Matrix	R [μm] für $E_p=2,3 \text{ MeV}$
Au	18
Cu	22
Ag	22

Abb. 3.9: Aluminium-Doppelfenster zur Trennung der Druckunterschiede des Strahlrohrs und der Bestrahlungskammer

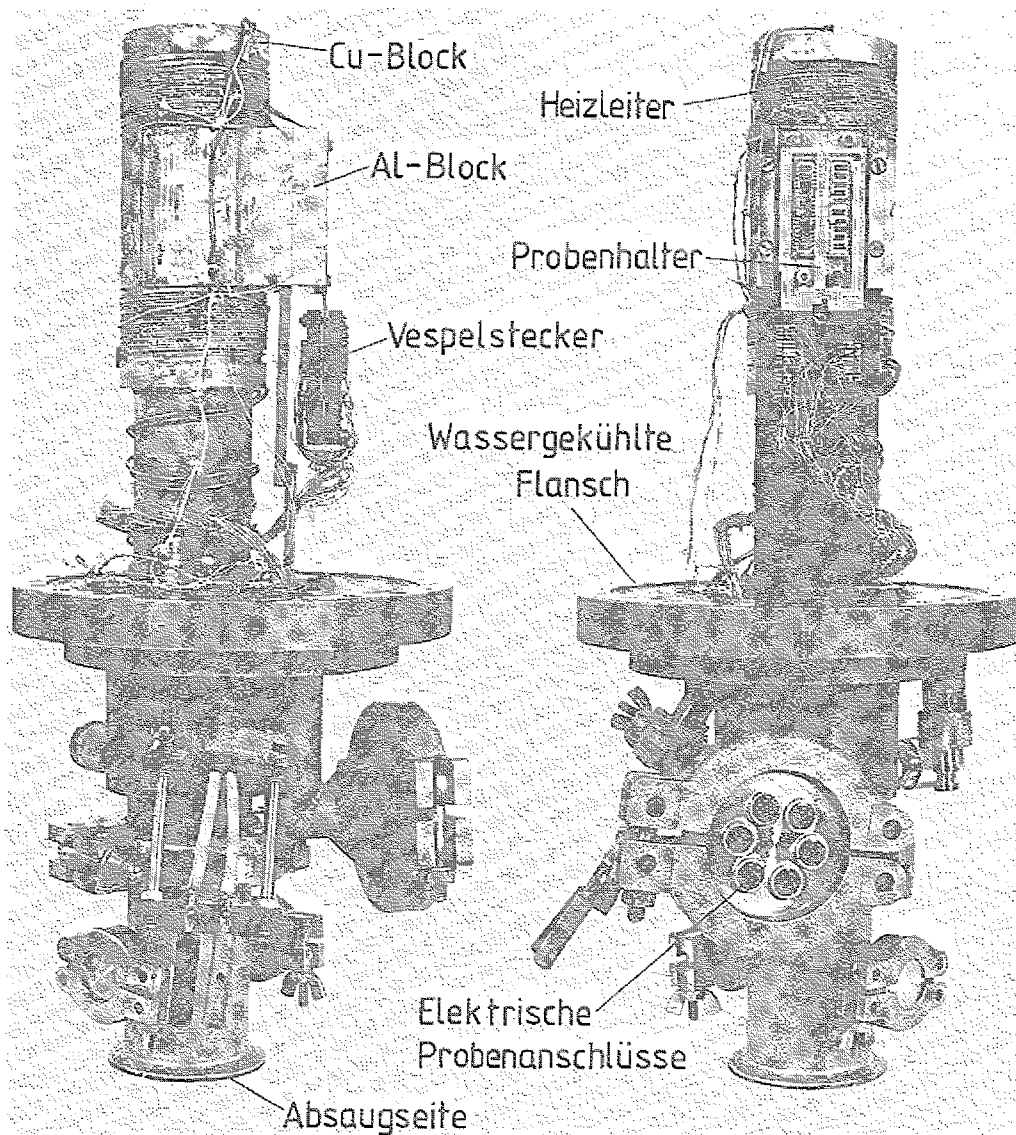


Es ergibt sich daraus, daß für die typische Probendicke $d = 10 \mu\text{m}$ die Reichweite R etwa doppelt so groß ist, so daß die Transmission der Protonen durch die Proben gewährleistet ist: Die Bestrahlung erzeugt ausschließlich Defekte; eine Wasserstoffimplantation wird weitgehend vermieden.

Die Bestrahlungsapparatur am Tandembeschleuniger ist für Bestrahlungstemperaturen zwischen Raumtemperatur und 425°C ausgelegt. Obwohl der Aufbau weitgehend analog zu der Implantationsapparatur ist - d.h. die Kühlung der Proben

erfolgt auch hier durch Ansaugen auf einen eloxierten Ansaugblock - ist der Ansaugblock, um auch höhere Bestrahlungstemperaturen zu erreichen, auf einem heizbaren Cu-Block montiert, als Teil des sogenannten Experimentiereinschubs, der in Abbildung 3.10 gezeigt ist.

Abb. 3.10: Experimentiereinschub für die Protonenbestrahlung



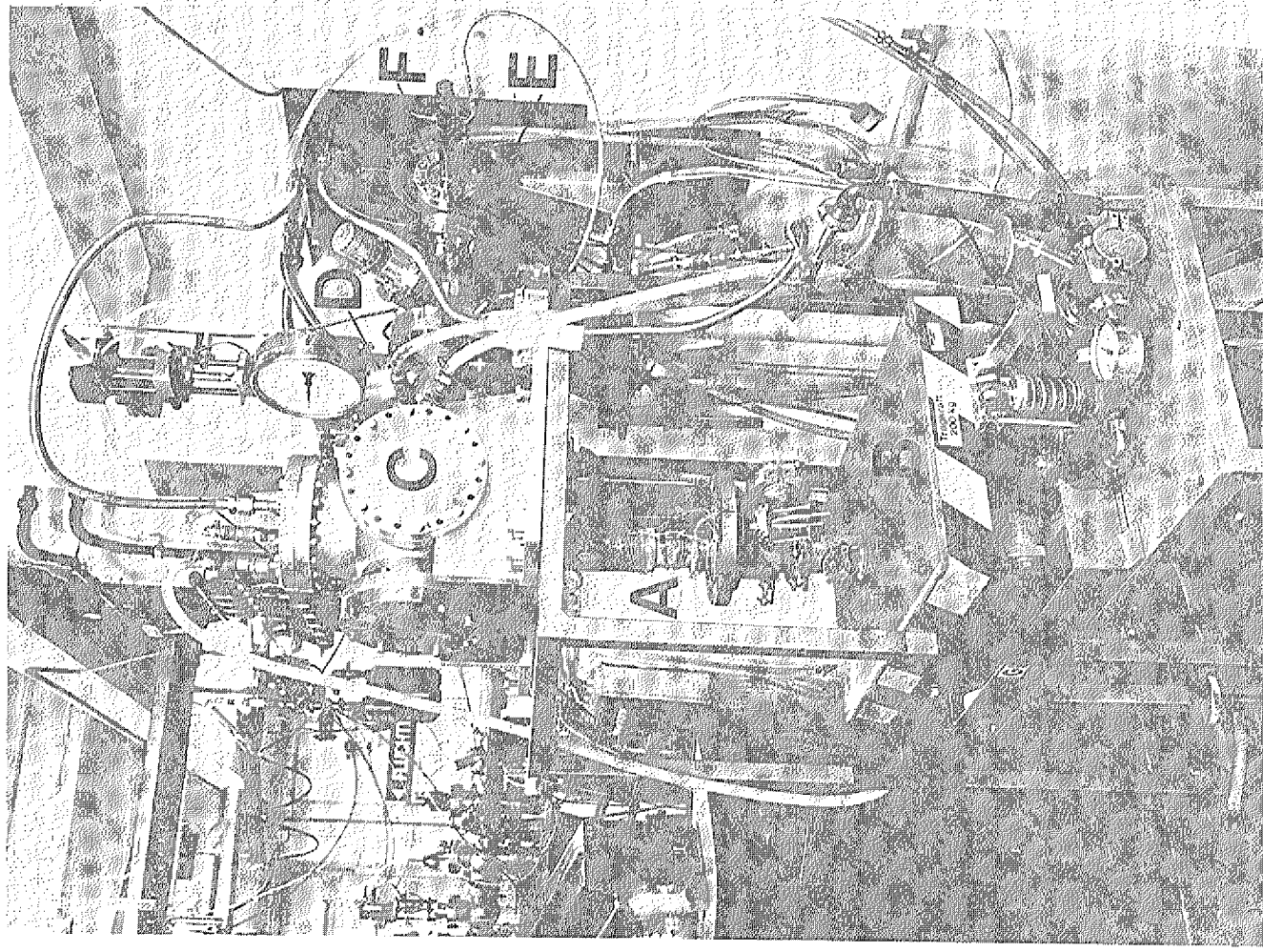
Die Heizung des Cu-Blocks erfolgt mit einem Philips Coax-Heizleiter ($R=12\ \Omega$, $P_{\text{Max}}=3\ \text{kW}$), der bifilar gewickelt in den Cu-Block eingelötet worden ist. Der Regelfühler für die elektrische Heizung ist ein oben im Cu-Block angeordneter Platin-Widerstand. Ein zweiter Platin-Widerstand wurde im Aluminium-Ansaugblock nahe an den Probenpositionen zur Messung der Temperatur dieses Blocks eingebaut.

Der komplette Aufbau sitzt auf einem wassergekühlten Flansch auf dessen Außenseite die elektrischen Anschlüsse für den Heizleiter, die Platinwiderstände und die Potential- und Stromabgriffe der Proben sich befinden. Durch eine Bohrung im Cu-Block wird das Heliumgas zu der Erzeugung eines Unterdruckes auf der Abgasseite an dem unteren Ende des Experimentiereinschubs abgesaugt. Dieses Absaugen erfolgt mit Hilfe eines zweiten Kompressors im Gaskreislaufsystem. Ein Kühlblech aus Kupfer schützt den Vespelstecker des Probenhalters vor Überhitzung.

In Abbildung 3.11 ist der Bestrahlungsaufbau in dem geöffneten Strahlschutzbunker dargestellt.

Der Experimentiereinschub (A) kann mit Hilfe eines hydraulischen Hubtisches (B) in die Bestrahlungskammer (C) gefahren werden. Unmittelbar vor der Kammer befinden sich ein Faradaybecher (D), ein Beam-scanner (E) und eine Viersektorenblende (F) als diagnostisches System für die Einstellung des geforderten Strahlprofils.

Abb. 3.11: Bestrahlungsaufbau für die Protonenbestrahlung im Inneren des Strahlenschutzbunkers im geöffneten Zustand



Außerhalb des Bunkers, im Beschleunigerraum, ist die Messelektronik angeordnet. Die Temperaturen im Kupferblock und im Ansaugblock werden durch Platin-Widerstandsthermometer gemessen. Mit einer Kompensationsschaltung erreicht man eine Temperaturstabilität von $\Delta T < 0,05^\circ\text{C}$ bei Raumtemperatur und $\Delta T < 0,2^\circ\text{C}$ bei 400°C für die Temperatur des Ansaugblocks. Das Aufheizen der Anlage bis 400°C dauert 5 Minuten, das anschließende Abkühlen bei abgeschalteter Heizung braucht etwa 30 Minuten bis auf $T = 30^\circ\text{C}$.

3.4.2. Bestimmung von Defektproduktionsraten und stationären Defektkonzentrationen

Zunächst wird unter der Annahme eines stationären Protonenstrahls die Defekterzeugung und die Einstellung der stationären Defektkonzentrationen diskutiert.

Typische Strahlstromdichten waren $\varphi = 36 \mu\text{A}/\text{cm}^2 = 2,2 \times 10^{14} \text{P}/\text{cm}^2\text{s}$. Mit Hilfe der in /3.8/ tabellierten Werte der Schädigungsraten für Protonen unterschiedlicher Energien erhält man eine Defektproduktionsrate $P_F^* \approx 7 \times 10^{-6} \text{FD/s}$ (bei 4,2 K). Für Au geben die in /3.8/ tabellierten Werte sehr gut die bei einer 20 MeV-Deuteronenbestrahlung bei 4,2 K gemessenen Schädigungsraten wieder /3.9/. Die Schädigungsraten P_F^* variieren leicht für Au, Cu und Ag und hängen auch etwas von der mittleren Energie $\bar{E}_p$ der Protonen (und damit von der Probendicke) ab. Diese Variation beträgt weniger als 15% und wird deshalb für die folgenden Abschätzungen vernachlässigt.

Um eine Aussage über die freiwandernden Defekte zu bekommen, muß der Bruchteil der Frenkeldefekte bekannt sein, der der

korrelierten Rekombination entkommt. Für Elektronenbestrahlungen, wo nur einzelne FD-Paare gebildet werden, kann dieser Bruchteil aus Erholungsmessungen nach Tieftemperaturbestrahlungen abgeschätzt werden. Er beträgt etwa 0,3 für Cu /3.10/ und Ag /3.11/ und 0,8 für Au /3.12/. Da bei der Protonenbestrahlung zum Teil Defekte in kleinen Kaskaden erzeugt werden, ist für die Zahl der freiwandernden ZGA die Entkommwahrscheinlichkeit aus dem Kaskadengebiet maßgeblich. Diese kann nicht wie bei Elektronenbestrahlungen aus den entsprechenden Erholungskurven abgeleitet werden, da innerhalb der Kaskade ZGA-Agglomeration stattfindet, was die Zahl der freiwandernden Defekte reduziert aber nicht zur Widerstandserholung beiträgt. Aus einer Analyse der Entmischungseffektivität von NiSi bei Elektronen- und Protonenbestrahlung /3.14/ ergab sich einen um den Faktor 2 reduzierten Bruchteil der freiwandernden ZGA bei Protonenbestrahlungen gegenüber dem der Elektronenbestrahlung.

Der sich so ergebende Bruchteil der Produktionsrate p_F^* (der erzeugten Defekte bei 4,2 K), der für frei wandernde Defekte zur Verfügung steht, ist zusammen mit der mittleren Protonenenergie $\bar{E}_p$ [MeV] in Tabelle 3.7 für Au, Cu und Ag eingetragen.

Da in den Modellvorstellungen zum bestrahlungsinduzierten FA-Transport quasi-stationäre Bedingungen der Defektströme vorausgesetzt wurden (Gln.(2.22)), soll die Aufbauzeit der Defektkonzentrationen in der Au-Matrix betrachtet werden.

Auf Grund der Diskussion in Kap. 2 bestimmt die Laufzeit der am langsamsten beweglichen Defekte zu den am weitesten entfernten Senken für den senkendominanten Fall die Aufbauzeit für das Erreichen der quasi-stationären Bedingungen.

Tabelle 3.7: Defektproduktion bei $\varphi = 2,2 \cdot 10^{14} \text{ p/cm}^2\text{s}$

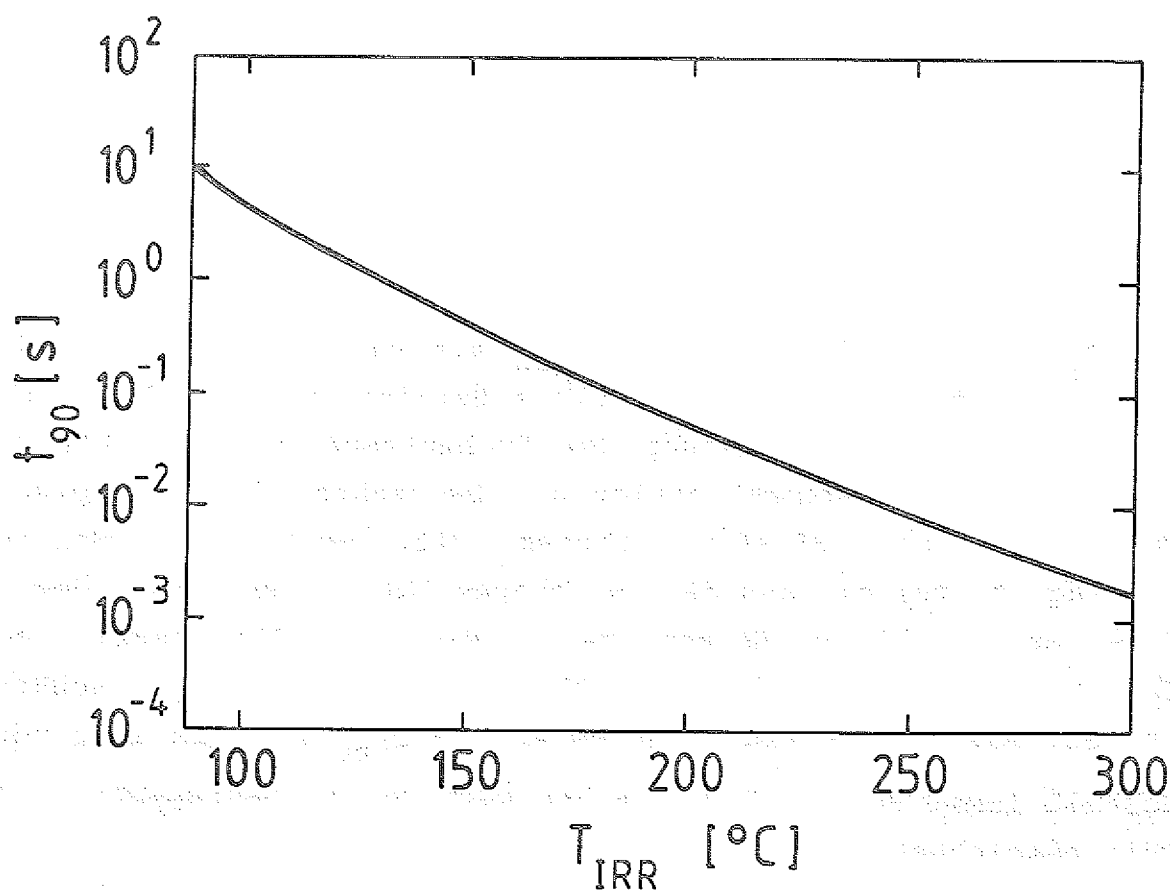
Matrix	Au	Cu	Ag
$\bar{E}_p \text{ [MeV]}$	1,8	1,9	1,9
$\sigma_D [10^{-20} \text{ cm}^2]$	3	4	3
$p_F^* \text{ [FD/s]}$ (der erzeugten Defekte bei 4,2 K)	7×10^{-6}	9×10^{-6}	7×10^{-6}
$\frac{p_F}{p_F^*}$	0,40	0,15	0,15
$p_F \text{ [FD/s]}$ (der freiwandernden Defekte)	3×10^{-6}	1×10^{-6}	1×10^{-6}

Die Aufbauzeit t_{90} für 90% des stationären Wertes läßt sich somit angeben zu $t_{90} \approx 10 \cdot (\nu \cdot c_B')^{-1}$, wobei ν die Sprungfrequenz des langsamsten Defekts ist. Unter der Annahme, daß dies die LS sind, erhält man für Au mit den Werten aus Tab. 2.2 den in Abbildung 3.12 dargestellten Verlauf. Unterhalb 90 °C gilt keine Senkendominanz und oberhalb 300°C dominieren die thermischen LS. Die quasi-stationäre LS-Konzentration wird im dazwischenliegenden Temperaturbereich innerhalb von Sekunden erreicht.

Diese Aufbauzeit ist somit gering im Vergleich zu den darauffolgenden Bestrahlungszeiten, in denen die Quasi-Stationarität offenbar gewährleistet ist.

Da die Untersuchungen zur bestrahlungsinduzierten Entmischung im Wobblebetrieb durchgeführt wurden, soll im folgenden der Einfluß des Wobbelns diskutiert werden.

Abb. 3.12: Aufbauzeit t_{90} zum Erreichen von 90 % der stationären LS-Konzentration als Funktion der Bestrahlungstemperatur



Eine Protonenbestrahlung im Wobblebetrieb bedeutet für die einzelne Probe eine Pulsbestrahlung. Für einen 1 cm^2 großen Protonenstrahl, der mit einer Frequenz $f = 60 \text{ Hz}$ in einem Bereich von 4 cm über die zehn bestrahlten Proben hin- und hergewobbelt wird, läßt sich der zeitliche Verlauf der Strahlstromdichte $\varphi(t)$, der Probentemperaturerhöhung $\Delta T(t)$ sowie der Defektkonzentrationen $c_i(t)$ und $c_v(t)$ für eine Probe in der Mitte des Probenhalters angeben (Abb. 3.13 a-e).

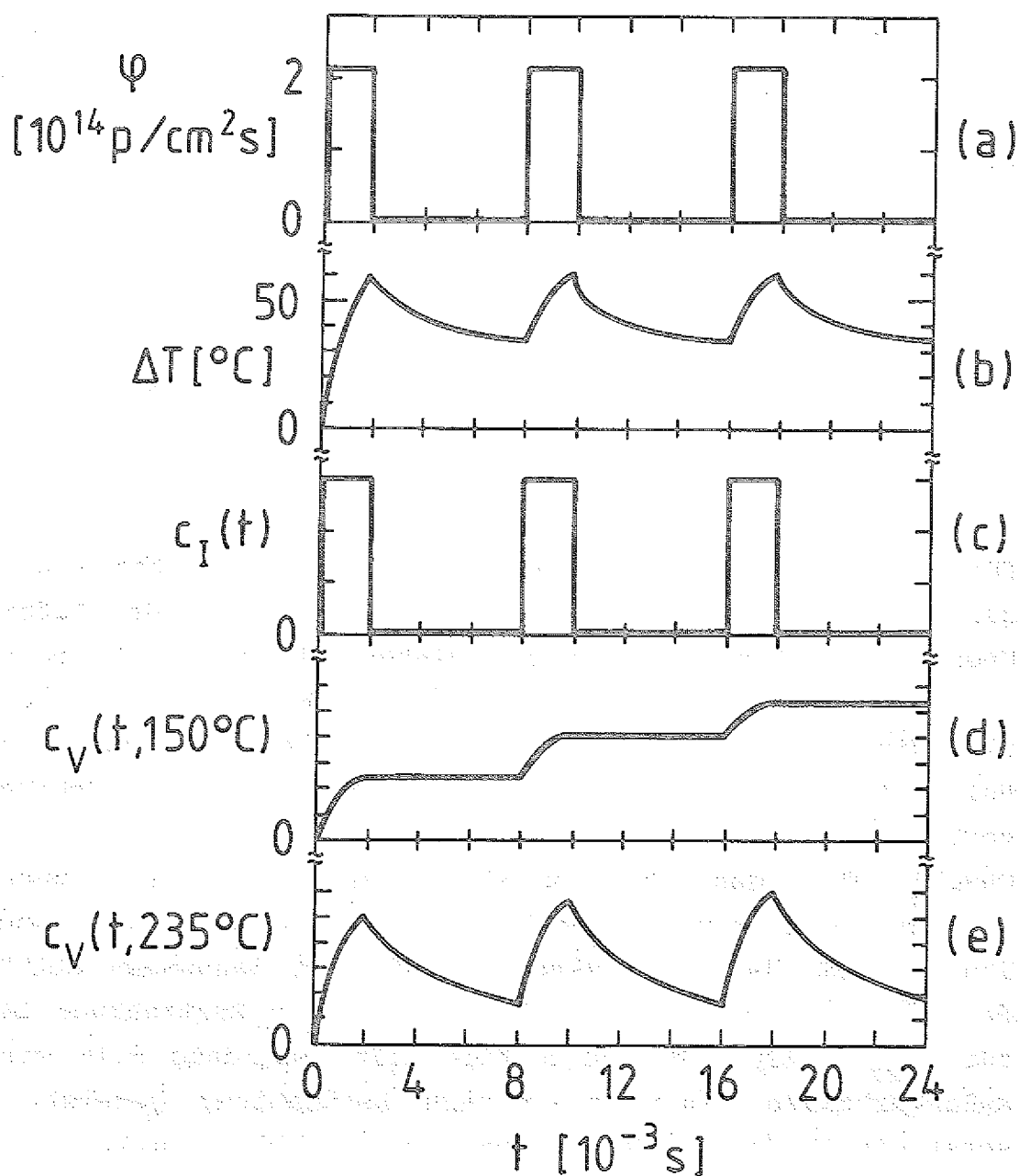
Das Verhältnis von Pulsdauer zu Pulspause ist etwa 1:3. Zu Anfang der Bestrahlung ($t=0$) steigt die Temperaturerhöhung ΔT durch den Strahl im Puls an. Im stationären Betrieb wird (mit $\varphi = 36 \mu\text{A}/\text{cm}^2$) eine typische Temperaturerhöhung $\Delta T \approx 130\text{-}150^\circ\text{C}$ in ca. 1 sec erreicht. Daraus läßt sich ein typischer Wärmeübergang von der Probe zum Aluminium-Block von ca. $0,25 \text{ W}/\text{cm}^2 \cdot \text{K}$ abschätzen. Im Pulsbetrieb gilt jedoch

$$\varphi_{\text{eff}} = \varphi_{\text{puls}} \cdot \frac{t_{\text{puls}}}{t_{\text{puls}} + t_{\text{pause}}} \approx \frac{1}{4} \cdot \varphi_{\text{puls}} \quad (3.7)$$

mit t_{puls} als Pulszeit und t_{pause} als die Zeit zwischen den Pulsen. Deshalb fällt die mittlere Heizleistung der Probe und damit die mittlere Erhöhung der Probentemperatur auf $1/4$ des Wertes bei stationärem Betrieb ab. Beobachtet wurden typische Werte von ca. $35\text{-}40^\circ\text{C}$. Diesem Mittelwert sind Spitzen überlagert, für die aus der Wärmekapazität der Probe und der im Puls aufgenommenen Wärmemenge, sowie der Abklingzeit der Temperatur in der Pulspause, Werte von ca. 20°C abgeschätzt wurden. Als die Bestrahlungstemperatur T_{irr} wird im folgenden deshalb immer der um 40°C erhöhte Wert der Probentemperatur im Puls bezeichnet.

Abb. 3.13: Zeitliche Entwicklung im Wobblebetrieb für

- (a) die Strahlstromdichte $\varphi(t)$,
 (b) die Probentemperaturerhöhung $\Delta T(t)$,
 (c) $c_I(t)$, (d) $c_V(t, 150^\circ\text{C})$ und (e) $c_V(t, 235^\circ\text{C})$



Die ZGA-Beweglichkeit ist so groß, daß $c_I(t)$ praktisch dem Puls instantan folgt (Abb. 3.13-c). Da sich die LS-Beweglichkeit v_v im Bereich $50^\circ\text{C} \leq T_{\text{irr}} \leq 300^\circ\text{C}$ stark ändert, muß der Aufbau von $c_v(t)$ in verschiedenen Temperaturbereichen diskutiert werden.

Bei $T_{\text{irr}} \leq 200^\circ\text{C}$ ist v_v so klein, daß $c_v(t)$ zwischen den Pulsen praktisch nicht abfällt. Für den in Abb. 3.13-d skizzierten Verlauf bei $T_{\text{irr}} = 150^\circ\text{C}$ ist die Abnahme von $c_v(t)$ in der Pulspause kleiner als 4%. Abgesehen von der etwas längeren Aufbauzeit unterscheidet sich der Wobblebetrieb in diesem Temperaturbereich nicht von einer stationären Bestrahlung mit $\varphi_{\text{stat}} = \varphi_{\text{eff}}$.

Im Bereich von $200^\circ\text{C} \leq T_{\text{irr}} \leq 300^\circ\text{C}$ fällt $c_v(t)$ aufgrund der hohen LS-Beweglichkeit zwischen den Pulsen stark ab.

Für $T_{\text{irr}} = 235^\circ\text{C}$ ergibt sich eine Abnahme von ca. 65% (Abb. 3.13-e).

Für $T > 300^\circ\text{C}$ ist $c_v(t)$ praktisch durch die thermischen LS gegeben, so daß sich die geringe Erhöhung durch den Aufbau der Überschuß-LS-Konzentration im Pulsbetrieb nicht mehr bemerkbar macht. Im Temperaturbereich der thermischen LS ($T > 300^\circ\text{C}$), ist allerdings zu berücksichtigen, daß die Rücklösung in den Pulspausen weiterläuft und die Ergebnisse zur Segregation verfälscht.

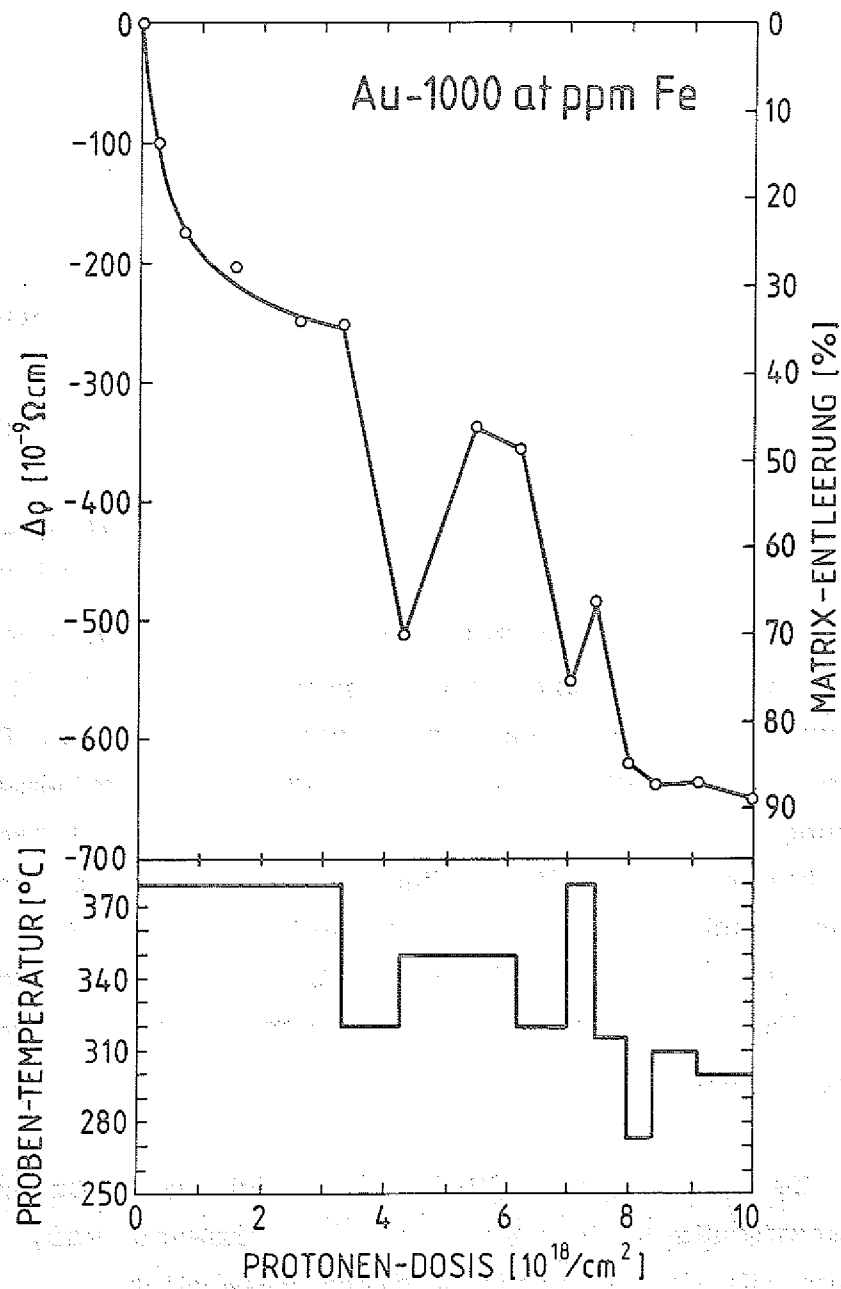
Obwohl für den Pulsbetrieb diese Rücklösung nach den Abschätzungen erst oberhalb von 300°C wichtig ist, muß man ähnliche Rücklösungseffekte aufgrund der langsamen Abkühlrate der Apparatur (30 min) nach Abschluß der Bestrahlung bereits für $T_{\text{irr}} > 220^\circ\text{C}$ berücksichtigen (In Abbildung 5.16 wird das Anlaßverhalten einer Probe nach Bestrahlung gezeigt. Dabei setzt die thermische Rücklösung bei ca. 220°C ein.).

Um diesen Einfluß zu testen, wurden kontinuierliche Bestrahlungen mit einem stationären (nicht gewobbelten) Protonenstrahl an einer Au-1000 atppm Fe Probe durchgeführt. Die Probentemperatur durch Strahlheizung erhöhte sich unter diesen Strahlbedingungen um $\Delta T \approx 150^\circ\text{C}$. Beim Abschalten der Bestrahlung sinkt die Probentemperatur innerhalb von 1-2 Sekunden um mehr als 100°C ab. Die bestrahlungsinduzierte Entleerung der Matrix wird dadurch eingeschreckt. Solange Senkendominanz für die Defektreaktion gewährleistet bleibt, sind Wobbelbestrahlungen (mit φ_{eff}) gleichwertig mit kontinuierlichen Bestrahlungen (mit $\varphi_{\text{stat}} = \varphi_{\text{eff}}$).

Die Abbildung 3.14 zeigt die Widerstandsänderung und die Probentemperatur als Funktion der Bestrahlungsdosis. Im Dosisbereich $\phi = 0-3,3 \times 10^{18} \text{ p/cm}^2$ bei $T_{\text{irr}} = 380^\circ\text{C}$ steigt die Matrixentleerung auf $M = 34\%$ an (zur Definition von M siehe Glg. (5.2)). Anschließend wurde die Dosisleistung verringert, was gleichzeitig eine Verringerung der Bestrahlungstemperatur auf 320°C bedingt. Die Entleerung erreichte den Wert $M = 70\%$. Erhöht man die Bestrahlungstemperatur auf 350°C , nimmt die Entleerung trotz weiterer Bestrahlung wieder ab. Daraus folgt, daß bei dieser höheren Bestrahlungstemperatur die Rücklösungsrate effizienter ist als die Segregationsrate. Darüber hinaus zeigt das Verhalten beim thermischen Zykeln, daß der thermische Gleichgewichtszustand bei der Bestrahlung erreicht wurde. Ähnlich verhält sich der Widerstand bei weiteren Wechseln der Bestrahlungstemperatur im Dosisbereich $\phi > 6,3 \times 10^{18} \text{ p/cm}^2$.

Da die Temperaturkontrolle auf Grund der Strahlschwankungen unter stationären Bedingungen sehr ungenau war, wurden diese Messungen für die Auswertung nicht verwendet.

Abb. 3.14: Experimentell erreichte Matrixentleerungen einer Au-1000 atppm Fe-Probe unter kontinuierlichen Bestrahlungsbedingungen bei verschiedenen Probentemperaturen



Es deutet sich aber an, daß die Segregation bis zu Temperaturen beobachtet wird, die im Wobblebetrieb wegen den genannten langen Abkühlzeiten nicht beobachtet werden.

4. Mikrostrukturelle Entwicklung in den mit Helium implantierten reinen Metallen Au, Cu und Ag

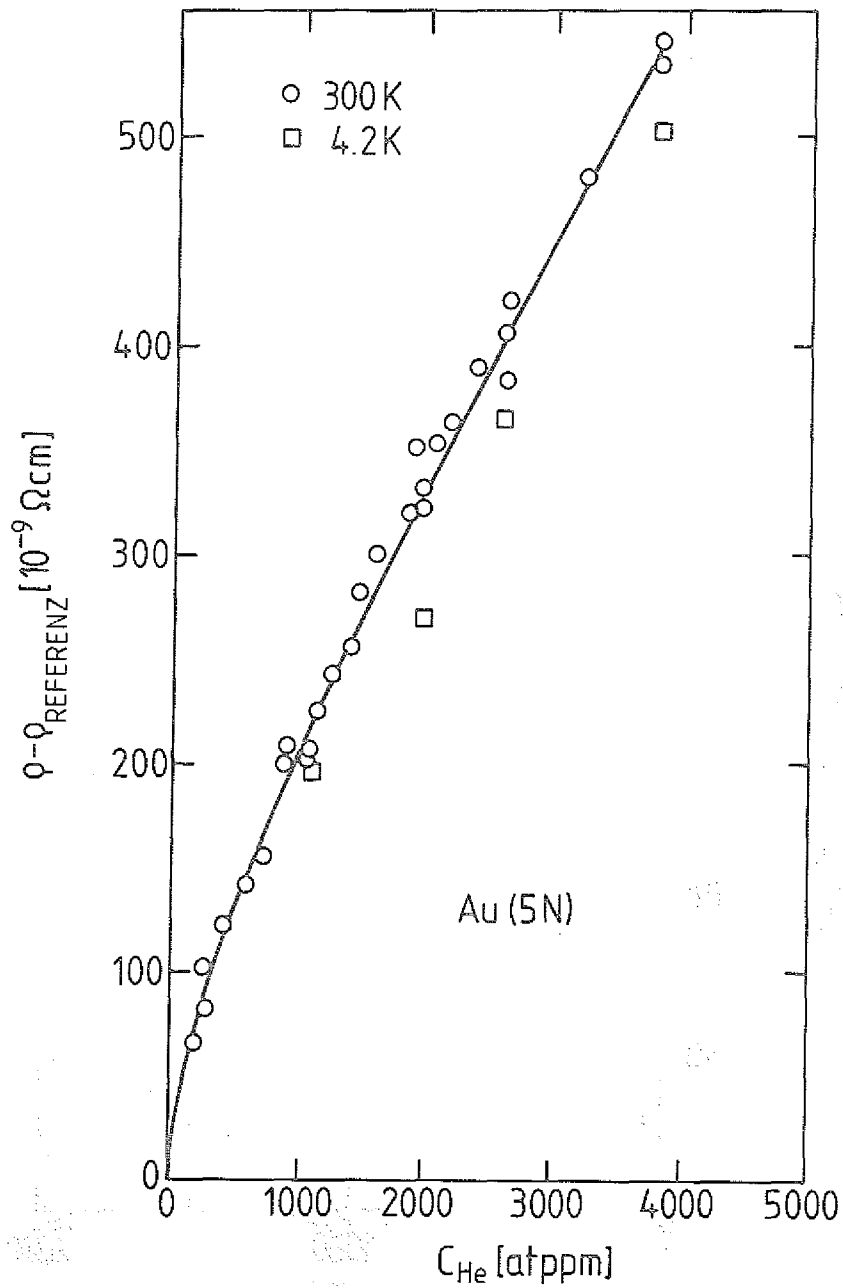
In diesem Kapitel wird die mikrostrukturelle Entwicklung bei der Implantation von Au, Cu und Ag beschrieben. Die Untersuchungen an diesen Systemen wurden zur Charakterisierung der Senkenstruktur für die Segregationsexperimente durchgeführt. Die Widerstandsmessungen an diesen reinen Metallen, sowohl bei der Bestrahlung als auch im anschließenden Anlaßprogramm, stellen aber eigenständige Ergebnisse dar und werden unter Berücksichtigung elektronenmikroskopischer Untersuchungen /4.1/ diskutiert.

4.1. Die Heliumimplantation

An hochreinen Au(5N)-Proben mit unterschiedlichen Heliumkonzentrationen bis 3800 atppm Helium wurden sowohl bei $T=300$ K als auch bei $T=4,2$ K Widerstandsmessungen durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Abb. 4.1 gezeigt. Die maximale Heliumkonzentration c_{He} der Proben wurde mit Hilfe der thermischen Desorptionsspektroskopie /4.2/ ermittelt. Es zeigt sich eine gute Übereinstimmung der Ergebnisse bei den verschiedenen Meßtemperaturen. Dies deutet an, daß die Proben homogen implantiert wurden, denn bei inhomogener Implantation würde man bei der 4,2 K-Messung Kurzschlußbrücken in der Probe erwarten /4.3/.

Der so ermittelte Verlauf der Widerstandszunahme als Funktion von c_{He} kann bei den weiteren Experimenten zur Bestimmung der Heliumkonzentration in Au mittels $\Delta\rho$ verwendet werden. Auf ähnlicher Art wurden für Cu(6N) und Ag(6N) die Widerstandsänderung als Funktion von c_{He} bestimmt (Abb. 4.2 bzw. 4.3). Auch für Cu und Ag stimmten die Tieftemperaturmessungen mit der Raumtemperaturmessung überein.

Abb. 4.1: Bestrahlungsinduzierte Widerstandsänderung in Au(5N) als Funktion der Heliumkonzentration c_{He} bei der Implantation



und sind deshalb nicht mehr aufgetragen. Es ergibt sich für alle Systeme eine leicht gekrümmte Kurve. Für Cu und Ag läßt sich der Anstieg innerhalb der Fehler durch eine Gerade annähern.

Abb. 4.2: Bestrahlungsinduzierte Widerstandsänderung in Cu(6N) als Funktion der Heliumkonzentration c_{He} bei der Implantation

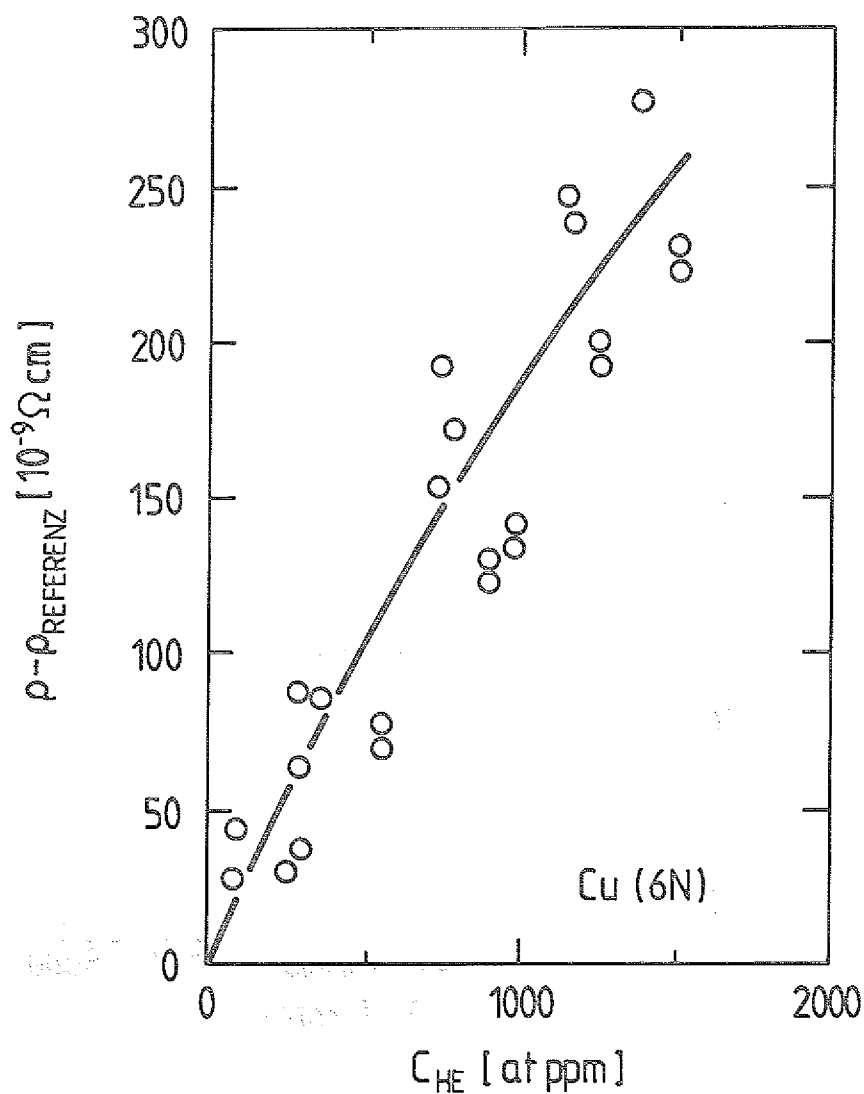
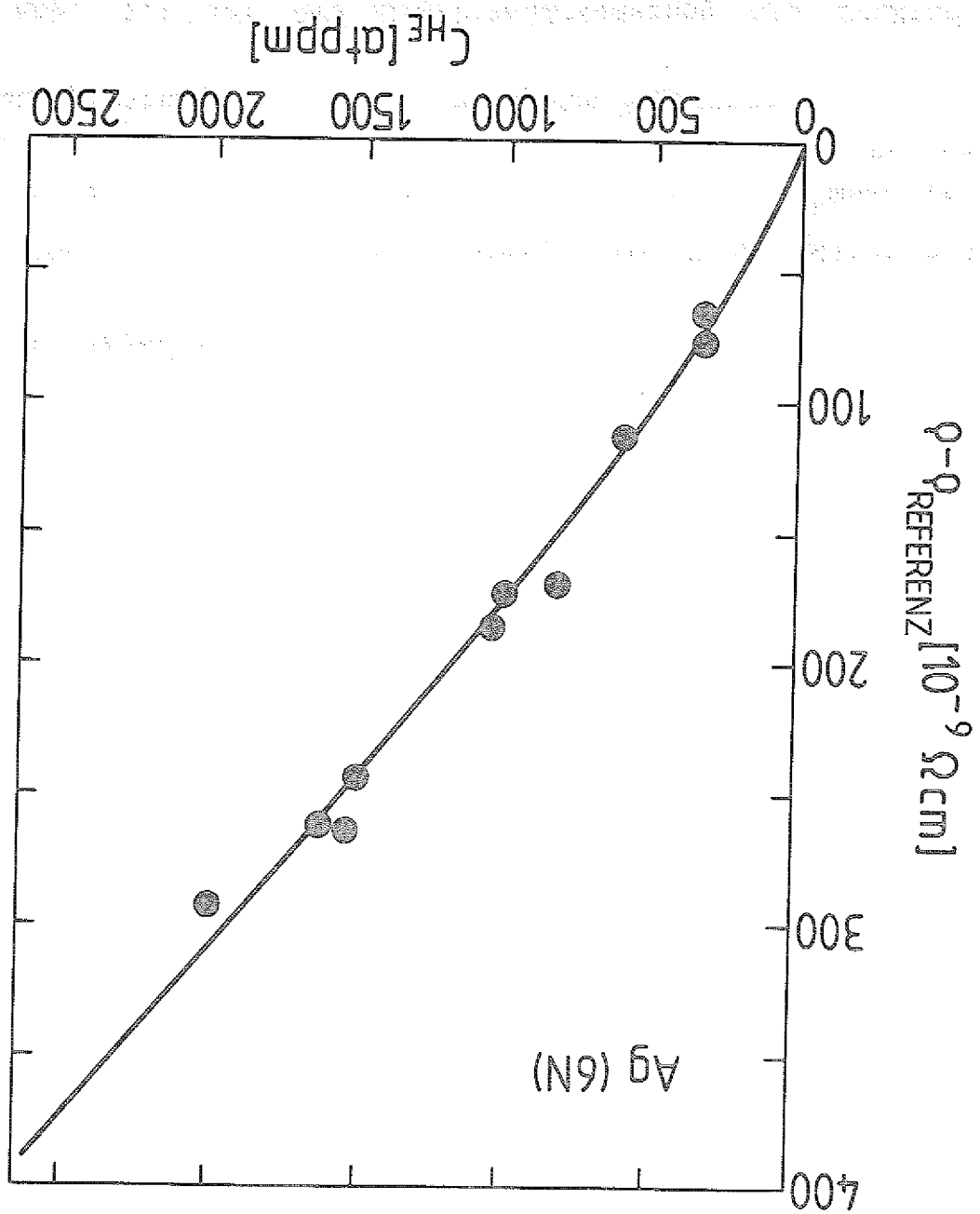


Abb. 4.3: Bestrahlungsinduzierte Widerstandsänderung in Ag(6N) als Funktion der Heliumkonzentration c_{He} bei der Implantation



Dies gibt einen spezifischen Widerstandsanstieg ρ_{He} [$\mu\Omega\text{cm/at}\%\text{He}$] wie in Tabelle 4.1 dargestellt. Bei Au sind für $c_{\text{He}} > 500$ atppm die Abweichungen der Steigung von der Anfangssteigung groß. In der Tabelle 4.1 sind für Au deshalb zwei Werte für die Steigung angegeben. Die Werte für Au und Cu stimmen mit den Literaturdaten unter vergleichbaren Bedingungen /4.1, 4.3/ überein.

Tabelle 4.1: Spezifische Widerstandszunahme bei der He-implantation von Au, Cu und Ag

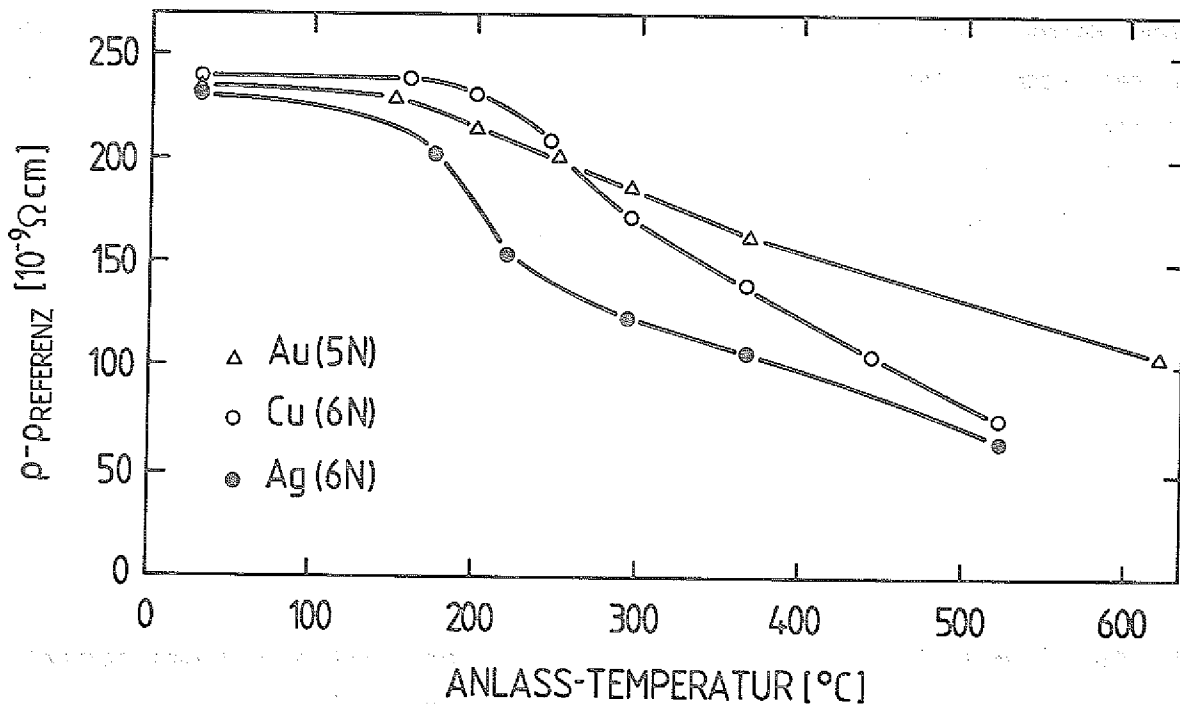
Matrix	$c_{\text{He}}^{\text{Max}}$ [atppm]	ρ_{He} [$\mu\Omega\text{cm/at } \%\text{He}$]
Au	0-500	2,5
	2000-3000	1,2
Cu	1500	1,9
Ag	2000	1,6

4.2. Anlaßverhalten

Nach der Heliumimplantation wurden die Probenhalter mit den bestrahlten Proben in einem Quarzrohr bei 4×10^{-6} mBar isochron (Anlaßzeit $t_A = 1\text{h}$) getempert. Das Abkühlen der Proben auf Raumtemperatur erfolgte innerhalb von 5 Minuten.

In Abb. 4.4 ist die Widerstandsänderung als Funktion der Anlasstemperatur für hochreines Au ($c_{\text{He}} = 1300$ atppm He), Ag ($c_{\text{He}} = 1400$ atppm He), und Cu ($c_{\text{He}} = 1400$ atppm He) aufgetragen.

Abb. 4.4: Erholung der bestrahlungsinduzierten Widerstandsänderung in Au(5N), Cu(6N) und Ag(6N) als Funktion der Anlaßtemperatur nach der Implantation



In der Tabelle 4.2 sind für diese Systeme die maximale Anlasstemperatur T_A^{Max} und die dazu gehörige Widerstandsänderung ($\rho - \rho_{\text{Referenz}}$) aufgetragen.

Bei den Kurven für Cu und Ag sieht man eine ausgeprägte Erholungsstufe im Temperaturbereich 200-300 $^{\circ}\text{C}$, die in etwa der Temperaturlage für die Erholungsstufe V nach Tieftemperaturbestrahlung mit Elektronen entspricht. In Au ist eine ausgeprägte Erholungsstufe nicht zu erkennen, sondern nur eine monotone Abnahme des Widerstands oberhalb 200 $^{\circ}\text{C}$.

Außerdem ist die relative Erholung für Au mit 55%, trotz höherer T_A^{Max} geringer als für Cu und Ag (beide erholen ca. 70%).

4.3. Diskussion der eingestellten Senkenstruktur

Durch die Implantation von Helium in Au, Cu und Ag werden neben dem Einbau von Heliumatomen gleichzeitig Strahlschäden in der jeweiligen Matrix erzeugt. Insbesondere liegen nach der Implantation von 1500-2000 atppm He zwar noch keine im TEM sichtbaren Heliumblasen vor /4.1/ (Auflösungsvermögen 1,0 nm), wohl aber Stapelfehlertetraeder und Versetzungsringe in hoher Dichte (s. Abb. 4.5).

Beim thermischen Anlassen der implantierten Proben lösen sich zunächst Stapelfehlertetraeder und Versetzungsringe teilweise auf. Bei etwas höherem Tempern (in Au, Cu und Ag ab 450 °C, 500 °C und 530 °C) beobachtet man dann Blasenwachstum (Abb. 4.6).

In Tabelle 4.2 sind die Daten der Mikrostruktur zusammengefaßt, die bei der maximalen Anlaßtemperatur T_A^{Max} erhalten wurden. Die Dichte der Stapelfehlertetraeder ρ_{SFT} und Versetzungsringe ρ_{VR} ist gering. Die wichtigsten Senken sind die Heliumblasen mit einer mittleren Konzentration $\bar{c}_B$ von $1-2 \times 10^{17}/\text{cm}^3$ und einem mittleren Radius $\bar{r}_B$ von $11-12 \times 10^{-8} \text{ cm}$ für Au, Cu und Ag. Mit Hilfe dieser Daten kann die LS-Konzentration c_v , die in den Blasen enthalten ist, berechnet werden.

Unter der Voraussetzung, daß das gesamte Helium in den sichtbaren Blasen enthalten ist, erhält man das Verhältnis c_{He}/c_v als Maß für die Heliumdichte in den Blasen und daraus, mittels der Zustandsgleichung nach /4.4/, einen mittleren Blasendruck p_B bei der Anlaßtemperatur.

Abb. 4.5: Mikrostruktur einer Au(5N)-Probe nach Heliumimplantation. Die Markierungen zeigen Beispiele für Kontraste von Versetzungsringen (O), Stapelfehler-tetraedern (Δ) und Versetzungen ($\uparrow$). (Abbildung entnommen aus /4.1/)

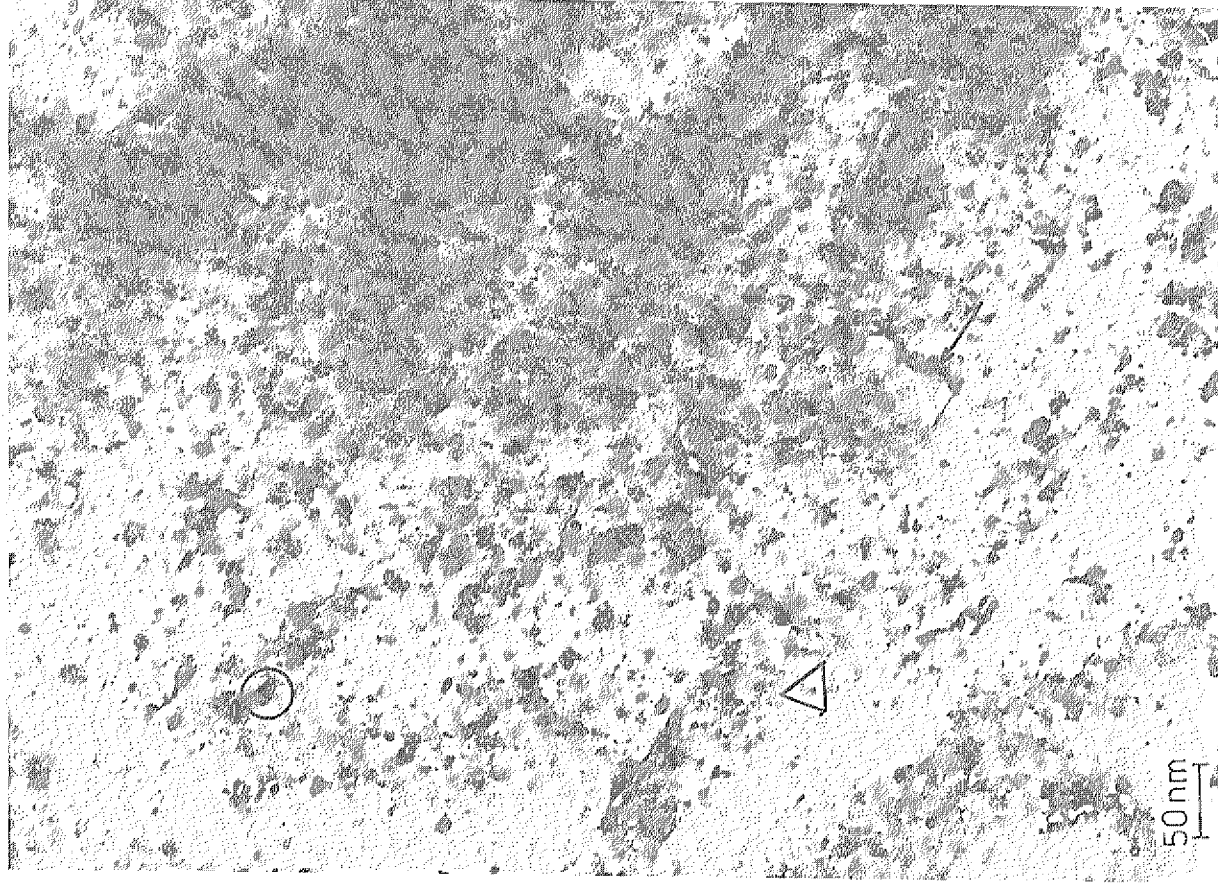
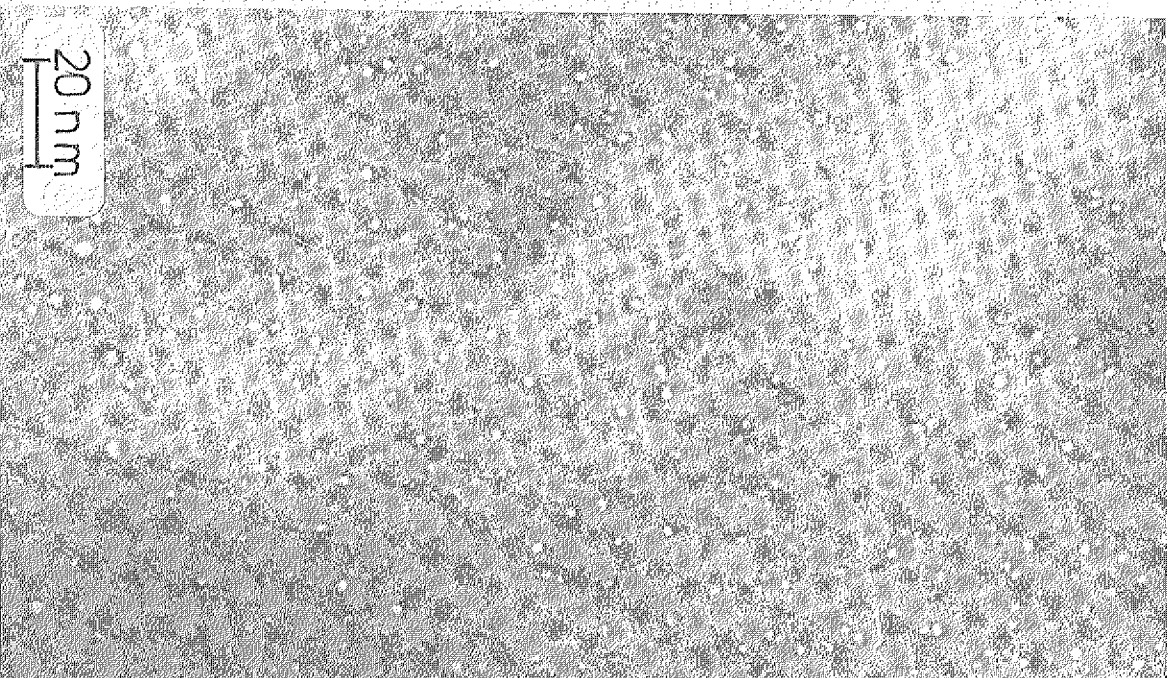


Abb. 4.6 : Mikrostruktur einer Au(5N)-Probe nach dem thermischen Anlassen bis 600 °C.
Deutlich sind die Heliumblasen sichtbar.
(Abbildung entnommen aus /4.1/)



Die so ermittelten Werte für p_B können mit dem Gleichgewichtsdruck $p_B^{eq} = \frac{2\gamma}{r_B}$ der beobachteten Blasen verglichen werden. Dabei ist γ die Oberflächenenergie. Sie wurden aus der Literatur entnommen /4.5/ und ebenfalls in Tabelle 4.2 eingetragen.

Für Au unterscheiden sich die Drücke um einen Faktor zwei, was im Rahmen der Meßgenauigkeiten in /4.1/ als gut übereinstimmend gewertet werden kann.

Bei dem Ag zeigt sich eine deutliche Diskrepanz von etwa einem Faktor 20 in den Angaben für p_B^{eq} und p_B . Man muß daraus schließen, daß ein wesentlicher Teil der He-LS-Agglomerate noch unsichtbar ist. Höheres Tempern wäre erforderlich um eine wohldefinierte Blasenstruktur einzustellen, was aber im Ag schwierig ist, da die Blasen durch Koagulation sehr schnell wachsen, so daß dann keine hohe Senkendichte erreicht werden kann.

Für Cu zeigt die Tabelle 4.2 im Rahmen der Genauigkeit zwar eine gute Übereinstimmung von p_B^{eq} mit p_B ; diese Übereinstimmung scheint jedoch zufällig, da in anderen Arbeiten /4.1, 4.3/ für He-implantiertes Cu beobachtet wurde, daß sich p_B^{eq} erst oberhalb von 720°C einstellt. Dies bedeutet, daß man vermutlich auch Cu bei höheren Temperaturen anlassen müßte, um bei nachfolgender Protonenbestrahlung eine stabile Blasenstruktur zu erreichen.

Neben den in der Tabelle 4.2 aufgeführten Senken lag in allen Systemen eine praktisch temperaturunabhängige Versetzungsdichte $\rho_{disl} \approx 10^{10}/\text{cm}^2$ vor, in Übereinstimmung mit den Literaturdaten für Cu /4.3/.

Tabelle 4.2: Daten zu der Mikrostruktur in Au, Cu und Ag nach der He-Implantation und dem thermischen Anlassen

Matrix	$T_{\text{Max}}^{\text{A}} [^{\circ}\text{C}]$	$c_{\text{He}} [\text{atpm}]$	$(p - p_{\text{REF}}) [10^{-9} \text{ cm}]$	$p_{\text{SFT}} [\text{cm}^{-3}]$	$p_{\text{VR}} [\text{cm}^{-3}]$	Heliumblasen	$c_{\text{B}} [\text{cm}^{-3}]$	$\bar{r}_{\text{B}} [\text{cm}]$	c_{V}	$c_{\text{He}}/c_{\text{V}}$	$p_{\text{B}} [\text{kBar}]$	$p_{\text{eq}}^{\text{B}} [\text{kBar}]$	$\gamma [10^{-3} \text{ J/m}^2]$
Au	610 ± 10	1300	106	8×10^{14}	$< 1 \times 10^{14}$	2×10^{17}	1×10^{17}	11×10^{-8}	$1,1 \times 10^{-3}$	1,3	55	22	1232
Ag	520 ± 10	1400	74	1×10^{14}	$< 1 \times 10^{14}$	1×10^{17}	1×10^{17}	12×10^{-8}	$8,2 \times 10^{-4}$	1,8	248	14	898
Cu	520 ± 10	1400	64	1×10^{15}	$< 1 \times 10^{14}$	1×10^{17}	1×10^{17}	12×10^{-8}	$6,4 \times 10^{-4}$	2,4	61	27	1581

Nach /4.6/ läßt sich der Wert der Senkenstärke c'_{disl} bei gegebener Versetzungsdichte in den Proben zu $\rho_{\text{disl}} \approx 10^{10}/\text{cm}^2$ abschätzen ($k_N^2 \approx \rho_{\text{disl}}$). Für die hier benutzten Einheiten ergibt sich eine Senkenstärke $c'_{\text{disl}} = k_N^2 \cdot \frac{\Omega}{4\pi \cdot r_s} \approx 0,08 \cdot c'_B$.

Die Senkenstärke der Versetzungen ist somit gering im Vergleich zu der Senkenstärke der Blasen, so daß man trotz der hier vorliegenden hohen Versetzungsdichte die Blasen als die dominierenden Senken betrachten kann.

TEM-Untersuchungen an Au-1000 atppm V /4.1/ ergaben keinen Unterschied was die Blasenbildung betrifft im Vergleich zu den hier oben beschriebenen Beobachtungen an hochreinen Proben. Deshalb wird im folgenden davon ausgegangen, daß die Angaben in Tab. 4.2 auch für die verdünnten Legierungen übernommen werden können.

5. Experimentelle Ergebnisse zum bestrahlungsinduzierten FA-Transport

Bestrahlungsinduzierter FA-Transport wurde auch bei der Heliumimplantation beobachtet und soll zunächst diskutiert werden. Danach werden die Ergebnisse der Entmischung bei Protonenbestrahlung vorgestellt.

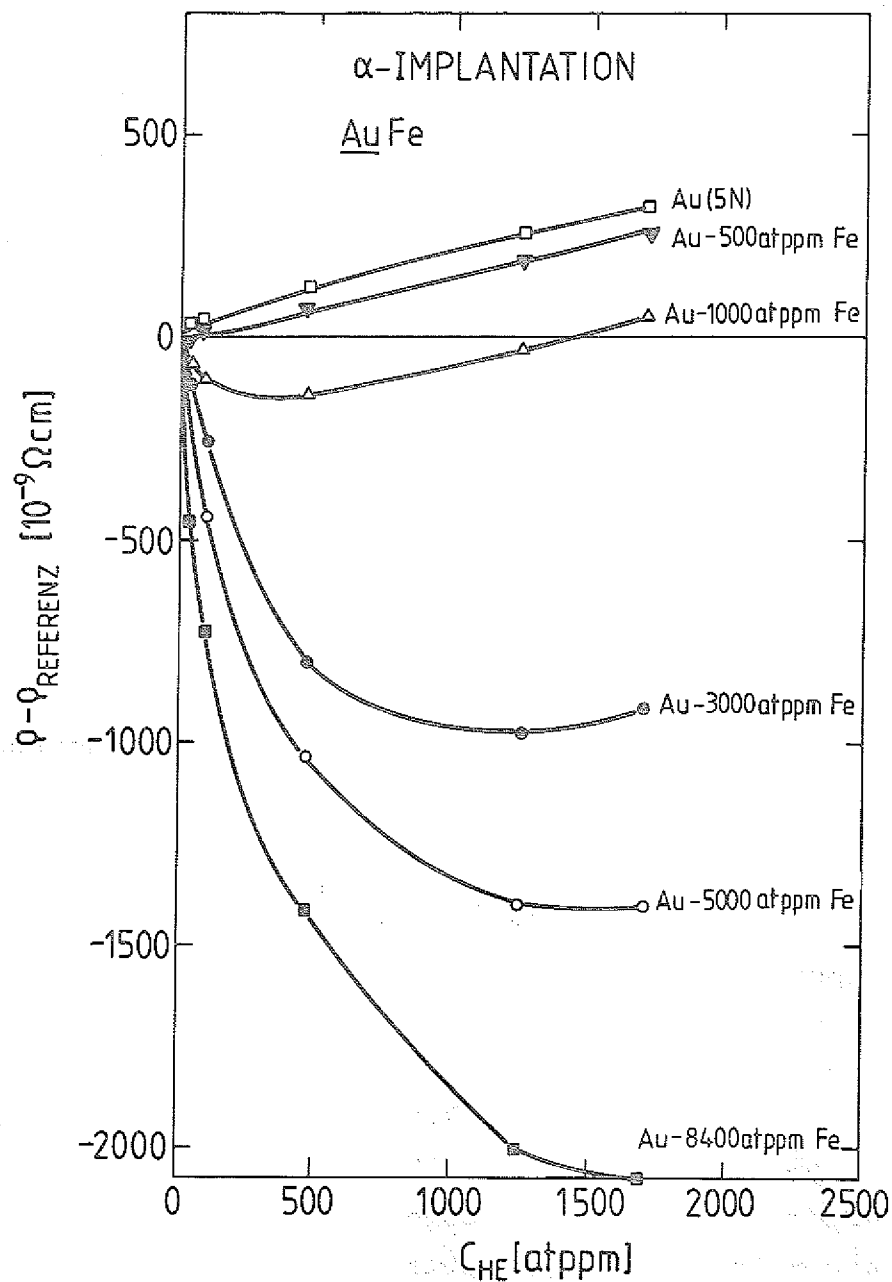
5.1. Ergebnisse der Implantationsexperimente

5.1.1. Heliumimplantation

Um ein Maß für den Heliumgehalt der Legierungen bei der Implantation zu erhalten, wurde auf dem gleichen Probenhalter außer verschiedenen Legierungssystemen ebenfalls eine hochreine Probe montiert. Deren Widerstandsänderung ist gemäß Abb. 4.1-3 ein Maß für die implantierte Heliummenge. Der He-Gehalt nach der Implantation lag im Bereich $1500 \text{ atppm} \leq c_{\text{He}} \leq 2000 \text{ atppm}$. Diese Werte ließen sich noch mit vernünftigen Implantationszeiten von ca. 12 Stunden pro Halter realisieren.

Als erstes Beispiel für die Änderung des elektrischen Widerstandes als Funktion der Heliumimplantation sind in Abb. 5.1 die Kurven für das System AuFe aufgetragen. Auffallend ist, daß in Gegensatz zum Au(5N) die Legierungen keinen monotonen Widerstandsanstieg zeigen. Viel mehr weisen sie zu Beginn der Bestrahlung eine Widerstandsabnahme auf, die um so auffälliger ist, je größer die Ausgangskonzentration c_{Fe} ist. Dieser Widerstandsverlauf läßt sich deuten als eine Überlagerung einer Widerstandszunahme infolge des Defekteinbaus, wie im hochreinen Au(5N) und einer Widerstandsabnahme durch das zusätzliche Entmischen in den Legierungen. Der Effekt der Entmischung nimmt bei Zunahme von c_{FA} zu.

Abb. 5.1: Bestrahlungsinduzierte Widerstandsänderung bei der Heliumimplantation unterschiedlich dotierter AuFe-Proben in Vergleich zum Au(5N)



In Abb. 5.2 ist der Widerstandsverlauf für die Systeme AuZn und AuTi ($c_{FA}=1000$ atppm FA) verglichen mit dem des AuFe und Au(5N). Im Gegensatz zu AuFe zeigt AuZn einen monotonen Widerstandsanstieg wie im reinen Au(5N). Der geringere Anstieg des Widerstandes im System AuTi deutet auf eine schwache Segregation hin.

Für die Systeme Au mit Al, Pt, Ni und Mn konnten keine Dosiskurven gemessen werden. Die für die 1000 atppm-Legierungen bei $c_{He} = 1300$ atppm He erreichten Widerstandsänderungen durch Implantation sind in der Tabelle 5.1 dargestellt. Deutet man die Abweichung der Werte der Legierung zu dem des Au(5N) als Entmischung, so kann man die Matrixentleerung

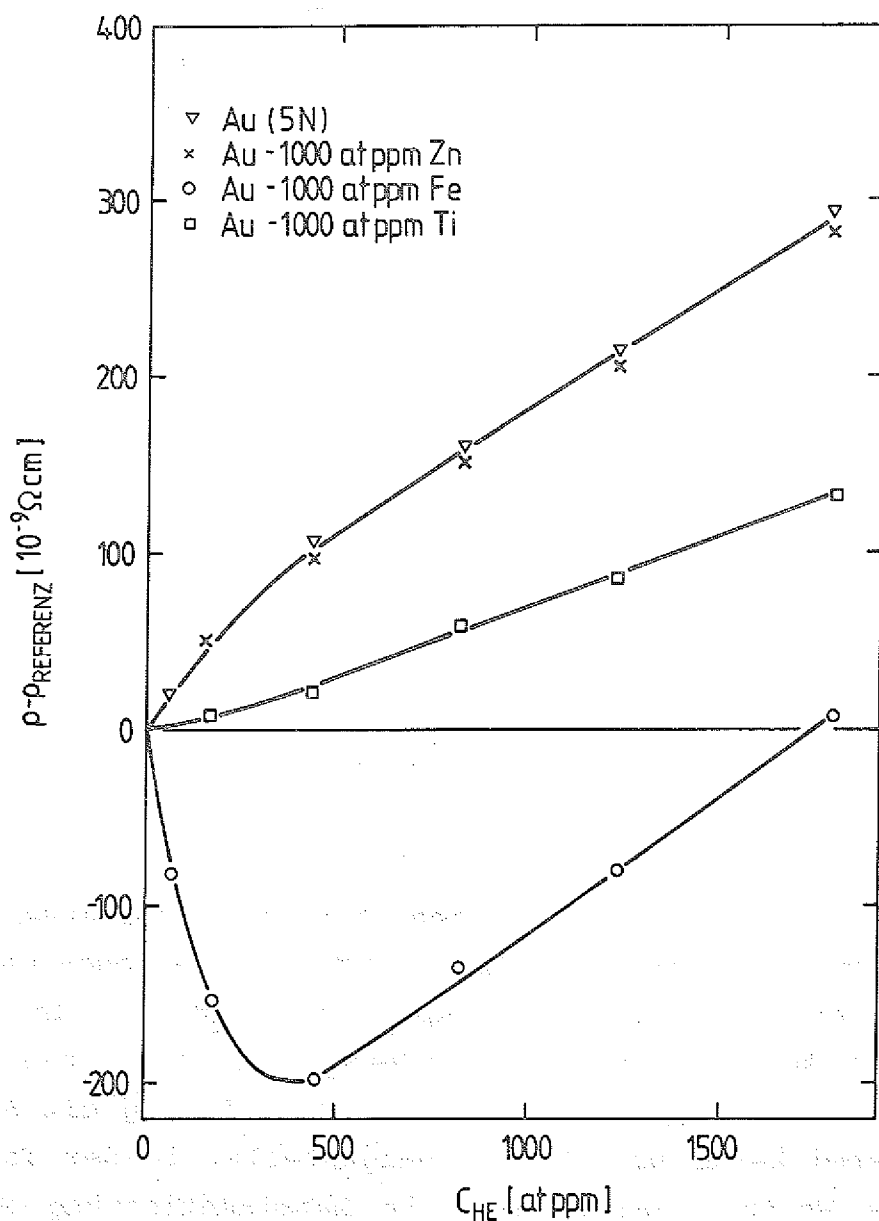
$$M = \left| \frac{(\rho - \rho_{Ref})_{Alloy} - (\rho - \rho_{Ref})_{Pure}}{\Delta \rho_{FA}} \right| [\%] \quad (5.1)$$

angeben.

Tabelle 5.1: Bestrahlungsinduzierte Widerstandsänderung in verschiedenen Au-Legierungen ($c_{He} = 1300$ atppm He)

Legierung	$\rho - \rho_{Ref} [10^{-9} \Omega cm]$	M [%]
Au-1000 atppm Al	199±5	17±6
Au-1000 atppm Fe	-85±5	44±1
Au-1000 atppm Mn	215±5	8±4
Au-1000 atppm Ni	202±5	19±6
Au-1000 atppm Pt	184±5	29±6
Au-1000 atppm Ti	80±5	15±1
Au-1000 atppm Zn	220±5	16±10
Au (5N)	234±5	0

Abb. 5.2: Bestrahlungsinduzierte Widerstandsänderung bei der Heliumimplantation von AuZn, AuFe und AuTi ($c_{FA} = 1000$ atppm FA) in Vergleich zum Au(5N)



In Abb. 5.3 sind die Dosiskurven für Cu(6N), Cu-1000 atppm Ni, Cu-2000 atppm Ni, Cu-1000 atppm Si und Cu-2000 atppm Si aufgetragen. Während die Dosisabhängigkeit des CuNi vergleichbar ist mit Cu(6N), zeigt das CuSi starke Segregationseffekte, qualitativ ähnlich wie das AuFe. Auch hier durchläuft die Kurve ein Minimum, dessen Größe stark mit der Si-Konzentration korreliert. Die Tabelle 5.2 zeigt die Matrixentleerung $M[\%]$ nach der Implantation. Die Ergebnisse deuten einwandfrei auf Entmischung im CuSi hin.

Tabelle 5.2: Bestrahlungsinduzierte Widerstandsänderung in verschiedenen Cu-Legierungen ($c_{\text{He}} = 1400$ atppm He)

Legierung	$\rho - \rho_{\text{Ref}} [10^{-9} \Omega \text{cm}]$	$M[\%]$
Cu- 1000 atppm Ni	244 ± 5	4 ± 5
2000	242 ± 5	2 ± 2
Cu- 1000 atppm Si	88 ± 5	42 ± 1
2000	-85 ± 5	46 ± 1
Cu(6N)	240 ± 5	0

Als letztes Beispiel sind in Abb. 5.4 die Dosiskurven für AgMn und AgGe mit verschiedenen Fremdatomkonzentrationen gezeigt. Im AgGe findet man deutliche Segregationseffekte. Im Gegensatz dazu zeigt AgMn eine monotone Widerstandszunahme, die praktisch dem Verlauf der Au(5N)-Probe entspricht. Für Ag mit Al, Au, Zn und Pd sind keine Dosiskurven dargestellt. In der Tabelle 5.3 sind die Werte $(\rho - \rho_{\text{Ref}})$ und die Matrixentleerung M am Ende einer Implantation für vergleichbare Heliumwerte zusammengefaßt.

Abb. 5.3: Bestrahlungsinduzierte Widerstandsänderung bei der Heliumimplantation von CuNi und CuSi ($c_{FA} = 1000, 2000$ atppm FA) in Vergleich zum Cu(6N)

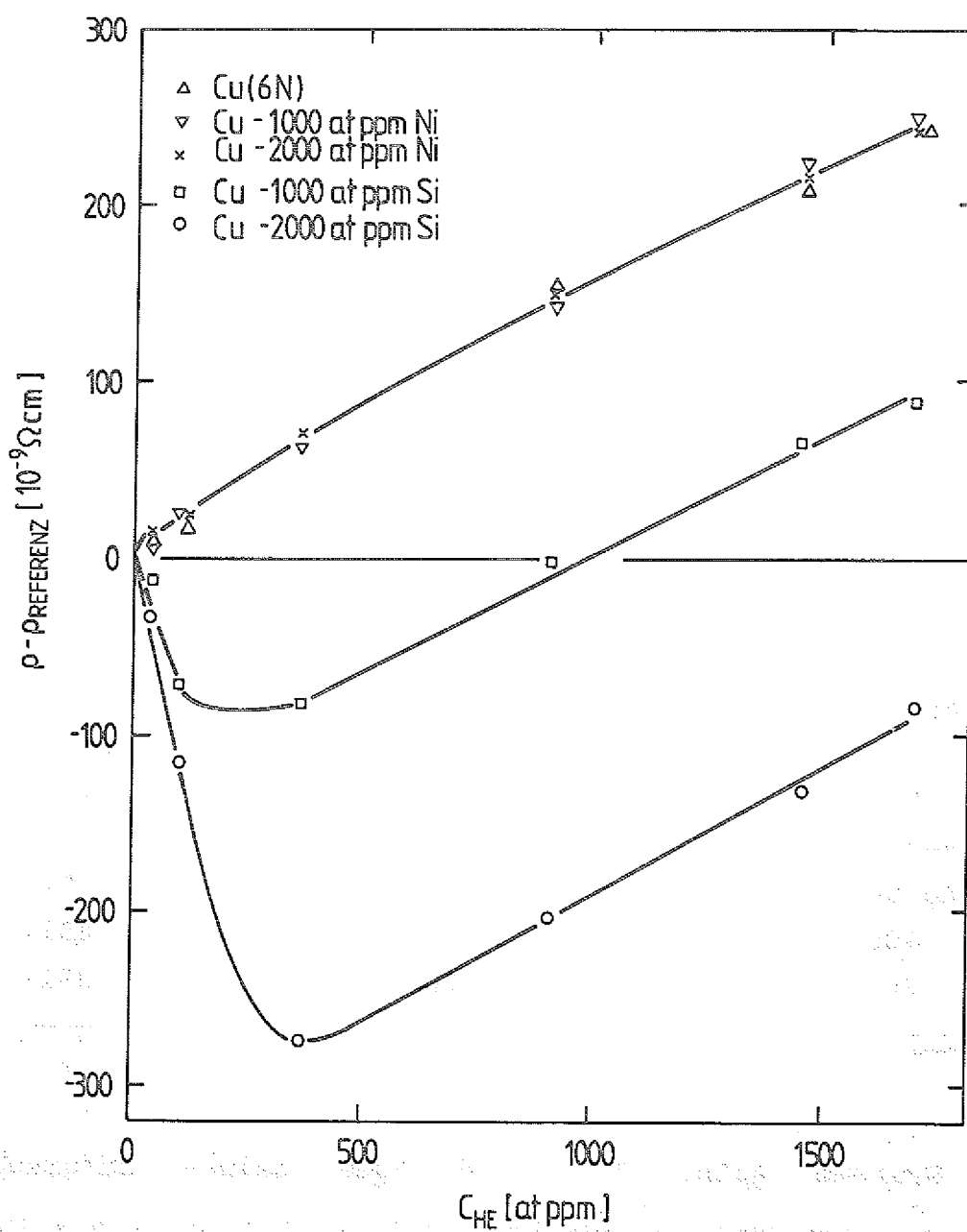
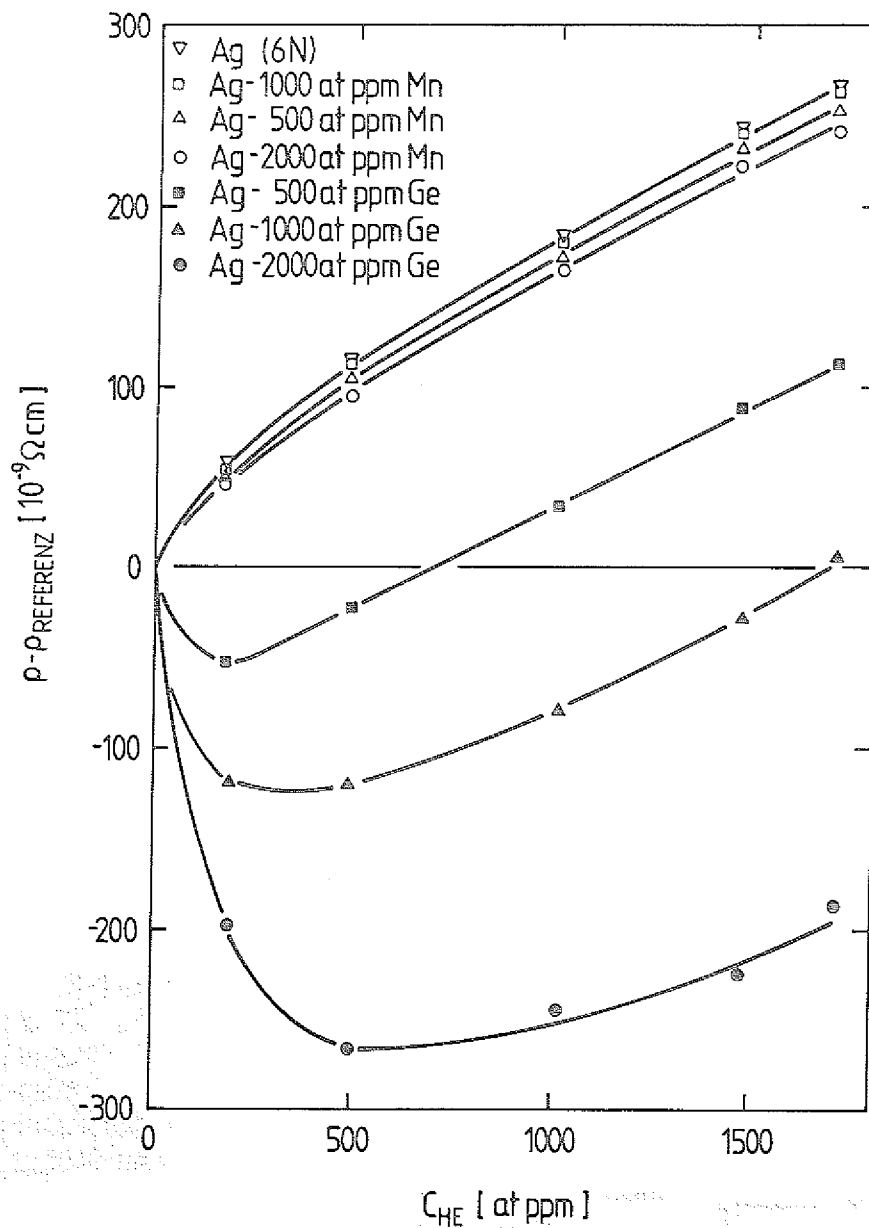


Tabelle 5.3: Bestrahlungsinduzierte Widerstandsänderung in verschiedenen Ag-Legierungen ($c_{\text{He}} = 1650 \text{ atppm He}$)

Legierung	$\rho - \rho_{\text{Ref}} [10^{-9} \Omega \text{cm}]$	M[%]
Ag-500 atppm Al	-	-
1000	199±5	35±3
2000	122±5	38±2
Ag-500 atppm Au	257±5	28±56
1000	263±5	0±28
2000	255±5	10±14
Ag-500 atppm Ge	92±5	84±2
1000	5±5	67±1
2000	-290±5	66±1
Ag-500 atppm Mn	251±5	11±10
1000	260±5	0±6
2000	242±5	10±2
Ag-500 atppm Pd	254±5	36±42
1000	245±5	43±21
2000	249±5	14±11
Ag-500 atppm Zn	253±5	35±36
1000	239±5	45±18
2000	223±5	38±10
Ag(6N)	262±5	0

Die Systeme AgZn, AgAl und AgGe zeigen aufgrund der abgeschätzten Entleerungen innerhalb der Fehler ($\pm 5 \times 10^{-9} \Omega \text{cm}$) eindeutig Segregationseffekte.

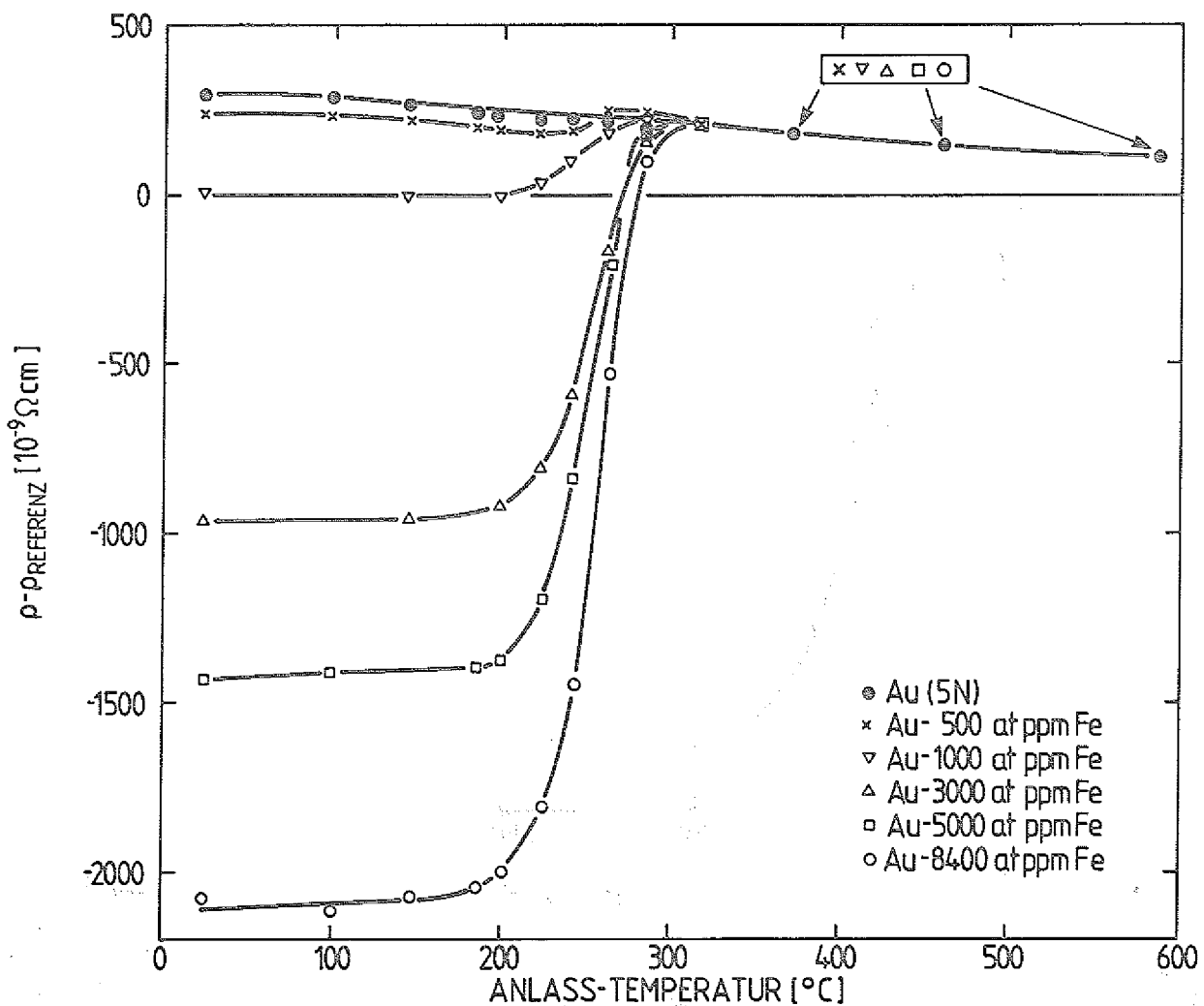
Abb. 5.4: Bestrahlungsinduzierte Widerstandsänderung bei der Heliumimplantation von AgMn und AgGe
($c_{FA} = 500, 1000$ und 2000 atppm FA)
in Vergleich zum Ag(6N)



5.1.2. Anlaßverhalten

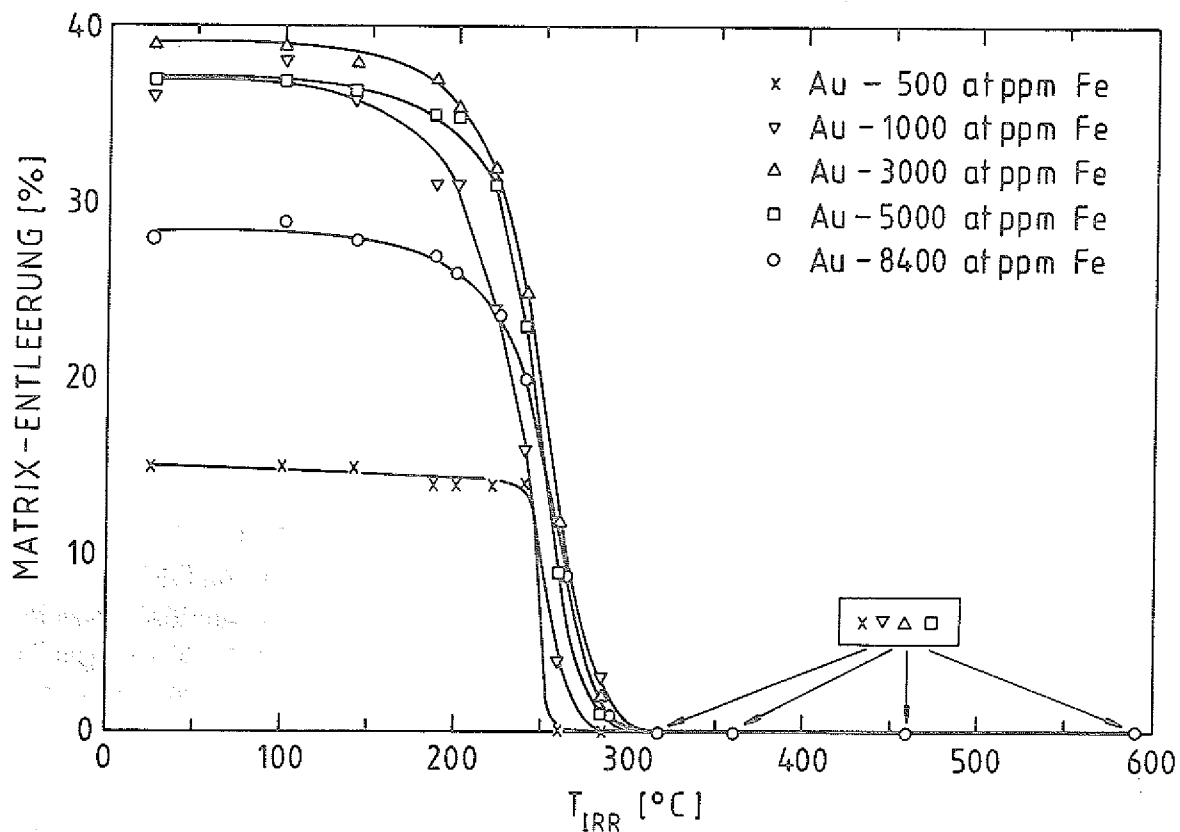
Die Abbildung 5.5 zeigt das isochrone Anlaßverhalten der AuFe-Legierungen, die mit $c_{\text{He}}=1700$ atppm He implantiert wurden (Dosiskurven in Abb. 5.1).

Abb. 5.5: Thermisches Anlaßverhalten von AuFe-Legierungen in Vergleich zum Au(5N) nach der Heliumimplantation



Durch Normierung dieser Erholungskurven auf $\Delta\rho_{FA}$ konnte in Abb. 5.5.a die entsprechende Matrixentleerung dieser Legierungen, gemäß Glg. (5.1), dargestellt werden.

Abb. 5.5.a: Matrixentleerung unterschiedlicher AuFe-Legierungen nach der Heliumimplantation als Funktion der Anlaßtemperatur

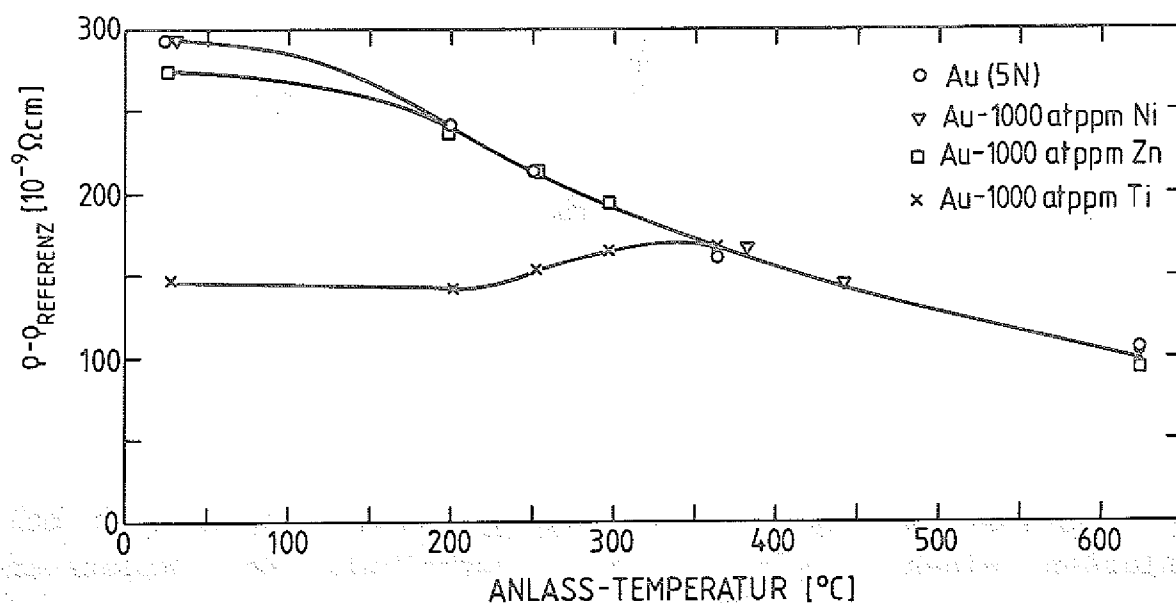


Im Vergleich zu Au(5N) zeigen die AuFe-Legierungen auch beim Anlassen einen anderen Widerstandsverlauf. Der Widerstand steigt je nach Fe-Konzentration oberhalb $T_A = 200^\circ\text{C}$ unterschiedlich stark an.

Oberhalb der Anlaßtemperatur $T_A=300^\circ\text{C}$ sind die Kurven für AuFe innerhalb der Meßfehler ununterscheidbar von der Kurve des Au(5N). Daraus läßt sich schließen, daß der Wert $(\rho-\rho_{\text{Ref}})$ nach Anlassen oberhalb 300°C lediglich durch den Widerstandsbeitrag $\Delta\rho_B$ der erzeugten Blasenstruktur gegeben ist und daß das segregierte Fe wieder in Lösung gegangen ist.

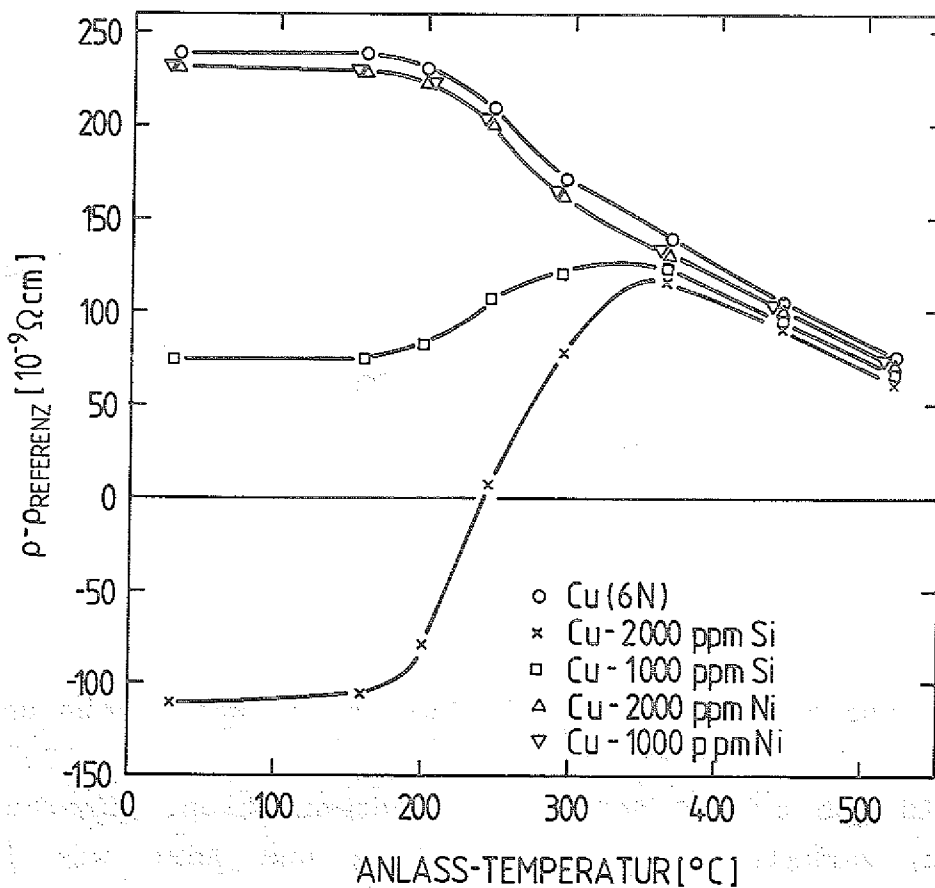
In Abb. 5.6 ist das Anlaßverhalten des Au-1000 atppm Ni, Au-1000 atppm Zn und Au-1000 atppm Ti mit einem Heliumgehalt von $c_{\text{He}}=1800$ atppm He gezeigt. Im AuNi und AuZn nimmt der Widerstand wie in Au(5N) ab. Das System AuTi hingegen zeigt einen Verlauf, der für thermische Rücklösung von Fremdatomen typisch ist.

Abb. 5.6: Thermisches Anlaßverhalten von AuNi, AuZn und AuTi ($c_{\text{FA}}=1000$ atppm FA) in Vergleich zum Au(5N) nach der Heliumimplantation



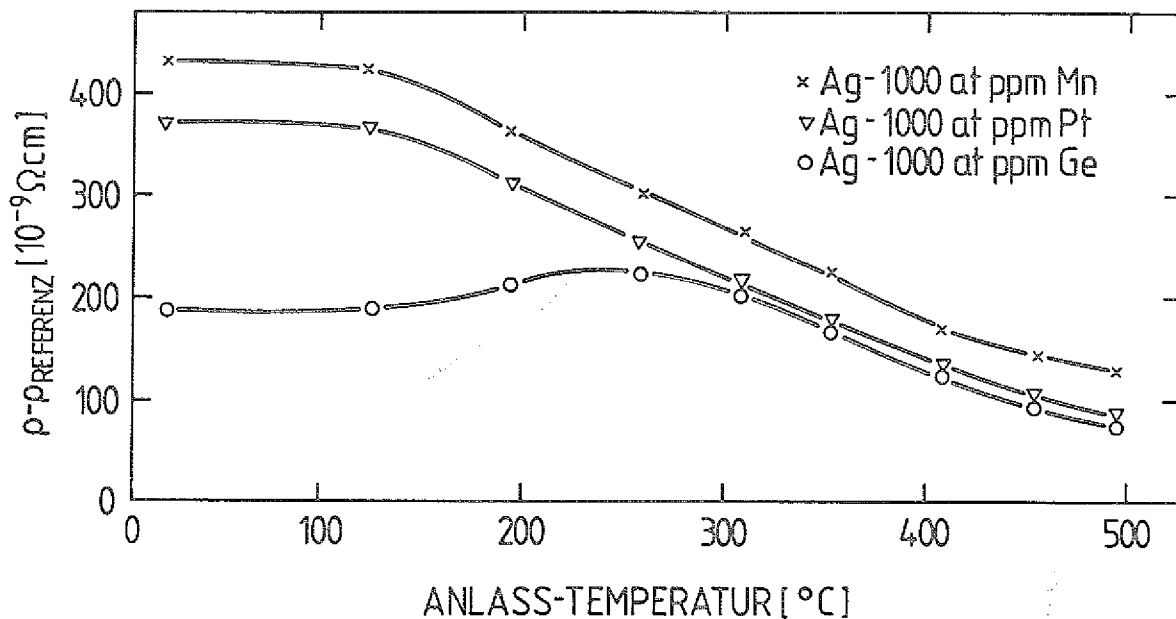
Die Abb. 5.7 zeigt die Änderung des Widerstandes der Cu-Legierungen ($c_{\text{He}} = 1400 \text{ atppm He}$) beim thermischen Anlassen. Dabei ist das System CuNi ein typischer Vertreter von Legierungen, die keine bestrahlungsinduzierte Segregation zeigen. Andererseits deutet das Anlaßverhalten von CuSi auf eine Si-Rücklösung hin, die bis $T_A \approx 345^\circ\text{C}$ vollständig ist. Die Erholung und die Rücklösung setzen bei ca. 180°C ein.

Abb. 5.7: Thermisches Anlaßverhalten von CuNi und CuSi ($c_{\text{FA}} = 1000 \text{ atppm FA}$) in Vergleich zum Cu(6N) nach der Heliumimplantation



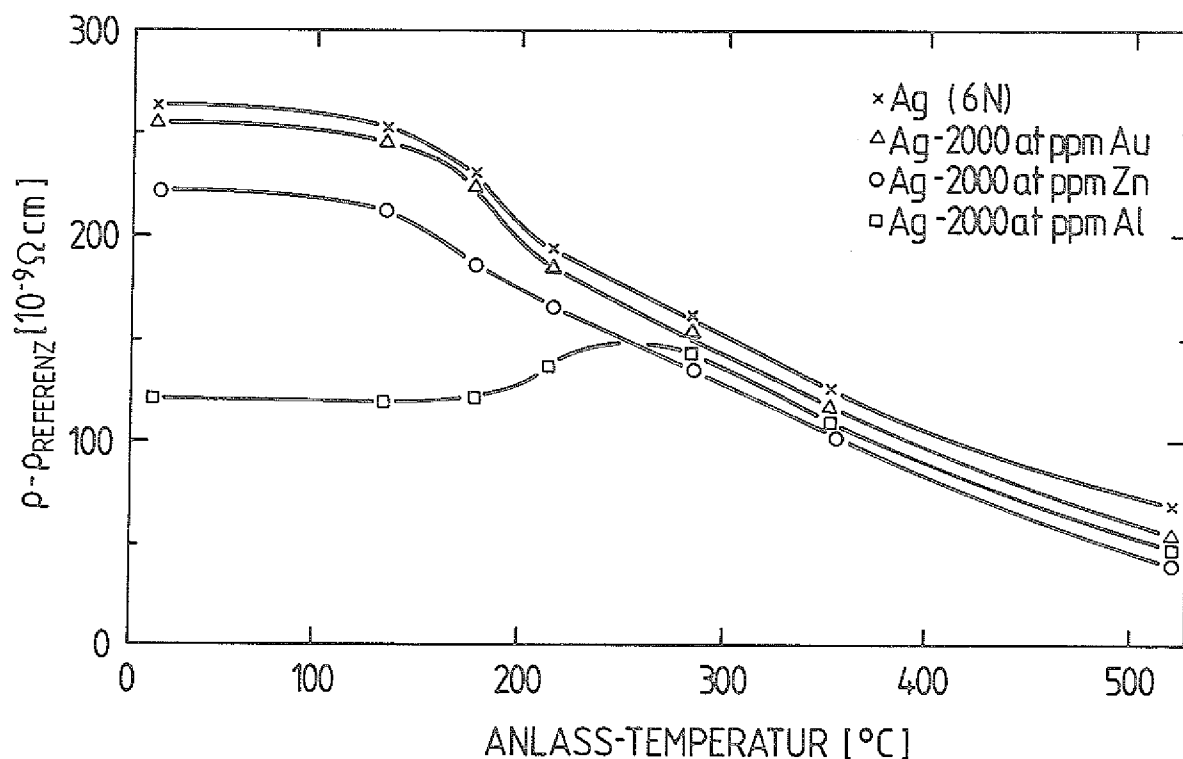
In der nächsten Abbildung 5.8 sind die Anlasskurven für AgPt, AgGe und AgMn aufgetragen ($c_{\text{He}} = 2900$ atppm He, ohne Ag-Referenzprobe abgeschätzt).

Abb. 5.8: Thermisches Anlaßverhalten von AgMn, AgPt und AgGe ($c_{\text{FA}}=1000$ atppm FA) nach der Heliumimplantation



Die Abbildung 5.9 zeigt die Anlaßkurven für AgAu, AgZn und AgAl mit $c_{\text{He}} = 1650$ atppm He. Die Erholung setzt bei $T_A \approx 130^\circ\text{C}$ ein, unabhängig von der FA-Sorte und -Konzentration. Innerhalb der Meßfehler verhalten sich AgAu, AgMn und AgPt wie Ag(6N). Dagegen zeigen Ge und Al in Ag eine thermische Rücklösung, die oberhalb $T_A \approx 260^\circ\text{C}$ abgeschlossen ist.

Abb. 5.9: Thermisches Anlaßverhalten von AgAu, AgZn und AgAl ($c_{FA}=2000$ atppm FA) in Vergleich zum Ag(6N) nach der Heliumimplantation



5.1.3. Zusammenfassung der implantationsbedingten

Segregationseffekte

Man kann die Dosiskurven bei Heliumimplantationen der verdünnten Au-, Ag- und Cu-Legierungen in drei Klassen einteilen (s. auch Tabelle 6.1-3):

1) in Systeme, die zweifelsfrei bestrahlungsinduzierte Entmischung zeigen. Dazu gehören AuFe, AuTi, CuSi, AgGe und AgAl. In ihrer Dosiskurve wird die Widerstandzunahme infolge

des Defekteinbaus überlagert von einer stark c_{FA} -abhängigen Widerstandsabnahme durch Entmischung. Zusätzlich wurde die Rücklösung dieser Entmischung beim Anlassen beobachtet. Die Rücklösung war vollständig oberhalb $T_A = 300\text{ }^{\circ}\text{C}$, $345\text{ }^{\circ}\text{C}$ bzw. $260\text{ }^{\circ}\text{C}$ für Au-, Cu- bzw. Ag-Legierungen.

2) in Systeme, die keinen Hinweis auf Entmischung zeigen, weder bei der Implantation noch beim thermischen Anlassen. Hierzu gehören AgAu, AgMn, AgPt und CuNi. Ihr Kurvenverlauf ist identisch mit dem der hoch reinen Matrix und zeigt lediglich eine monotone Widerstandszunahme durch den Defekteinbau.

3) in Systeme, wo nicht entschieden werden kann, ob Entmischung vorliegt oder nicht. Dazu gehören AuAl, AuMn, AuNi, AuPt, AuZn, AgMn und AgPd.

5.2. Protonenbestrahlung von verdünnten Legierungen

In den folgenden Abbildungen werden die Meßergebnisse für die Protonenbestrahlung der Systeme auf Au-, Cu- und Ag-Basis gezeigt. In allen Legierungen liegt zu Anfang der Bestrahlung eine definierte Blasenstruktur vor, die in Abschnitt 5.1.1 beschrieben wurde. Die FA waren rückgelöst durch Anlassen bei entsprechend hohen Temperaturen. Die Angaben der bestrahlungsinduzierten Widerstandsänderung $\Delta\rho$ für die einzelnen Bestrahlungsprogramme sind gemäß Glg. (3.5) als die Differenz zwischen der Änderung $(\rho - \rho_{\text{Ref}})$ unter Bestrahlung und dem Blasenbeitrag $\Delta\rho_B$ zu verstehen. Die Widerstandsmessung wurde bei $T=300\text{K}$ in-situ durchgeführt.

Auf Grund der im System AuFe beobachteten großen Segregationseffekte bei der Heliumimplantation wurde bei den Protonenbestrahlungen der Schwerpunkt auf die Legierung Au-1000 atppm Fe gelegt. Schließlich sei noch die Bemerkung gemacht, daß die Angabe c_{FA} die nominelle FA-Konzentration ist. Die tatsächliche Ausgangskonzentration für die untersuchten Systeme, die auch für die quantitative Auswertung benutzt wurden, zeigt die Tabelle 3.3 der chemischen Analyse.

5.2.1. Au-Legierungen

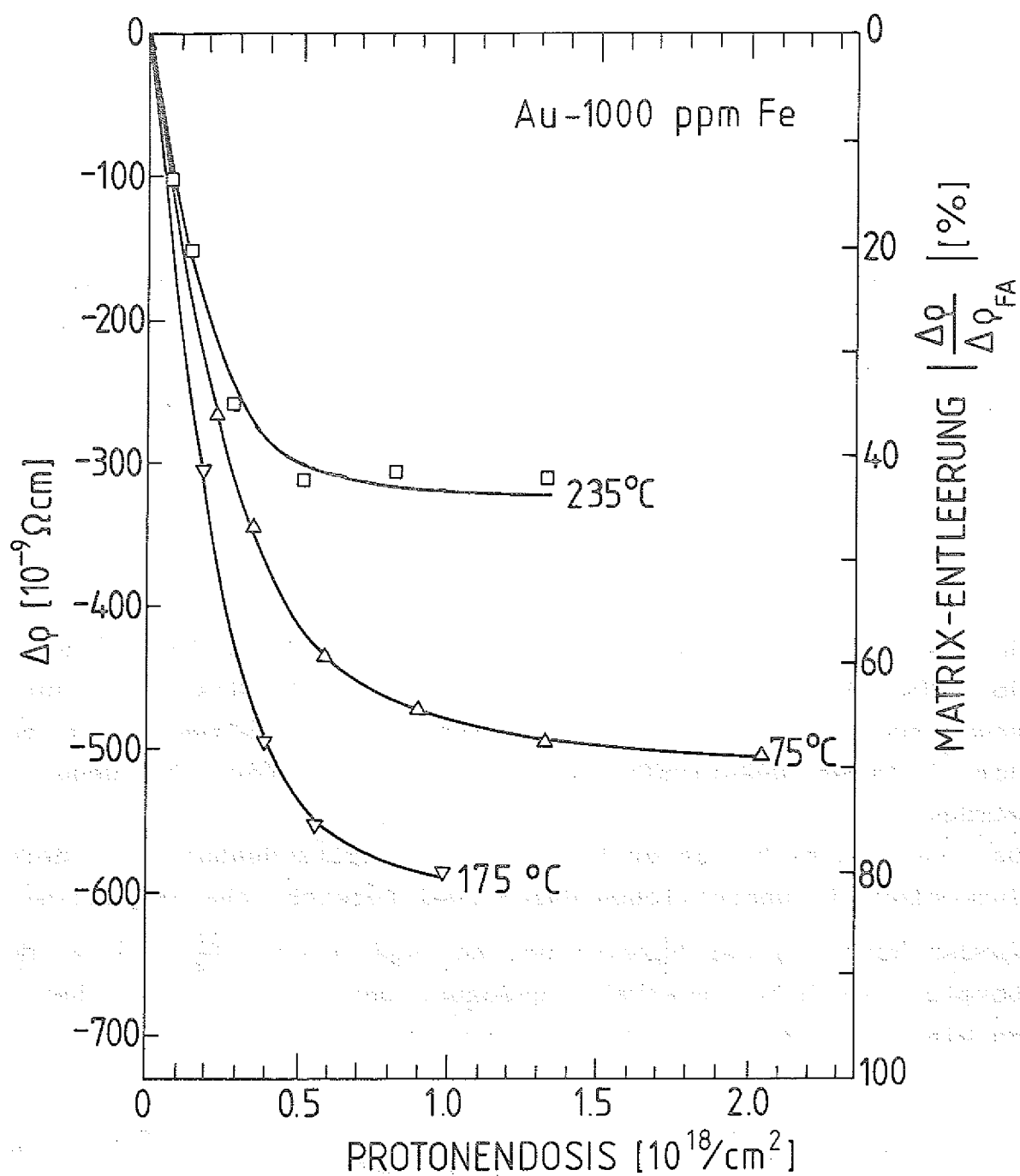
In der Abbildung 5.10 sind die Dosiskurven für Au-1000 atppm Fe bei Protonenbestrahlung im Wobblebetrieb bei verschiedenen Bestrahlungstemperaturen aufgetragen. Auf der linken Ordinate ist die bestrahlungsinduzierte Widerstandsänderung $\Delta\rho$ aufgetragen und auf der rechten Ordinate die Matrixentleerung

$$M = \left| \frac{\Delta\rho}{\Delta\rho_{FA}} \right| [\%] \quad (5.2)$$

dargestellt. Der Kurvenverlauf bei $T_{irr} = 235^\circ\text{C}$ muß auf Grund der im Abschnitt 3.4.2 diskutierten Verfälschung durch thermische Rücklösung beim Abkühlen auf die Meßtemperatur bei der späteren quantitativen Auswertung mit Vorsicht gedeutet werden.

Es zeigt sich generell eine Widerstandsabnahme, deren Kurvenform im wesentlichen durch zwei Bereiche charakterisieren werden kann: 1) der Bereich der Anfangssteigung $\frac{\Delta\rho}{\Delta\phi} \Big|_{\phi \rightarrow 0}$, 2) der Bereich bei hohen Bestrahlungsdosen, der durch die Annäherung an einen Sättigungswert gekennzeichnet ist.

Abb. 5.10: Bestrahlungsinduzierte Widerstandsänderung bzw. Matrixentleerung von heliumdotiertem Au-1000 atppm Fe bei Protonenbestrahlung zu unterschiedlichen Bestrahlungstemperaturen

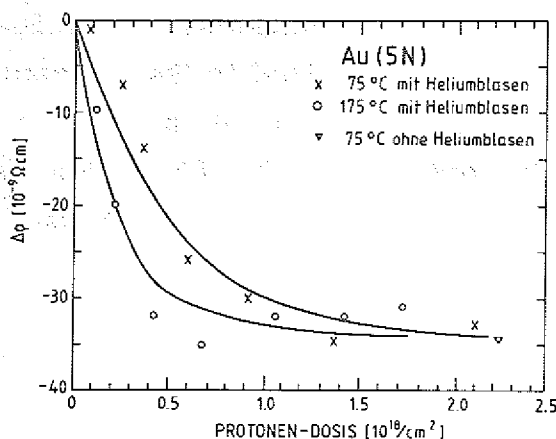


Ganz eindeutig zeigt sich, daß sowohl die Anfangssteigung $\left. \frac{\Delta \rho}{\Delta \phi} \right|_{\phi \rightarrow 0}$ als auch der Sättigungswert der strahlungsinduzierten Widerstandsänderung $\Delta \rho|_{\phi \rightarrow \infty}$ stark temperaturabhängig ist. Aus $\left. \frac{\Delta \rho}{\Delta \phi} \right|_{\phi \rightarrow 0}$ läßt sich die Effektivität der Matrixentleerung $EFF(T)$ bestimmen zu

$$EFF(T) = - \frac{C_{FA}}{\Delta \rho_{FA}} \cdot \left. \frac{\Delta \rho}{\Delta \phi} \right|_{\phi \rightarrow 0} \quad (5.3)$$

Als Referenz zum Au-1000 atppm Fe wurde Au(5N) mit der gleichen Blasenstruktur wie im Au-1000 atppm Fe im Bereich $75^\circ\text{C} \leq T_{\text{irr}} \leq 175^\circ\text{C}$ ebenfalls untersucht. Die Kurven für Au(5N) bei $T_{\text{irr}} = 75^\circ\text{C}$ und 175°C sind in der Abb. 5.11 eingezeichnet (Symbole (x) bzw. (O)). Man beobachtet eine Widerstandsabnahme bis zu $\approx 35 \times 10^{-9} \Omega\text{cm}$ bei $\phi \approx 2,1 \times 10^{18} \text{p/cm}^2$. Eine ähnliche Widerstandsabnahme wurde auch an einer Au(5N)-Probe, die keine Heliumblasen enthielt, nach Protonenbestrahlung beobachtet (als Symbol (∇) in Abb. 5.11).

Abb. 5.11: Bestrahlungsinduzierte Widerstandsänderung in Au(5N)-Proben mit und ohne Heliumblasen bei der Protonenbestrahlung



Diese Widerstandsabnahme entspricht etwa der Widerstandszunahme einer Au(5N)-Probe, die zunächst an Luft getempert wurde und nach Montage auf den Probenhalter im Vakuum nochmals angelassen wurde. Dies deutet auf eine Restverunreinigung des Au(5N) durch Fe hin, das nach dem Tempern an Luft (s. Abschnitt 3.1.2) als Oxyd nicht zum Widerstand beiträgt, jedoch nach einer Temperung in Vakuum wieder reduziert wird und zum Widerstand beiträgt. Aus der Widerstandsabnahme läßt sich der Fe-Gehalt zu ≈ 35 atppm angeben. Das Fe in Au(5N) kann dann bei der Protonenbestrahlung segregieren. Die Konstanz des elektrischen Widerstands oberhalb $\phi \approx 1,0 \times 10^{18} \text{ p/cm}^2$ zeigt, daß die Senkenstruktur in Au(5N) sich unter Bestrahlung praktisch nicht ändert.

In Abb. 5.12 sind die Ergebnisse von Protonenbestrahlungen für Au-1000 atppm Fe ohne Heliumblasen bei verschiedenen Temperaturen dargestellt. Für den Temperaturverlauf bei $T_{\text{irr}} = 75^\circ\text{C}$ und $T_{\text{irr}} = 175^\circ\text{C}$ zeigt sich durch Vergleich innerhalb der Fehlergrenzen kein Unterschied für die Proben mit und ohne Heliumblasen. Für $T_{\text{irr}} = 125^\circ\text{C}$ liegt keine vergleichbare Messung an einer implantierten AuFe-Probe vor.

Für $T_{\text{irr}} = 225^\circ\text{C}$ wurde in Abb. 5.13 die Matrixentleerung $M(\phi) = \frac{\Delta\rho}{\Delta\rho_{\text{FA}}} [\%]$ für verschiedene FA (AuTi, AuPt, AuNi und AuFe) als Funktion der Protonendosis aufgetragen. Diese Au-Legierungen hatten eine nominelle FA-Konzentration $c_{\text{FA}} = 1000$ atppm FA und $c_{\text{He}} = 1500$ atppm He. Die Ergebnisse zeigen eine stark unterschiedliche FA-Abhängigkeit. Sowohl Ti, Pt, Ni als Fe segregieren in der Au-Matrix bei 225°C unter Bestrahlung.

Abb. 5.12: Bestrahlungsinduzierte Widerstandsänderung in Au-1000 atppm Fe ohne Heliumblasen bei Protonenbestrahlung zu unterschiedlichen Temperaturen

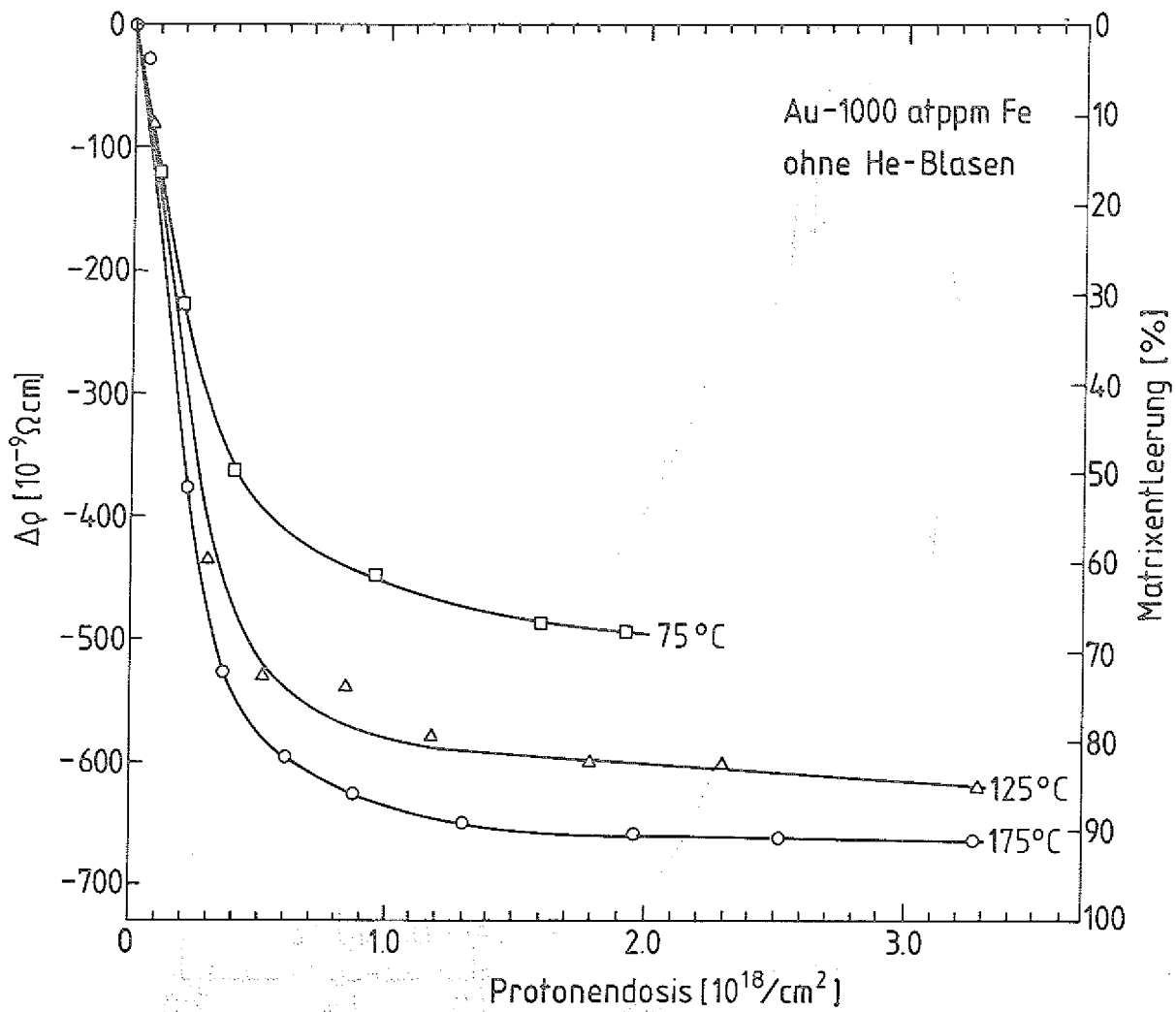
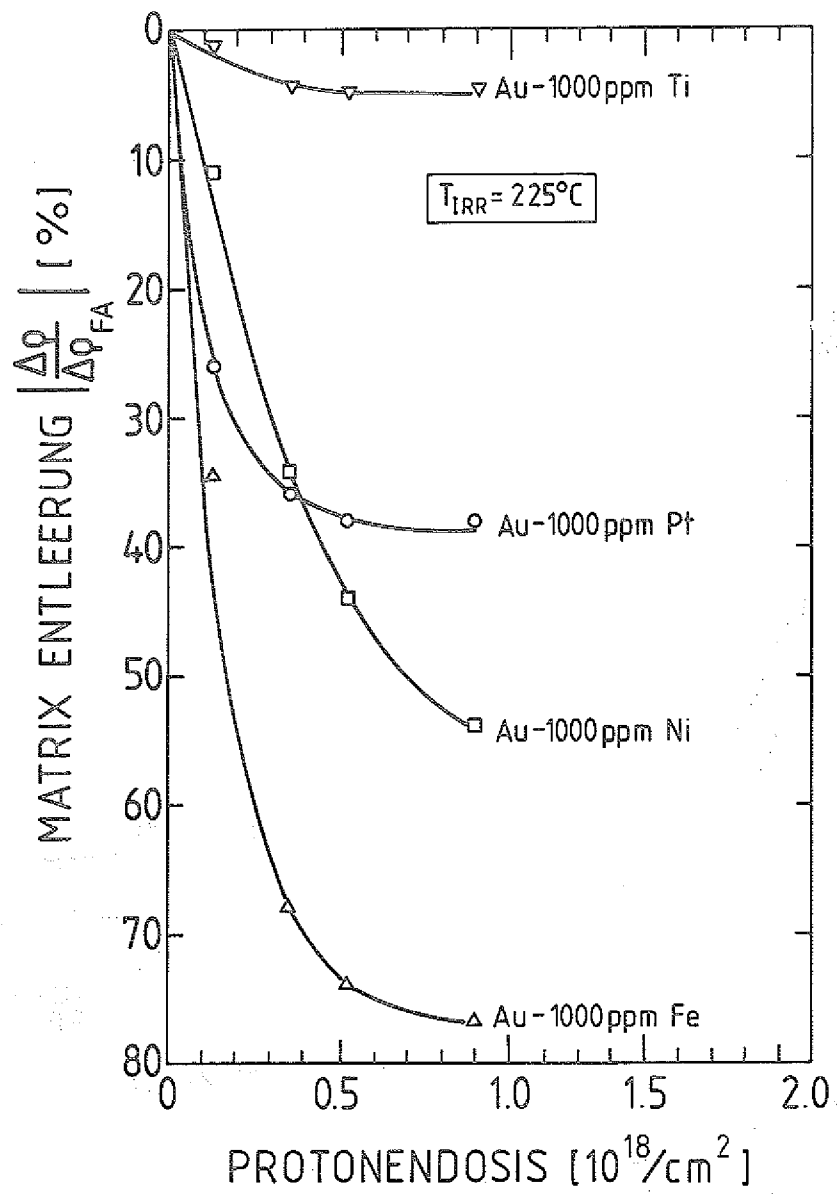
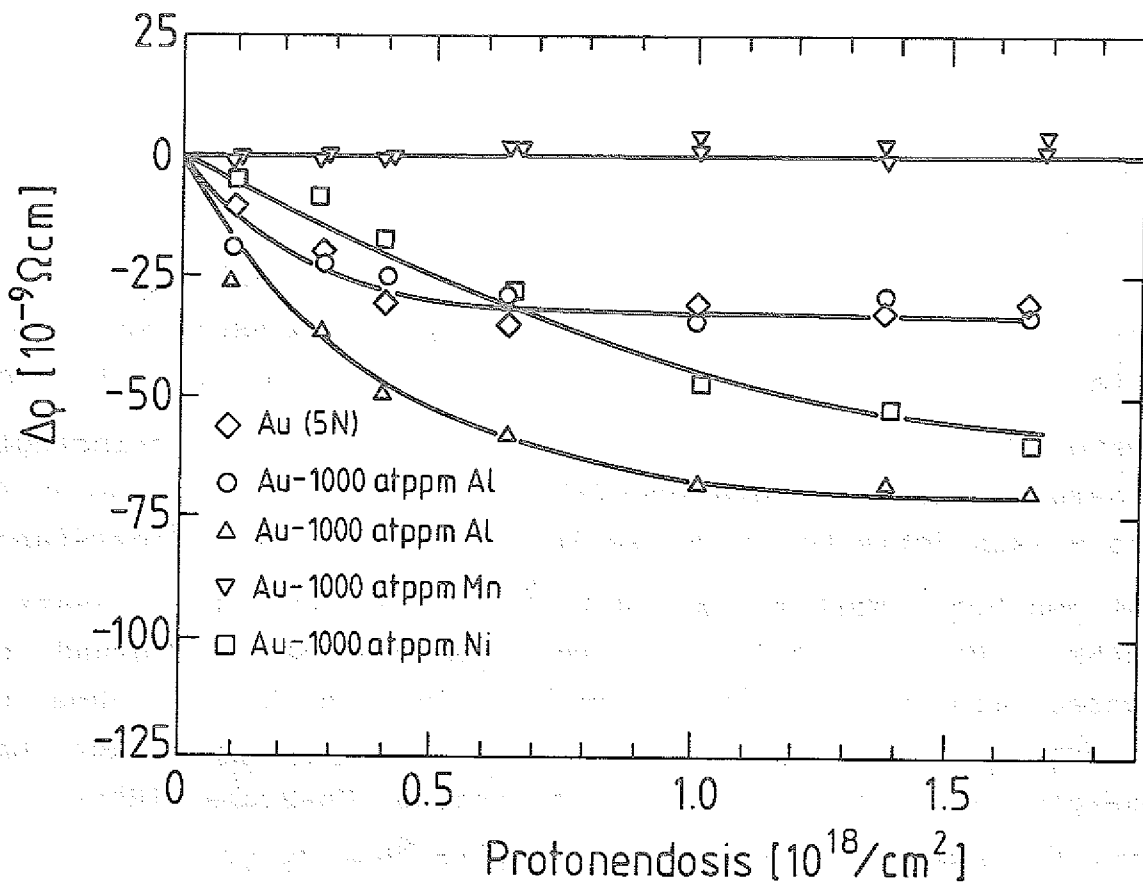


Abb. 5.13: Matrixentleerung $\left| \frac{\Delta\rho}{\Delta\rho_{FA}} \right|$ in AuTi (∇), AuPt ($\circ$), AuNi ($\square$) und AuFe ($\triangle$) bei Protonenbestrahlung



Die Dosiskurven für AuAl (2 Proben), AuMn (2 Proben), AuNi sowie Au(5N) bei $T_{\text{irr}}=175^{\circ}\text{C}$ sind in der Abb. 5.14 dargestellt. Das System AuMn zeigt keine Widerstandsänderung unter Bestrahlung. Offenbar findet keine Segregation statt. In Au(5N) wird eine schwache Segregation durch die Restverunreinigung beobachtet. Sowohl AuNi als auch AuAl zeigen Entmischung.

Abb. 5.14: Bestrahlungsinduzierte Widerstandsänderung in AuAl ($\circ, \Delta$), AuMn (∇), AuNi ($\square$), sowie Au(5N) bei Protonenbestrahlung



Obwohl alle Proben auf einem Probenhalter montiert waren, läßt sich der Unterschied in den beiden AuAl-Proben, trotz gleicher Vorbehandlung zunächst nicht erklären.

Für die Systeme AuV und AuZn konnten keine Dosiskurven gemessen werden. Aus einer Widerstandsmessung nach Bestrahlung konnte geschlossen werden, daß in diesen Legierungen die erreichte Matrixentleerung den Wert $M(\phi) < 0,02$ hat.

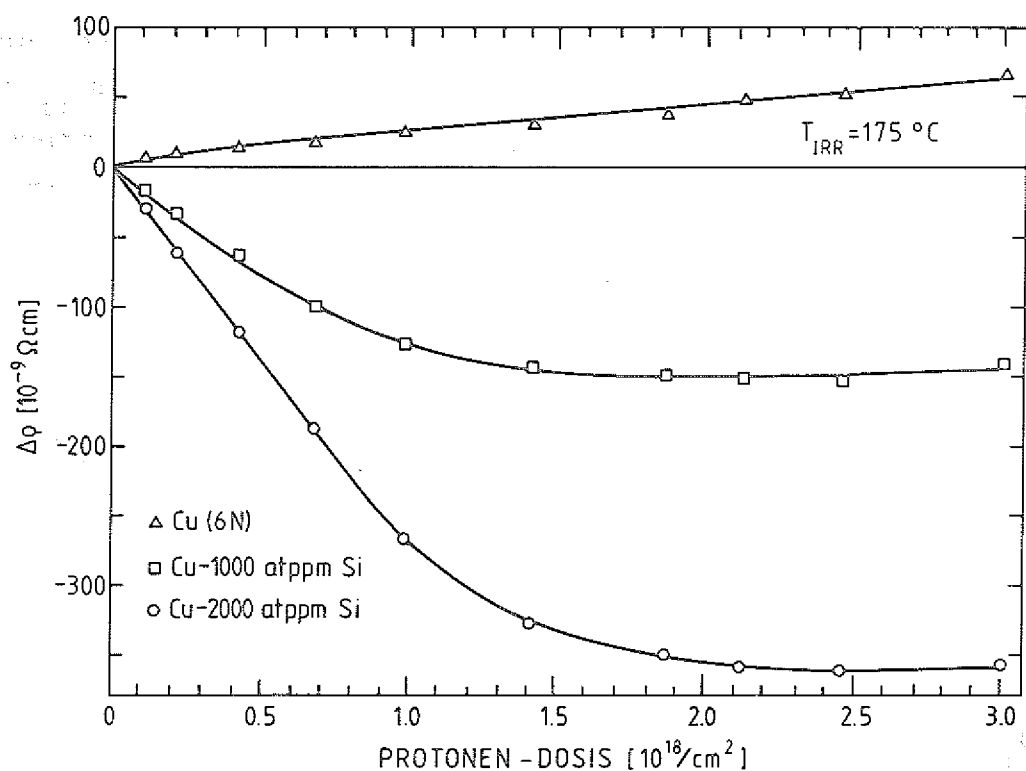
5.2.2. Cu- und Ag-Legierungen

Einige Ergebnisse, die als Basis für zukünftige, detailliertere Untersuchungen an Cu- und Ag-Legierungen unter Protonenbestrahlung dienen sollten, werden im Folgenden dargestellt.

Die Abb. 5.15 zeigt die Ergebnisse zu Cu-1000 atppm Si und Cu-2000 atppm Si bis $\phi = 3,0 \times 10^{18} \text{ p/cm}^2$ bei einer Bestrahlungstemperatur $T_{\text{irr}} = 175^\circ \text{C}$. Das System CuSi wird teilweise entleert und zeigt eine Abhängigkeit der Anfangssteigung und der Sättigung von der FA-Konzentration. Das System zeigt oberhalb $\phi \approx 2,2 \times 10^{18} \text{ p/cm}^2$ eine geringfügige Widerstandszunahme. Die ebenfalls eingetragene Dosiskurve für das Blasen-dotierte Cu(6N) zeigt einen Anstieg des Widerstandes auf den hohen Wert von $\Delta\rho = 70 \times 10^{-9} \Omega \text{cm}$. Dies ist im Gegensatz zu Au(5N), das während der Protonenbestrahlung aufgrund der Segregation von Verunreinigungen eine leichte Abnahme des Widerstands zeigte. Eine Bestrahlung mit Protonen ähnlicher Energie an einer nicht implantierten Cu-Probe führte bei gleicher Dosis lediglich zu $\Delta\rho = 10 \times 10^{-9} \Omega \text{cm}$ /5.1/.

Abb. 5.15: Bestrahlungsinduzierte Widerstandsänderung von CuSi ($c_{Si}=1000, 2000$ atppm Si) in Vergleich zum Cu(6N) bei Protonenbestrahlung

(N.B: der Verlauf des Cu(6N) entspricht auch dem Verlauf des nicht-eingetragenen CuNi ($C_{Ni}=1000, 2000$ atppm Ni))



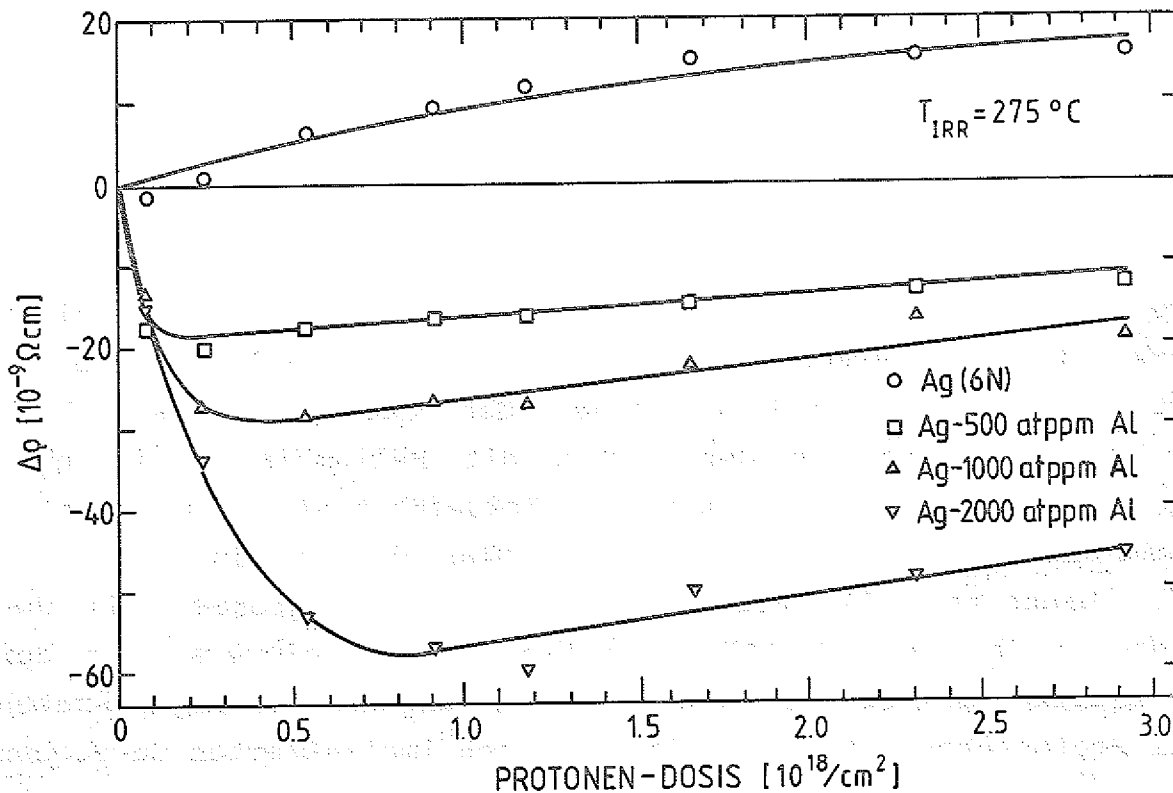
Dieser Widerstandsanstieg konnte auf den Einbau einer Defektstruktur zurückgeführt werden. Der Unterschied um einen Faktor 7 in $\Delta\rho$ legt es nahe, daß der beobachtete hohe Widerstandsanstieg in den Proben mit Heliumblasen auf eine Änderung in der Senkenstruktur zurückgeführt werden muß. Unter Berücksichtigung der Diskussion der Blasenbildung in Cu (s. Abschnitt 4.3), wird vermutet, daß ein großer Teil der Senken noch als unsichtbare, kleine He-LS-Agglomerate in der Cu-Matrix vorliegt. Eine ähnliche Erhöhung der Schädigungsrate bei Protonenbestrahlung wurde an frisch implantierten Cu-Proben

(ohne zwischenzeitliches Anlassen) beobachtet /5.2/.

Nicht eingetragen in der Abb. 5.15 sind die Ergebnisse für das System CuNi ($c_{FA} = 1000, 2000$ atppm Ni), da deren Dosiskurven identisch mit dem der Cu(6N)-Probe sind. Das System CuNi zeigt bei $T_{irr}=175^{\circ}C$ offenbar keine Segregation.

Als Beispiel für strahlungsinduzierte Segregation in verdünnten Ag-Legierungen sind in Abb. 5.16 die Dosiskurven bei $T_{irr}=275^{\circ}C$ für AgAl ($C_{Al}=500, 1000, 2000$ atppm Al und $c_{He} = 1500$ atppm He) dargestellt. Man sieht bei niederen Dosen eine Abnahme des Widerstandes, die auf Segregation von Al zurückzuführen ist und oberhalb $\phi \approx 0,5 \times 10^{18} p/cm^2$ einen langsamen Wiederanstieg.

Abb. 5.16: Bestrahlungsinduzierte Widerstandsänderung von AgAl in Vergleich zum Ag(6N) bei Protonenbestrahlung



Auch hier zeigt sich ein Widerstandsanstieg für das reine Material. Ähnlich wie beim Cu(6N) wird vermutet, daß die Blasenstruktur nicht stabil ist (s. Abschnitt 4.3).

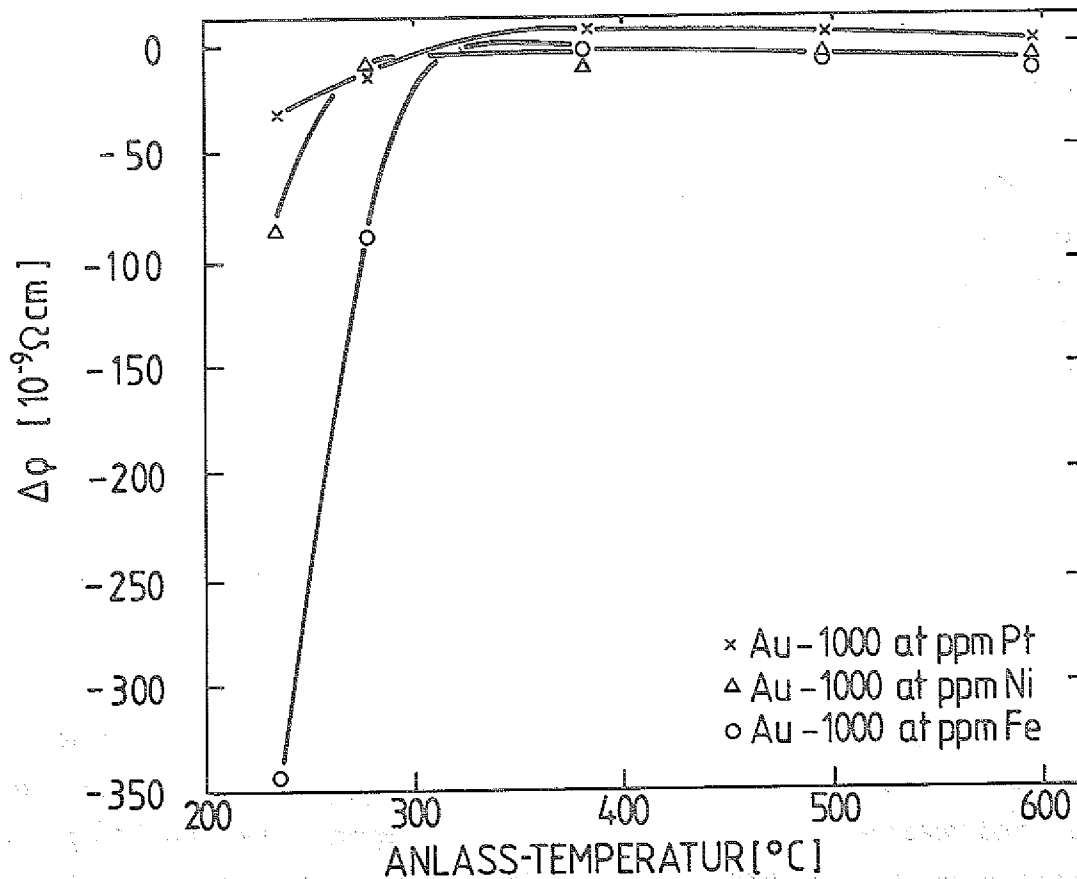
5.2.3 Anlaßverhalten nach Bestrahlung

Anschließend an die Bestrahlung soll mit Hilfe eines thermischen Anlaßprogramms geprüft werden, ob die Matrixentleerung rückgängig gemacht werden kann, wobei gleichzeitig der Rücklösungsansatz RL bestimmt werden soll. Hierfür wurden die Proben entweder im Vakuum eines Ofens oder in der Heliumatmosphäre innerhalb der Bestrahlungsapparatur ($T_{\max} \approx 425^{\circ}\text{C}$) getempert.

Das Anlaßverhalten wurde nur für die Au-Legierungen untersucht. Die Anlaßprogramme wurden bis zu der maximalen Anlaßtemperatur $T_A^{\max}$ der im Abschnitt 4.2 angegebenen Blasenbildung mit der Anlaßzeit $t_A = 1\text{h}$ durchgeführt. Die thermische Erholung des Widerstandes nach einer Bestrahlung bei $T_{\text{irr}} = 235^{\circ}\text{C}$ ist für eine Reihe teilweise entleerter Au-Legierungen als Funktion der Anlaßtemperatur in Abb. 5.17 aufgetragen. Für AuFe, AuNi und AuPt zeigt sich eine Widerstandserholung bis $T_A \approx 380^{\circ}\text{C}$. Oberhalb dieser Temperatur ändert sich der Widerstand bis $T_A \approx 600^{\circ}\text{C}$ nicht mehr und erreicht den Wert $\Delta\rho = 0$.

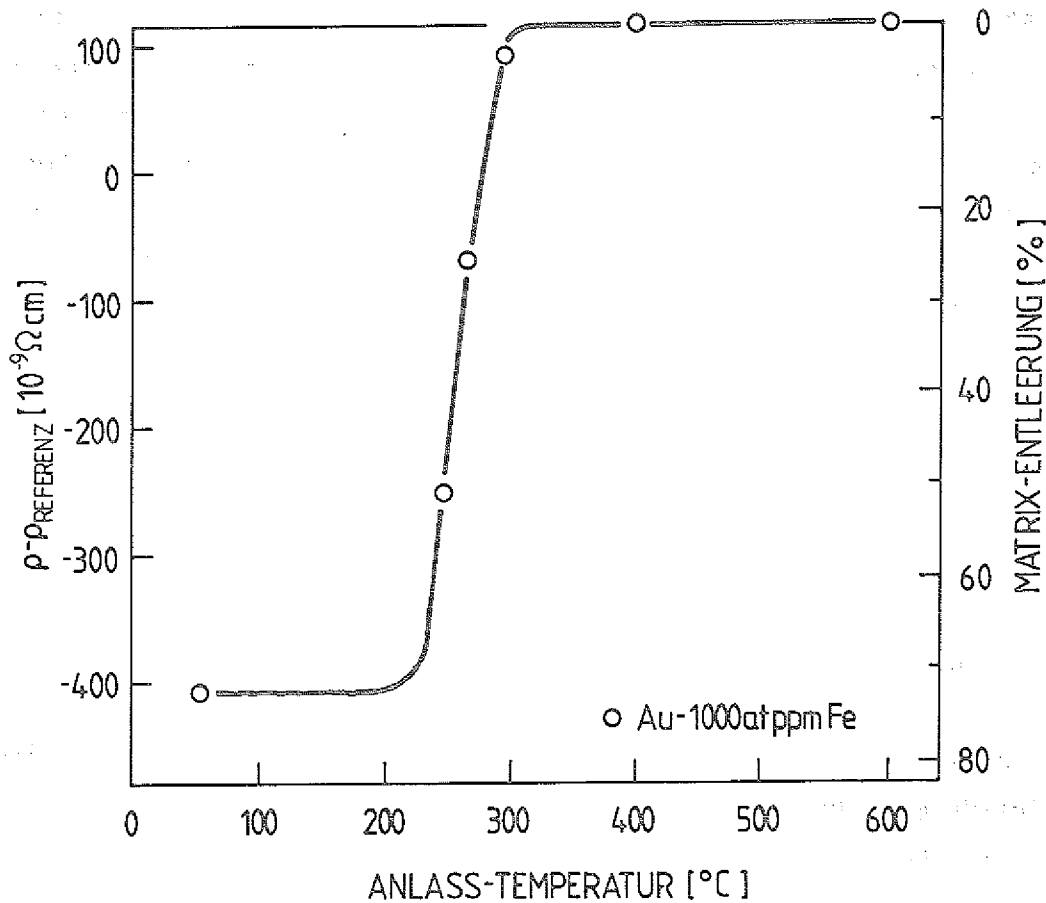
Daraus kann man schließen, daß Fe, Pt und Ni in Au nach Anlassen oberhalb 380°C wieder in Lösung in der Matrix vorliegen und die Blasenstruktur stabil geblieben ist. Die Legierungen AuMn, AuV und AuZn zeigten bei dem thermischen Anlassen praktisch keine Widerstandsänderung. Das Au(5N) zeigte eine Widerstandserholung, entsprechend der Rücklösung der Restverunreinigung.

Abb. 5.17: Thermisches Anlaßverhalten von AuPt (x), AuNi (Δ) und AuFe (O) nach Protonenbestrahlung



Aus der Abbildung 5.17 folgt, daß die vorangegangene Bestrahlung bei $T_{\text{irr}} = 235^\circ\text{C}$ bereits im Temperaturbereich der thermischen Rücklösung lag. Für das System Au-1000 atppm Fe wurde deshalb auch nach einer Bestrahlung bei $T_{\text{irr}} = 75^\circ\text{C}$ mit einem Ausgangswert der Entleerung von $\approx 70\%$ ein Anlaßprogramm durchgeführt (Abb. 5.18). Für Au-1000 atppm Fe setzt die thermische Rücklösung im Temperaturbereich um 220°C ein, gerade dort, wo unter Bestrahlung die maximal erreichte Entleerung abnimmt (s. Abb. 6.2).

Abbildung 5.18: Thermisches Anlaßverhalten von Au-1000 atppm Fe nach Protonenbestrahlung



Dies unterstützt die Aussage, daß die Rücklösung unter Bestrahlung im wesentlichen von den thermischen LS verursacht wird.

6. Diskussion des bestrahlungsinduzierten FA-Transports

In diesem Kapitel werden die Meßergebnisse zum bestrahlungsinduzierten FA-Transport in verdünnten Au-, Cu- und Ag-Legierungen mit Hilfe der im Kapitel 2 erklärten Modellvorstellungen diskutiert. Der Schwerpunkt liegt bei dem System Au-1000 atppm Fe. Für diese Legierung wurde die bestrahlungsinduzierte Segregation bei verschiedenen Bestrahlungstemperaturen als Funktion der Bestrahlungsdosis untersucht. Da für die anderen Systeme weniger vollständige Ergebnisse vorliegen, können diese nur qualitativ diskutiert werden.

6.1. AuFe-Legierung

6.1.1. Auswertung der thermischen Rücklösung

Für eine quantitative Auswertung der isochronen Erholungskurven der durch die Protonenbestrahlung erzeugten Entmischung wurden die Meßdaten mit dem durch Integration von Glg. (2.27) erhaltenen Ausdruck

$$c_s(t_A) = c_s(0) - (c_s(0) - c_s(\text{start})) \cdot \exp(-t_A/\tau_R) \quad (6.1)$$

verglichen, wobei $P_F = 0$ und $c_v = c_v^{\text{th}}$ gesetzt wurden. Dabei ist $c_s(0)$ der Gleichgewichtswert, $c_s(\text{start})$ der Wert zu Anfang eines jeden Anlaßschritts und t_A die Anlaßzeit.

Die Zeitkonstante für die Rücklösung $\tau_R = (Z' \cdot v_v \cdot c_v^{\text{th}})^{-1}$ hängt über die in ihr enthaltene thermische Sprungrate der Fe-Atome exponentiell von der Anlaßtemperatur ab. Im Prinzip ist somit durch Anpassen der Glg. (6.1) an die isochronen Erholungskurven eine unabhängige Bestimmung der Größe und

Temperaturabhängigkeit des Produktes $Z' \cdot v_v \cdot c_v^{\text{th}}$ möglich.

Für die Auswertung der isochronen Erholungskurve von Abb. 5.18 wurde nun so vorgegangen, daß für die Temperaturabhängigkeit von τ_R der Ansatz $\tau_R \approx \exp (E_v^m + E_v^f)/kT$ mit den in Tabelle 2.2 angegebenen Aktivierungsenergien für Au gemacht wurde. Man erhält so als die optimale Anpassung die durchgezogene Kurve in Abb. 5.18, wobei $Z' \approx 1,8 \times 10^{-2}$ zu wählen war. Dieser Wert ist mit $Z' = Z \cdot \frac{1}{\pi} \cdot \frac{a^2}{b \cdot r_B}$ aus Glg. (2.15) zu vergleichen. Setzt man die Dicke der Anreicherungszone $b \approx a$, $r_B \approx 3a$ und nimmt man in erster Näherung für $Z \approx 0,2$ (d.h. man vernachlässigt mögliche Wechselwirkungseffekte bei der FA-Diffusion über LS, siehe auch Abschnitt 2.3), so stimmt $Z'_{\text{theor}} \approx 2 \times 10^{-2}$ erstaunlich gut mit dem aus der Erholungskurve erhaltenen Wert Z' überein.

Dies bedeutet zum einen, daß das einfache Modell für die Berechnung der Rücklösungsrate gemäß Glg. (6.1) bereits eine konsistente Beschreibung der thermischen Wiederauflösung der bestrahlungsinduzierten Ausscheidungen liefert. Zum anderen folgt, daß zwischen den Fe-atomen und den thermischen LS keine starke Wechselwirkung vorhanden sein kann. Dies ist konsistent mit Messungen der Diffusionskonstanten für Fe in Au /6.1/ bei hohen Temperaturen, die innerhalb der Fehlergrenzen mit den Werten der Selbstdiffusion für Au übereinstimmen.

Diese Beobachtung einer vernachlässigbaren Wechselwirkung zwischen dem substitutionell gelösten Fe und LS in Au steht in Gegensatz zu Ergebnissen von Abschreckexperimenten /6.2,6.3/. In diesen Arbeiten wurde aus dem Unterschied in der Erholung der eingeschreckten Widerstandsänderung von verdünnten

AuFe-Legierungen zu reinem Au auf eine starke Bindung, sowie eine beträchtliche Reduzierung der Wanderungsenergie des LS-Fe-Komplexes geschlossen. Wegen des unübersichtlichen anfänglichen Agglomerationszustands der LS nach dem Abschrecken, sind jedoch solchen Schlußfolgerungen gegenüber, insbesondere bei Au, starke Zweifel angebracht.

6.1.2. Effektivität der Entmischung

Die aus der Anfangssteigung der Dosiskurven gemäß Glg. (5.3) erhaltenen Effektivitäten des FA-Transports sind für Au-1000 atppm Fe als Funktion der Bestrahlungstemperatur in der Abbildung 6.1 zusammengefaßt (als Symbol (0)).

Die eingezeichneten horizontalen und vertikalen Fehlerbalken stellen die Unsicherheit in der Probestemperatur bzw. Unsicherheit in der experimentellen Bestimmung der Anfangssteigung $\frac{d \Delta \rho}{d \phi}$ dar.

Es sei an dieser Stelle nochmals darauf hingewiesen, daß sogar bei der höchsten Bestrahlungstemperatur ($T_{irr} = 265^{\circ}\text{C}$) die Verfälschung des Wertes $EFF(T)$ durch Rücklösung nach Abschalten des Strahls nur relativ gering ist, da die Probestemperatur instantan um 40°C auf 225°C absinkt (siehe auch Kap. 3.4.2.). Bei 225°C ist die Rücklösung während der weiteren Abkühlzeit noch sehr gering (siehe Abb.(5.18)).

Bei allen Temperaturen liegt die Effektivität deutlich unter dem Wert $EFF = 1$. Bis $T_{irr} \approx 175^{\circ}\text{C}$ deutet sich ein schwacher Anstieg auf $EFF \approx 0,20$ an.

Bei höheren Bestrahlungstemperaturen wird ein erneuter Abfall von $EFF(T)$ beobachtet. Auf Grund der Überlegungen in Kapitel 2.2.1 bedeutet dieser Abfall bei hohen Temperaturen, daß $B \geq c_s(0)$ ist, d.h. daß die Schrittzahl eines ZGA-Fe-Komplexes bis zu seiner Dissoziation vergleichbar oder kleiner ist als die Schrittzahl bis zum Wiedereinfang des dabei freiwerdenden ZGA an einem anderen substitutionellen Fe-Atom. Ferner nimmt die Schrittzahl bis zur Dissoziation mit steigender Temperatur weiter ab.

Zu tiefen Temperaturen hin, d.h. für $T_{irr} \leq 175^\circ C$ steigt $EFF(T)$ nicht mehr an; es deutet sich vielmehr ein leichter Abfall an. Dies bedeutet nach den Überlegungen in Kapitel 2.2.1, daß hier die Bedingung der Senkendominanz nicht mehr erfüllt wird und immer mehr ZGA-Fe-Komplexe mit LS rekombinieren bevor sie die Blasen erreichen können.

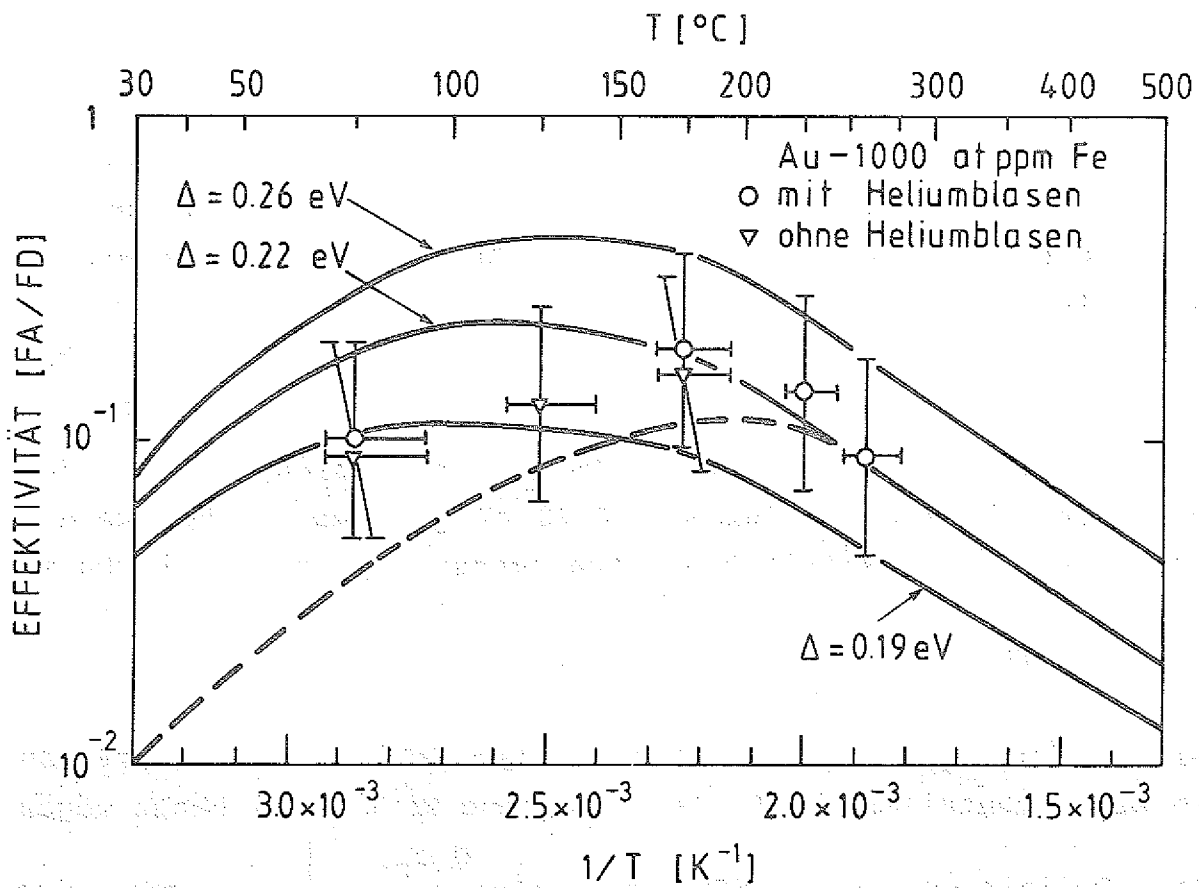
Für eine quantitative Analyse ist die experimentelle Temperaturabhängigkeit der Effektivität mit der Vorhersage durch Glg. (2.32a) bzw. den in Abbildung 6.1 gezeigten theoretischen Kurven für verschiedene Werte von Λ zu vergleichen (vgl. Abb. 2.3). Im wesentlichen wurde der Fit erhalten durch Anpassung an die Daten im senkendominanten Bereich ($T \geq 175^\circ C$). Es zeigt sich, daß die Temperaturabhängigkeit für $\Lambda = 0,22$ eV gut beschrieben werden kann. Wegen des zusätzlichen Fitparameters c_v werden die Daten bei tieferen Temperaturen praktisch nicht für die Bestimmung von Λ benutzt.

Der aus der Anpassung des theoretischen Verlaufs von $EFF(T)$ an die experimentellen Ergebnisse gewonnene Wert von Λ hängt wegen

$$\text{der Definition von } EFF = \left. -\frac{1}{\sigma_D} \cdot \frac{d c_{FA}}{d \phi} \right|_{\phi \rightarrow 0} \quad \text{von dem}$$

Wirkungsquerschnitt σ_D für die Erzeugung langreichweitig diffundierender ZGA ab. Wie aus der Diskussion in Kapitel 3.4.2 hervorgeht, ist dieser Wirkungsquerschnitt jedoch unsicher. Die verwendeten Werte für σ_D für Au stellen vermutlich eher eine obere Grenze dar.

Abb. 6.1: Experimentell erreichte Effektivitäten für Au-1000atppm Fe mit (O) und ohne (v) Heliumblasen in Vergleich zu den theoretischen Effektivitäten für verschiedene Δ -Werte als Funktion der Temperatur



Selbst wenn man den Extremfall, daß alle (100%) erzeugten Defekte frei wandern würden, ergäben sich die unteren Grenzen der Fehlerbalken in der Abbildung 6.1. Diese wurden sehr gut durch eine Kurve mit $\Delta = 0,19$ eV angefitet.

Schwieriger wird die Abschätzung des Minimalwerts der frei wandernden ZGA.

Die experimentellen Daten zeigen eine deutliche Steigung für $EFF(T)$ im Temperaturbereich 250-175⁰C. Im Rahmen des Modells kann $\Delta < 0,4$ eV als obersten Grenzwert gesetzt werden, da sich sonst ein fast konstanter Wert $EFF(T) \approx 1$ gemäß Abbildung 2.3 ergeben würde. Dieser Wert der Effektivität würde aber einem Fehler in p_F um einen Faktor ≈ 6 entsprechen.

Vernünftige Steigungswerte im genannten Temperaturbereich erhält man gemäß Abbildung 2.3 erst für $\Delta \leq 0,3$ eV. Ein Fehler in p_F um den Faktor 2 wird mit einem maximalen Grenzwert von $\Delta \approx 0,26$ eV entsprechend gut beschrieben (siehe Abbildung 6.1).

Gemäß Glg. (2.6) gilt $\Delta = G_{I,s}^b - E_i^m + E_I^m$. Um daraus die Bindungsenthalpie $G_{I,s}^b$ der ZGA-FA-Komplexe abschätzen zu können, müßte deren Wanderungsenergie E_i^m bekannt sein. Für Au ist $E_I^m \approx 0$. Der Wert von E_i^m könnte sich eventuell aus der Analyse der Erholungskurven von elektronenbestrahlten AuFe-Legierungen gewinnen lassen.

Nimmt man an, daß die nach /6.4/ an einer Au-27 atppm Fe-Probe beobachtete Unterstufe der Widerstandserholung bei ca. 65 K der Rekombination von ZGA-Fe-Komplexen mit LS zuzuschreiben ist, so würde sich daraus eine Wanderungsenergie von $E_i^m \approx 0,15$ eV abschätzen lassen. Man erhält dann als freie Bindungsenthalpie des Au-ZGA-Komplexes und eines substitutionellen Fe-Atoms den Wert $G_{I,s}^b \approx 0,37$ eV.

Voraussetzung hierfür ist ferner, daß die Bindungsenergie eines Au-Fe-Komplexes an ein weiteres Fe-Atom vernachlässigbar ist. Das bedeutet, daß gemäß Glg.(2.40) $v_i^{\text{eff}} \approx v_i$ ist, d.h. die Wanderung der ZGA-FA-Komplexe nicht durch die Bildung von Komplexen höherer Ordnung behindert wird.

Zum Schluß soll das Entmischungsverhalten von Proben mit Blasen und Proben ohne Blasen (als Symbole (O) bzw. (v) in Fig. 6.1) verglichen werden. Die Effektivität sollte im Temperaturbereich von 75 - 175°C, in dem der senkendominante Fall in den rekombinationsdominanten Fall übergeht, gemäß Kapitel 2.2.1, bei gleichem P_F und Δ , von dem Weg der FA zu den Senken und damit von c_B' abhängen. Es wurden aber für beiden Proben ähnliche Effektivitäten gemessen.

Eine mögliche Ursache für diese Übereinstimmung könnte darin liegen, daß genügend viele Versetzungen in diesen Proben vorliegen, so daß ähnliche Senkenstärken erreicht werden können. Dazu wäre gemäß /6.6/ eine Versetzungsdichte

$\rho_{\text{disl}} = 10^{11}/\text{cm}^2$ erforderlich. Unter Verwendung des Widerstandsbeitrags von Versetzungen gemäß /6.7/ kann die Versetzungsdichte in den verwendeten Proben zu $\rho_{\text{disl}} \leq 10^{10}/\text{cm}^2$ abgeschätzt werden. Außerdem zeigten die TEM-analysen eine Versetzungsdichte $\rho_{\text{disl}} = 10^{10}/\text{cm}^2$ (siehe Kap. 3.4.2.). Damit kann diese mögliche Deutung ausgeschlossen werden.

Daß die in den Proben vorliegende Versetzungsdichte nicht ausreicht die beobachteten Effektivitäten in den Proben ohne Blasen im Rahmen des Modells zu erklären, zeigt der gestrichelte Kurvenverlauf in der Abbildung 6.1, gerechnet für eine um den Faktor 10 kleinere Senkenstärke $c_B' = 9 \times 10^{-7}$ und $\Delta = 0,22$ eV.

Als wahrscheinlichste Erklärung ergibt sich deshalb der Aufbau einer Senkendichte unter Protonenbestrahlung in den Proben ohne Blasen. Es wird erwartet, daß sich in dem Temperaturbereich 75-175⁰C (unterhalb der Stufe V der Widerstandserholung nach Tieftemperaturbestrahlung) Defektcluster und Fremdatomagglomerate bilden können, die dann als Senken für die bestrahlungsinduzierte Segregation wirken können.

Um diese Fragen zu klären, sind weitere Experimente zum Beitrag der verschiedenen Senken (z.B. eine mögliche Abschirmung der Blasen durch Versetzungen) bei der Entmischung in Vorbereitung. Zum direkten Nachweis der Dekoration der Blasen bzw. der Versetzungen mit FA sollen sowohl Untersuchungen mit Hilfe der Röntgenkleinwinkel-streuung als auch mit einem hochauflösenden, analytischen Transmissionselektronen-mikroskop durchgeführt werden.

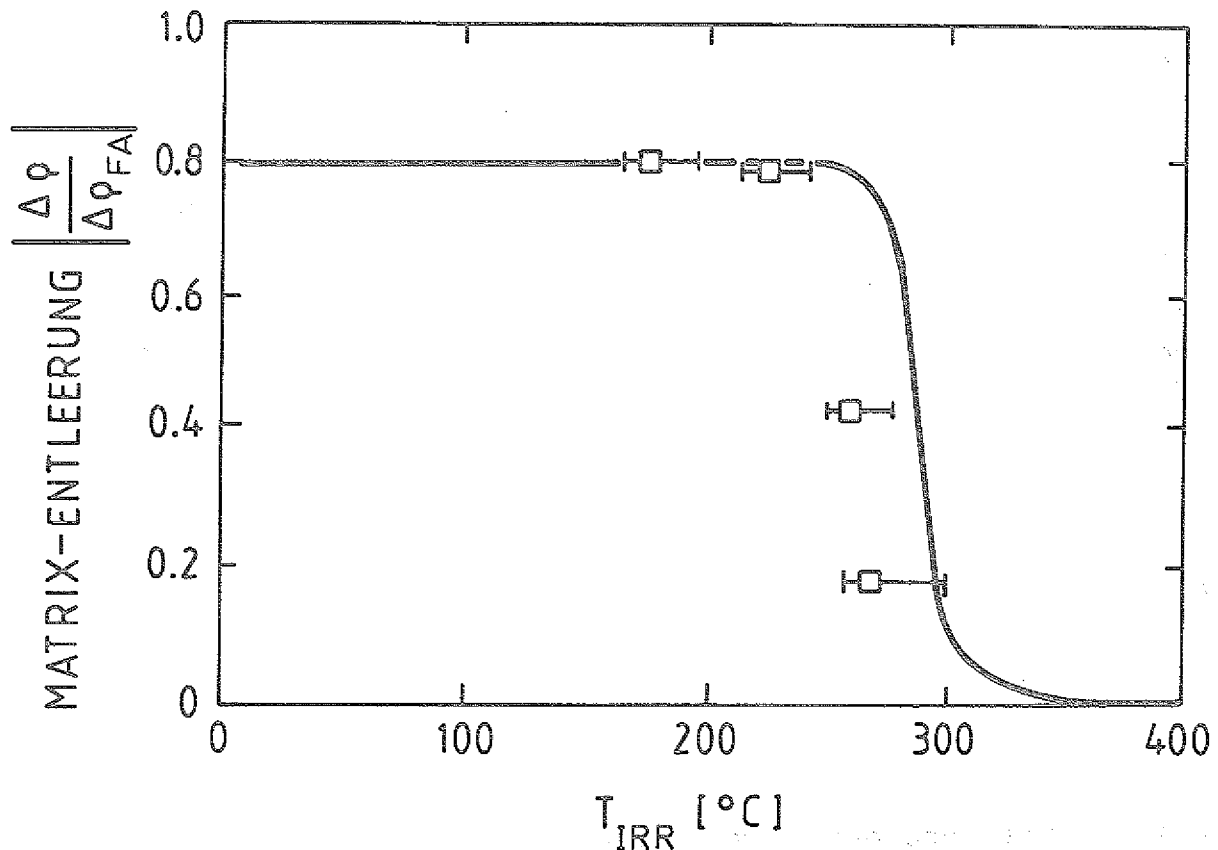
Weitere Aufschlüsse könnten Elektronenbestrahlungen bringen, da dabei keine Defektkaskaden gebildet werden.

6.1.3. Sättigung der Entmischung

In der Abbildung 6.2 sind die experimentell erreichten Sättigungswerte von $\left| \frac{\Delta \rho}{\Delta \rho_{FA}} \right|$ (Matrixentleerungen) für Au-1000 atppm Fe aufgetragen. Bei tieferen Temperaturen wird eine maximale Entleerung von $\left| \frac{\Delta \rho}{\Delta \rho_{FA}} \right| \approx 80 \%$ erreicht.

Die Beobachtung, daß $\left| \frac{\Delta \rho}{\Delta \rho_{FA}} \right|$ nur 0,80 und nicht den Wert 1 erreicht, könnte gemäß den Überlegungen in Kapitel 2.1 darauf hindeuten, daß die bestrahlungsinduzierten LS einen Rücklösungseffekt bewirken.

Abb. 6.2: Experimentell erreichte Entleerungen in Vergleich zu den theoretischen Sättigungswerten für die Entleerung als Funktion der Temperatur



Gemäß Glg. (2.36) sollte dann $M^{Max} = Y = 0,80$ gelten, woraus sich mit $A_V=4$, $c'_B=9 \times 10^{-6}$, $Z'=1,8 \times 10^{-2}$ und $c_s(0)=0,78 \times 10^{-3}$ ein Wert $\epsilon \approx 3$ ergeben würde. Da für die Rücklösungsstärke ϵ der bestrahlungsinduzierten LS per Definition $\epsilon \leq 1$ gelten muß, scheidet diese Deutung von M^{Max} aus.

Ein kleiner Bruchteil dieses Effekts könnte bei tiefen Temperaturen auch der möglichen zusätzlichen Bildung von kleinen Defektagglomeraten zugeschrieben werden, was aber nicht ausreichen wird den beobachteten Effekt zu deuten.

Die plausibelere Erklärung liegt wohl darin, daß der Beitrag der FA zum elektrischen Widerstand bei Entmischung nicht auf Null zurückgeht. Falls die an den Heliumblasen ausgeschiedenen FA noch mit ca. 10 % des Wertes $\Delta\rho_{FA}$ zum elektrischen Widerstand beitragen, wurde sich bei völliger Entmischung der experimentell beobachtete Wert $\left| \frac{\Delta\rho}{\Delta\rho_{FA}} \right| = 0,80$ ergeben.

Das Verhalten von M^{Max} bei hohen Temperaturen wird durch Glg. (2.39) gut beschrieben. Dabei kann die Temperatur, bei der der Sättigungswert der Entmischung zu geringeren Werten abknickt, zu ca. 270 °C abgeschätzt werden. Mit den Werten aus der Tabelle 2.2 für v_v und c_v^{th} und mit $A_v=4$, $c'_B=9 \times 10^{-6}$, $z'=0,22$ und $c_s(0)=0,78 \times 10^{-3}$ ergibt sich gemäß Glg. (2.39) der in der Abbildung 6.2 gezeigte theoretische Verlauf von M^{Max} . Dabei wurde bei tiefen Temperaturen $M^{Max}=0,80$ gesetzt.

Man erkennt eine kleine Temperaturverschiebung von ca. 20°C, die aber am Rande der Fehlerbalken liegt. Da die Temperatur unter Bestrahlung stark variiert, kann man nicht ausschließen, daß die Probestemperatur etwas zu niedrig abgeschätzt wurde (siehe Abb. 3.13).

6.2. Übrige Legierungen

In der Tabelle 6.1 sind die Ergebnisse für die in dieser Arbeit untersuchten Au-Legierungen zusammengefaßt. Für die Systeme AuNi, AuPt und AuTi wurde Entmischung unter Protonenbestrahlung beobachtet. In Tabelle 6.1 wurden die gemessenen Werte für $EFF(225^{\circ}C)$ und erste Abschätzungen der Aktivierungsenergie Δ angegeben. Diese Werte sind durch zukünftige Messungen der Temperaturabhängigkeit der Effektivitäten zu bestätigen.

Tabelle 6.1: Ergebnisse zu den Au-Legierungen

Matrix Au	Fremdatom							
	Al	Fe	Mn	Ni	Pt	Ti	V	Zn
Heliumimplantation	?	+	?	?	?	+	x	?
Anlassen	x	+	x	-	?	+	x	?
Protonenbestrahlung	+	+	-	+	+	+	-	-
Anlassen	x	+	-	+	+	x	-	-
$EFF(225^{\circ}C)$	x 0,14		x	0,06	0,11	0,01	x	x
Δ [eV]	0,22		(0,18)			(0,21)	(0,09)	
+ Effekt	- kein Effekt		? ungeklärt			x nicht gemessen		

In AuMn, AuV und AuZn wurde im Rahmen der Meßgenauigkeit keine Widerstandsänderung als Funktion der Protonendosis beobachtet.

Gemäß Glg.(2.32a) ergibt sich damit $c_s(0) \cdot \exp(\Delta/kT) < 0,01$, sodaß für $T = 225^\circ\text{C}$ die obere Grenze $\Delta < 0,1 \text{ eV}$ abgeschätzt werden kann.

Erholungsmessungen nach Tieftemperaturbestrahlungen an AuMn und AuZn zeigen nach /6.5/ eine Erholungsstufe bei $T \approx 180 \text{ K}$. Wenn diese Stufe als niedrigste Erholungsstufe des ZGA-FA-Komplexes gedeutet werden kann, so muß diese Erholung aufgrund der Beobachtungen in der vorliegenden Arbeit als die Dissoziation des Komplexes erklärt werden, wobei der Wert $E_i^{\text{Diss}} \approx 0,5 \text{ eV}$ abgeschätzt werden kann. Mit der oberen Grenze von $\Delta < 0,1 \text{ eV}$ läßt sich so eine untere Grenze der Wanderungsenergie des ZGA-FA-Komplexes in diesen Legierungen zu $E_i^m \geq 0,4 \text{ eV}$ angeben.

Für die Cu- und Ag- Legierungen sind in den Tabellen 6.2 und 6.3 die Ergebnisse der ersten Testexperimente aufgelistet.

Tabelle 6.2: Ergebnisse zu den Cu-Legierungen

Matrix Cu	Fremdatom	
	Ni	Si
Heliumimplantation	-	+
Anlassen	-	+
Protonenbestrahlung	-	+
Anlassen	-	+

Tabelle 6.3: Ergebnisse zu den Ag-Legierungen

Matrix Ag	Fremdatom						
	Al	Au	Ge	Mn	Pd	Pt	Zn
Heliumimplantation	+	-	+	-	?	x	+
Anlassen	+	-	+	-	x	-	?
Protonenbestrahlung	+	?	+	-	-	x	?
Anlassen	x	x	x	x	x	x	x

Bestrahlungsinduzierte Segregation zeigt sich in CuSi, AgAl und AgGe. Da in Cu und Ag keine Gleichgewichtsblasen vorliegen (s. Abschnitt 4.3) und unter Protonenbestrahlung in den reinen Proben eine Widerstandszunahme beobachtet wurde, werden für diese Systeme keine Abschätzungen zum Wert A gemacht.

Weitere Bestrahlungen zu verschiedenen Temperaturen an diesen Systemen sollen in Zukunft durchgeführt werden. Dazu müssen die Ag- und Cu-Legierungen jedoch nach der Implantation unter anderen Bedingungen angelassen werden, so daß sich eine stabilere Blasenstruktur bildet.

7. Zusammenfassung

Ziel dieser Arbeit war die Entwicklung einer Methode zur Untersuchung der Zwischengitteratom-Fremdatom-Wechselwirkung in verdünnten Legierungen. Hierzu wurde die Kinetik der bestrahlungsinduzierten Segregation der Fremdatome mittels elektrischer Widerstandsmessung verfolgt. Ursache für die bestrahlungsinduzierte Segregation ist das Mitschleppen von Fremdatomen durch die bei der Bestrahlung erzeugten Zwischengitteratome auf ihrem Weg zu den Senken. Dies kann in sehr effektiver Weise zu einer Entleerung der Matrix von substitutionellen Fremdatomen und zu deren Anhäufung an den Defektsenken führen.

Wesentliche experimentelle Gesichtspunkte für die Anwendung der geschilderten Methode waren einmal die Erzeugung von möglichst vielen freien Zwischengitteratomen durch intensive Bestrahlung mit Protonen, sowie der wohldefinierte Einbau von möglichst vielen, bei der Protonenbestrahlung stabilen Senken, in Form von kleinen Heliumblasen. Diese Bläschen wurden vor der Protonenbestrahlung durch eine homogene Implantation von Helium und geeignetes Anlassen der Proben erzeugt. Durch die so erreichte effektive Senkendichte (entsprechend einer atomaren LS-Konzentration von ca. 10^{-5}) war es möglich bei der Protonenbestrahlung (mit ca. 10^{-6} dpa/s) über einem großen Temperaturbereich die Senkendominanz für die Defektströme einzustellen.

Diese neue Methode zur Untersuchung der bestrahlungsinduzierten Segregation wurde am System AuFe ausführlich getestet. Weitere Experimente an einer Reihe verschiedenster Legierungen zeigten, daß die Methode allgemein anwendbar ist. Für AuNi, AuPt, AuTi, CuSi, AgAl und AgGe ergaben sich eindeutige

Segregationseffekte. Keine Segregationseffekte zeigten AuMn, AuV, AuZn, CuNi, AgMn und AgPd. Für die Systeme AuAl, AgAu und AgZn konnte nicht eindeutig entschieden werden, ob Segregationseffekte auftreten oder nicht.

Die über die elektrische Widerstandserniedrigung nachgewiesene Entleerung der Matrix von substitutionellen Fremdatomen zeigte einen typischen Verlauf mit der Bestrahlungsdosis, der durch eine Anfangssteigung und einen Sättigungswert charakterisiert war. Aus der Anfangssteigung konnte die Effektivität des Fremdatomtransports, d.h. die Zahl der pro Zwischengitteratom an die Senken abgelagerten Fremdatome gewonnen werden. Für Au-1000 atppm Fe lag diese Effektivität typischerweise bei 0,2...0,1 und zeigte als Funktion der Bestrahlungstemperatur ein Maximum bei ca. 150°C. Daraus mußte geschlossen werden, daß die ZGA-FA-Komplexe auf ihrem Weg zu den Senken teilweise dissoziieren, bzw. bei tieferen Temperaturen mit Leerstellen rekombinieren. Eine quantitative Analyse mit Hilfe von Ratengleichungen für die Ströme der Leerstellen, Zwischengitteratome, ZGA-FA-Komplexe und LS-FA-Komplexe lieferte unter Verwendung der elektronenmikroskopisch bestimmten Senkendichten, der bekannten Wanderungs- und Bildungsenergien für Leerstellen in Au erlaubten eine genaue Bestimmung der Differenz der Dissoziationsenergie und der Wanderungsenergie des ZGA-Fe-Komplexes. Der Wert $\Delta = E_i^{\text{Diss}} - E_i^{\text{m}}$ ergab sich zu $\Delta = (0,22 \pm 0,04) \text{ eV}$.

Aus dem Sättigungsverhalten konnte auf eine praktisch völlige Entleerung der Matrix von Fremdatomen bei tiefen Bestrahlungstemperaturen und hohen Bestrahlungsdosen geschlossen werden. Daraus folgt, daß die Segregation der Fremdatome über die beweglichen ZGA-FA-Komplexen wesentlich effektiver als eine mögliche Rücklösung über bewegliche

Komplexe von bestrahlungsinduzierten Leerstellen und Fremdatomen ist.

Bei hohen Temperaturen wird die Zahl der thermischen Leerstellen wesentlich größer als die Zahl der bestrahlungsinduzierten Leerstellen. Der dadurch hervorgerufene Anstieg der Rücklösung führt zu einem Abfall des Sättigungswertes der Matrixentleerung bei Temperaturen oberhalb 270°C. Dieser Abfall, sowie die nach Bestrahlung bei tiefen Temperaturen in Aufheizexperimenten im gleichen Temperaturbereich beobachtete thermische Rücklösung konnte in konsistenter Weise mit den aus Hochtemperaturmessungen bekannten Daten der thermischen Diffusion von Fe in Au erklärt werden.

8. Literaturverzeichnis

- 1.1 Jahresbericht 1985/86 der Kernforschungsanlage Jülich
- 1.2 W.Schilling, G.Burger, K.Isebeck und H.Wenzl in Vacancies and Interstitials in Metals, ed. A.Seeger, D.Schumacher, W.Schilling und J.Diehl, North-Holland (1969)
- 1.3 P.Ehrhart, K.H.Robrock und H.R.Schober in "Physics of Radiation Effects in Crystals", Vol. 13, North-Holland (1986), S. 3
- 1.4 P.H.Dederichs, C.Lehmann und H.R.Schober, J. Nucl. Mat. 69&70, 176 (1978)
- 1.5 R.Urban, JÜL Report 2134 (1987)
- 1.6 P.Vaessen, B.Lengeler und W.Schilling, Rad. Eff. 81, 277 (1984)
- 1.7 "The Physics of Irradiation Produced Voids", ed. R.S.Nelson, Harwell (1974)
- 1.8 R.Sizmann, J. Nucl. Mat. 69&70, 386 (1978)
- 1.9 L.K.Mansur, in "Kinetics of Nonhomogeneous Processes", ed. G.R.Freeman, Wiley-Interscience
- 1.10 R.Bullough und M.H.Wood, in "Physics of Radiation Effects in Crystals", Vol. 13, North-Holland (1986), S. 189
- 1.11 L.E.Rehn und P.R. Okamoto in "Phase Transformations during Irradiation", ed. F.V.Nolfi, Jr., Applied Science Publishers, London (1983), S 247
- 1.12 "Phase Transformations during Irradiation", ed. F.V.Nolfi, Jr., Applied Science Publishers, London (1983)
- 1.13 K.C. Russell in "Progress in Materials Science", ed. J. Christian, P.Haasen und T.B. Massalski, Pergamon Press, Oxford
- 1.14 M.Hansen, "Constitution of Binary Alloys", McGraw-Hill (1958), S. 62
- 1.15 R.P.Elliott, "Constitution of Binary Alloys", First Supplement, Mc.Graw-Hill (1965)
- 1.16 F.A.Shunk, "Constitution of Binary Alloys", Second

Supplement, Mc.Graw-Hill (1969)

- 1.17 W.G.Moffatt, Handbook of Binary Phase Diagrams, Vol.I-IV, General Electric Company (1982)
- 1.18 H.W.King, J. Mat. Sc. 1, 79 (1966)
- 1.19 Landolt-Börnstein, Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaften und Technik Gruppe III, Band 15-a, ed. J. Bass und K.H.Fischer, Springer (1982)
- 1.20 T.Hehenkamp in Point Defects and Defect Interactions in Metals, ed. J.Takamura, M.Doyama und M.Kiritani, Tokio(1982), S. 465

- 2.1 R.Bullough und M.R. Hayns, in SM Archives, Vol. 3, 73 (1978)
- 2.2 N.L.Peterson in "Properties of Atomic Defects in Metals", ed. N.L.Peterson und R.W.Siegel, Argonne (1976), S. 3
- 2.3 K.Sonnenberg und U.Dedek, Rad. Eff. 61, 175 (1982)
- 2.4 siehe /1.4/
- 2.5 W.Rupp, U.Ermert und R.Sizmann, Phys. Stat. Sol. 33, 509 (1969)
- 2.6 siehe /1.3/
- 2.7 L.K. Mansur, Act. Met. 29, 375 (1981)
- 2.8 A.D. Le Claire, J. Nucl. Mat. 69&70, 70 (1978)
- 3.1 siehe /1.4/
- 3.2 siehe /1.18/
- 3.3 siehe /1.19/
- 3.4 z. B. A.Matthiesen und C.Voigt, Ann. Phys. Chem. 122, 19 (1864)
- 3.5 J.F.Ziegler, "The Stopping and Ranges of Ions in Matter" Vol.4, Pergamon Press (1977)
- 3.6 S.Berger und F.Dworschak, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A 244, 48 (1986)
- 3.7 J.F.Ziegler, "The Stopping and Ranges of Ions in Matter" Vol.3, Pergamon Press (1977)
- 3.8 P.Jung, J. Nucl. Mat. 117, 70 (1983)

- 3.9 K.Herschbach, Phys. Rev. 130, 554 (1963)
- 3.10 P.Wienhold, JÜL Report 1391 (1977)
- 3.11 siehe /1.6/
- 3.12 F.Dworschak, G.Holfelder und H.Wollenberger, Rad. Eff. 59, 35 (1981)
- 3.13 siehe /1.2/
- 3.14 L.E.Rehn und P.R.Okamoto, in "Proceedings of the International Conference on Vacancies and Interstitials in Metals and Alloys", ed. C.Abromeit und H.Wollenberger, Trans Tech Publications (1987), S. 985

- 4.1 H.D.Keldenich, Diplomarbeit, Aachen (1986)
- 4.2 P.Jung, Analyse der Probenentgasungen, private Mitteilung
- 4.3 A.Gaber, JÜL Report 1860 (1983)
- 4.4 H.Trinkaus, Rad.Eff. 78, 189 (1983)
- 4.5 L.E.Murr, in "Interfacial Phenomena in Metals and Alloys", Addison-Wesley, Reading, MA (1975)
- 4.6 R.Bullough und T.M.Quigley, J. Nucl. Mat. 113, 179 (1983)

- 5.1 P.Ehrhart et al., wird veröffentlicht in " Materials Research Society Symposia Proceedings", Vol. 82
- 5.2 P.Ehrhart, private Mitteilung

- 6.1 "Smithells Metals Reference Book", ed. E.A.Brandes, Butterworths (6.Edition)
- 6.2 C.Corbel und J.Bigot, Phys. Lett. 79A, 127 (1980)
- 6.3 I.Tanaka et al., in "Proceedings of the International Conference on Vacancies and Interstitials in Metals and Alloys", ed. C.Abromeit und H.Wollenberger, Trans Tech Publications (1987), S. 653
- 6.4 siehe /3.12/
- 6.5 K.Nakata et al., in "Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals", ed. M.T.Robinson und F.W.Young, Jr., Gatlinburg (1975), S. 622

6.6 siehe /4.6/

6.7 Z.S.Basinski, J.S.Dugdale und A.Howie, Phil. Mag. 8, 1989
(1963)

9. Danksagung

Diese Doktorarbeit wurde am Institut für Festkörperforschung (Teilinstitut IX Gitterfehlordnung) der Kernforschungsanlage Jülich durchgeführt.

Herrn Prof. Dr. W. Schilling danke ich herzlich für die Themenstellung dieser Arbeit, für viele wertvolle Diskussionen und für sein stets förderndes Interesse.

Herrn Dr. P. Ehrhart danke ich für die vielen Hinweise sowie seine intensive Betreuung beim Zusammenschreiben dieser Arbeit.

Herrn Prof. Dr. B. Lengeler sei an dieser Stelle für sein ständiges Interesse in den vergangenen Jahren gedankt. Seine akkuraten Anregungen waren mir immer eine große Hilfe.

Weitere wertvolle klärende Diskussionen verdanke ich Herrn Dr. F. Dworschak. Aus seinem reichen Erfahrungsschatz war mir einiges von großem Nutzen.

Die Entwicklung und Herstellung des Probenhalters erfolgte in Zusammenarbeit mit der Abteilung Forschung-Metall der Fa. Degussa, Wolfgang-Hanau unter der Leitung des Herrn Dr. K. Eiermann. Ihm und seinen Mitarbeitern bin ich zu großem Dank verpflichtet.

Der Europäischen Gemeinschaft in Brüssel möchte ich für die finanzielle Unterstützung zur Durchführung der Bestrahlungsexperimente am Centro Comune di Ricerca Euratom in Ispra, Italien danken.

Ich möchte mich an dieser Stelle für den beispielhaften Einsatz der Bedienungsmannschaft des Zyklotrons des genannten europäischen Forschungszentrums unter der Leitung der Herren

Dr. G. Riccobone und Dr. M. Castiglioni bedanken.

Insbesondere half mir Herr B. Weckermann viele Probleme zu lösen und stand Tag und Nacht zu Verfügung. Ihm gegenüber bin ich zu großem Dank für die sehr freundschaftliche Betreuung während meiner Zeit in Ispra verpflichtet.

Dem Bedienungspersonal des Tandem-Beschleunigers, des Van-de-Graaff-Beschleunigers und des Kompakt-Zyklotrons des Instituts für Festkörperforschung der Kernforschungsanlage Jülich bin ich sehr dankbar für die intensive Zusammenarbeit und für seinen unermütlchen Einsatz.

An dieser Stelle möchte ich auch den Mitarbeitern der IFF-Werkstatt und der KFA-Glasbläserei für die mit hoher Präzision hergestellten Teile der verschiedenen Bestrahlungsaufbauten danken.

Namentlich möchte ich Frl. A. Lingens für die sorgfältige und zügige Probenherstellung danken. Nachdrücklich möchte ich mich bei Herrn U. Dedek für die langjährige, intensive Unterstützung bedanken. Manche Probleme konnten nur Dank seiner weitreichenden experimentellen Erfahrungen gelöst werden.

Die sorgfältige Anfertigung der Abbildungen lag in den Händen von Herrn K.H. Stange, Frau A. Arons, Frau G. Wassenhoven und Herrn W. Fisseler. Den Herren Dipl.-Phys. H.D. Keldenich und Dr. W. Jäger sei für die Überlassung der TEM-Bilder gedankt.

Schließlich bedanke ich mich für das korrekte Schreiben dieses Manuskriptes bei unserer Sekretärin Frl. M. Garcia. Sie nahm meine vielen Korrekturen ständig hin.

Alle Mitarbeiter des Instituts, die mich in irgendeiner Weise unterstützt haben und die ich nicht namentlich erwähnt habe, seien an dieser Stelle gedankt.

