



**Forschungszentrum Karlsruhe**  
Technik und Umwelt

**Wissenschaftliche Berichte**  
FZKA 6253

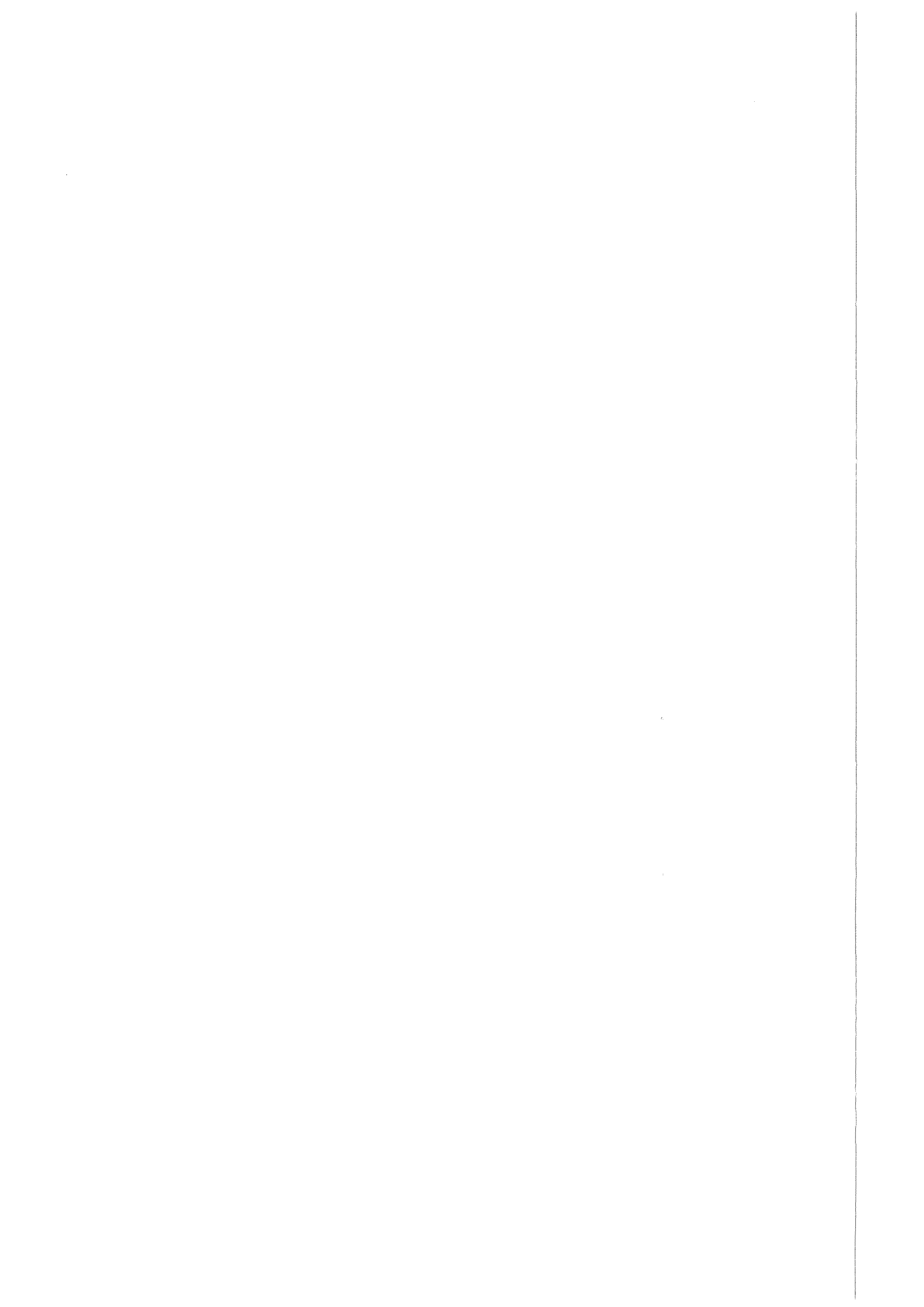
# **Strahlungsinduzierte Gitterschädigung leichter Materialien in Fusionsreaktorblankets**

**D. Leichtle**

Institut für Kern- und Energietechnik  
Projekt Kernfusion

**April 1999**

---



Forschungszentrum Karlsruhe

Technik und Umwelt

Wissenschaftliche Berichte

FZKA 6253

Strahlungsinduzierte Gitterschädigung  
leichter Materialien in Fusionsreaktorblankets

Dieter Leichtle

Institut für Kern- und Energietechnik  
Projekt Kernfusion

Von der Fakultät für Maschinenbau der Universität Karlsruhe (TH)  
genehmigte Dissertation

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe  
1999

**Als Manuskript gedruckt**  
**Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor**

**Forschungszentrum Karlsruhe GmbH**  
**Postfach 3640, 76021 Karlsruhe**

**Mitglied der Hermann von Helmholtz-Gemeinschaft**  
**Deutscher Forschungszentren (HGF)**

**ISSN 0947-8620**



## *Strahlungsinduzierte Gitterschädigung leichter Materialien in Fusionsreaktorblankets*

### **Kurzfassung**

Die hochenergetische und intensive Neutronenbelastung in plasmanahen Komponenten eines (d,t)-Fusionsreaktors stellt eine große Herausforderung für die Funktionalität und Integrität der verwendeten Materialien dar. Zur Beschreibung und Quantifizierung der Strahlenbelastung eignen sich die Schädigungsparameter im Rahmen des *dpa*-Konzepts. Sie kombinieren die Wahrscheinlichkeit für die Produktion eines primären Rückstoßkerns (PKA) in einer neutroneninduzierten Kernreaktion mit der Anzahl der in der sich anschließenden Kaskade von Gitteratomverlagerungen erzeugten stabilen Defekte. Üblicherweise werden solche Parameter und Schädigungsraten mit dem etablierten NRT-Lindhard-Modell berechnet.

Wegen dessen inhärenten Defiziten, nämlich Einschränkungen der zugrundeliegenden Physik und modellbedingter Unzulänglichkeiten, kann dieses nicht für leichtatomige, mono- und polyatomare Materialien im Blanket eines (d,t)-Fusionsreaktors verwendet werden. Deshalb wurden in dieser Arbeit Computersimulationen von Kollisionskaskaden auf der Basis der binären Stoßapproximation (BCA) mit dem Code MARLOWE durchgeführt. Der Code mußte dazu signifikant modifiziert und erweitert werden, insbesondere durch die konsistente Behandlung ionischer Wechselwirkungen und die neu eingeführte Modellierung quaderförmiger Strukturen. Mit dem solchermaßen verbesserten BCA-Modell ist es nun möglich, in überschaubaren Simulationszeiten den primären Defektzustand auch in polyatomaren, ionisch gebundenen Materialien und ausgewählten heterogenen Strukturen adäquat zu berechnen.

Das Modell wurde in dieser Arbeit auf fusionsrelevante Gitterschädigung in Beryllium und Lithiumsilikaten angewandt. Die resultierenden Schädigungsparameter zeigen zunächst beträchtliche Differenzen zu Standardrechnungen auf, so daß bisherige *dpa*-Raten in Beryllium um ca. 90 % nach oben, in den Lithiumsilikaten um ca. 30 % nach unten korrigiert werden sollten. Andererseits erlauben die spezifischen Auswertungen der BCA-Kaskaden weitergehende Aussagen im Hinblick auf die Beurteilung unterschiedlicher Bestrahlungsbedingungen. Auch Materialspezifikationen können, wie diese Arbeit gezeigt hat, bereits in der *dpa*-Schädigung bedeutsam sein, hierbei vor allem kristalline Modifikationen und atomare Bindungen. Selbst ausgedehnte lokale Inhomogenitäten reiner Phasen können lokal zu einer schwachen Modifizierung der Schädigungsraten führen.

# *Radiation Induced Displacement Damage in Light Mass Materials of Fusion Reactor Blankets*

## **Abstract**

Energetic and intense neutron exposures in near-plasma components of a (d,t)-fusion reactor are expected to cast strong demands on the functionality and integrity of materials. To describe and quantify this radiation exposure damage parameters as defined in the frame of the *dpa*-concept are appropriate. They combine the probability for the production of a primary recoil atom (PKA) in a neutron induced nuclear reaction with the number of stable defects in the evolving cascade of displaced lattice atoms. Calculations of such parameters and damage production rates are commonly based on the well established NRT-Lindhard model.

However, due to its inherent deficiencies, i.e. restrictions of the underlying physics and insufficiencies of the modelling, the NRT model is not appropriate for light mass, mono- and polyatomic materials in blankets of (d,t)-fusion reactors. Therefore, this work has focused on computer simulations of collision cascades within the bounds of the Binary Collision Approximation (BCA) using the code MARLOWE. Because of the specific requirements, the code had to be modified and extended significantly, particularly by a consistent treatment of ionic interactions and a new implementation of rectangular geometries. In this way, it is now possible to evaluate adequately the primary defect state in polyatomic, ionic materials and selected heterogeneous structures, without consuming too much computing time for the simulations.

The improved model was applied to fusion relevant displacement damage in Beryllium and Lithium silicates. In the first place, the resulting damage parameters exhibit significant differences to standard calculations so that previous published *dpa*-rates have to be corrected by +90 % in Beryllium and by -30 % in Lithium silicates. On the other hand, the detailed evaluation of BCA-cascades permits far-reaching statements for the assessment of various irradiation conditions. Material specifications, as shown by this work, can also be important already in the *dpa*-damage, especially crystalline modifications and atomic bonding. Even extended local structures in pure phases may be responsible for slight variations of local damage rates.

## *Inhaltsverzeichnis*

<b>1 EINFÜHRUNG IN DIE PROBLEMATIK</b>	<b>1</b>
1.1 Fusionsinduzierte Materialschädigung	1
1.2 Das dpa-Konzept	2
1.3 Zielsetzung der Arbeit	3
<b>2 KOLLISIONSKASKADEN UND PRIMÄRER DEFECTZUSTAND</b>	<b>5</b>
2.1 Konzepte	5
2.2 Binary Collision Approximation (BCA)	9
2.3 MARLOWE	17
2.3.1 Beschreibung des Codes	17
2.3.2 Ein Modell quasisimultaner Stöße	20
2.3.3 Modifikationen im Code	21
<b>3 ATOMISTISCHE WECHSELWIRKUNGEN</b>	<b>23</b>
3.1 Interatomares Potential	23
3.1.1 Repulsive Paarpotentiale	23
3.1.2 Attraktive abgeschirmte Coulomb-Potentiale	26
3.1.3 Coulomb-Potential in ionischen Festkörpern	27
3.2 Elektronischer Energieverlust	31
3.2.1 Der Hochenergieansatz: Bethe-Bloch und effektive Ladungen	32
3.2.2 Der Niederenergieansatz: Lindhard und Überbrückungsmodell	35
3.2.3 Der lokale Energieverlust: Oen-Robinson	37
3.2.4 Anpassung an Ladungsverteilungen und Bethe-Bloch-Formel	38
3.2.5 Bragg-Regel und semiempirische Korrektur	43
3.3 Kristallbindung	45
3.3.1 Lokale Paarpotentialbeschreibung	47
3.3.2 Das lokale Bindungsmodell	50
<b>4 KRISTALLMODELLIERUNG UND BCA-SIMULATIONSMODELL</b>	<b>53</b>
4.1 Kristallite	53
4.1.1 Präzision und reale Gitterpunkte	53
4.1.2 Voidgitterplätze und Zwischengitterpositionen	54
4.1.3 Kristallsuche	56
4.1.4 Voidlayer	57
4.2 Lateral begrenzte Layer	59
4.3 BCA und die Behandlung quasisimultaner Stöße	62
4.3.1 BCA-Formeln	62
4.3.1.1 Zeitintegral für attraktive Potentiale	63
4.3.1.2 Minimaler Stoßabstand für Coulomb-Potentiale	65
4.3.1.3 Inelastische BCA-Stoßkinematik	67

4.3.2 Quasisimultane Stöße	72
4.3.2.1 Targetsuche	74
4.3.2.2 Stoßauswertung und Prüfung der Quasisimultanität	75
4.3.2.3 Schema des neuen Quasisimultan-Modells	80
4.4 Identifizierung von Defekten	82
4.4.1 Rekombination und Stabilität von Punktdefekten	82
4.4.2 Punkt- und Clusterdefekte	86
<b>5 KASKADENSIMULATIONEN</b>	<b>91</b>
5.1 Konzeption und Materialkonfiguration des Blankets eines Fusionsreaktors	91
5.2 Targetmodellierung	93
5.2.1 Beryllium	93
5.2.2 Lithiumorthosilikat	95
5.2.3 Primäre Rückstoßkerne	101
5.3 Parameteranalyse: physikalische Eingangsgrößen	103
5.3.1 Potentiale: Beryllium	104
5.3.2 Potentiale: $\text{Li}_4\text{SiO}_4$	110
5.3.3 Inelastischer Energieverlust: Beryllium	114
5.3.4 Inelastischer Energieverlust: $\text{Li}_4\text{SiO}_4$	115
5.3.5 Kristallbindung: Beryllium	116
5.3.6 Kristallbindung: $\text{Li}_4\text{SiO}_4$	119
5.4 Parameteranalyse: BCA-Modell und quasisimultane Stöße	122
5.4.1 Verbesserte Stoßintegrale: Beryllium	122
5.4.2 Potential-Cutoff: $\text{Li}_4\text{SiO}_4$	123
5.5 Parameteranalyse: Modellparameter	125
5.5.1 Cutoff-Energie: Be	125
5.5.2 Cutoff-Energie: $\text{Li}_4\text{SiO}_4$	127
5.5.3 Stoßparameter: Be	128
5.5.4 Stoßparameter: $\text{Li}_4\text{SiO}_4$	129
5.5.5 Kristallsuchradius: $\text{Li}_4\text{SiO}_4$	131
5.6 Referenzmaterial	132
5.6.1 Beryllium	132
5.6.1.1 Reines Material	133
5.6.1.2 Temperaturabhängigkeit	138
5.6.1.3 Reines Material bei 900 K	141
5.6.1.4 Verunreinigtes Material	143
5.6.2 $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ - $\text{Li}_2\text{SiO}_3$	145
5.6.2.1 Reines Material	145
5.6.2.2 Reines Material bei 1180 K	151
5.6.2.3 Verunreinigtes Material	155
5.7 Lokale Inhomogenitäten	160
5.7.1 Körner: Beryllium	161
5.7.2 Körner: $\text{Li}_4\text{SiO}_4$	167
5.7.3 Phasen: $\text{Li}_4\text{SiO}_4$	168
5.7.4 Phasen: Beryllium	171

---

5.7.5 Hohlräume: Beryllium	173
5.7.6 Gasblasen: Beryllium	175
5.8 Ergebnisse der Kaskadensimulationen und Schlußfolgerungen	178
5.8.1 Parameteranalysen	179
5.8.2 Defektproduktion in Beryllium und Lithiumsilikaten	182
5.8.3 Lokale Inhomogenitäten	184
<b>6 SCHÄDIGUNGSRECHNUNGEN</b>	<b>191</b>
6.1 Methodik der Schädigungsberechnung	191
6.2 Primary-Knock-On (PKA)-Spektren	194
6.2.1 Neutroneninduzierte Reaktionen	195
6.2.2 Energieverteilung der PKA's	200
6.2.3 Flußgemittelte Spektren der PKA's	202
6.3 Schädigungsparameter	205
6.3.1 Beryllium	207
6.3.2 Lithiumorthosilikat	212
6.4 Vergleiche mit anderen dpa-Rechnungen	221
6.4.1 Beryllium	222
6.4.2 $\text{Li}_4\text{SiO}_4$	224
6.5 Ergebnisse der Schädigungsrechnungen und Schlußfolgerungen	229
<b>7 ZUSAMMENFASSUNG</b>	<b>235</b>
<b>8 ANHANG: Typische Kaskadenstrukturen</b>	<b>239</b>
<b>9 LITERATURVERZEICHNIS</b>	<b>255</b>
<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>263</b>
<b>Tabellenverzeichnis</b>	<b>267</b>
<b>Glossar</b>	<b>269</b>

# 1 EINFÜHRUNG IN DIE PROBLEMATIK

## 1.1 Fusionsinduzierte Materialschädigung

Energieerzeugung auf der Basis der Fusion von Deuterium und Tritium,  $d + t \rightarrow \alpha(3,5 \text{ MeV}) + n(14,1 \text{ MeV})$ , in magnetisch eingeschlossenen Plasmen scheint im Licht von Plasma- und Tokamakexperimenten und deren Fortschritten in den letzten Jahren zukünftig erreichbar zu sein. Die in diesen Experimenten erzielten Ergebnisse zeigen, daß ein magnetischer Einschluß des heißen (d,t)-Plasmas in einem Tokamak möglich ist. Entsprechende Extrapolationen auf der Basis anerkannter Skalierungsgesetze deuten darauf hin, daß bei passender Wahl der Betriebsparameter und der Dimensionen des Tokamaks eine Leistungserzeugung oberhalb des Break-even (Fusionsleistung = Plasmaheizleistung) erzielt werden kann.

Der nächste Schritt auf dem Weg zu einem kommerziellen Leistungsreaktor ist der Bau und Betrieb einer Tokamakmaschine (Next Step Device), die die wissenschaftliche und technologische Basis zur Erzeugung von Fusionsenergie demonstrieren soll. In einer internationalen Kooperation wurde dazu das ITER-Projekt (International Thermonuclear Experimental Reactor) gestartet, das mittlerweile seine „Engineering Design Activities“ (EDA) abgeschlossen hat. Wesentliche Prinzipien, die im Design eines Tokamak der nächsten Generation implementiert werden sollen, sind die hohe Verfügbarkeit und Verlässlichkeit über eine lange Betriebsphase, sicherheitsrelevante Auslegungen, die Verwendung möglichst reaktornaher Technologien, sowie einfache Konstruktion und Betrieb. Die Erfahrungen, die mit einer solchen Maschine, wie z.B. ITER, gemacht werden, sollen dann in einen Demonstrationsreaktor (DEMO) einfließen, der bereits wesentliche Charakteristiken eines Leistungsreaktors aufweisen soll.

ITER selbst wird eine Fusionsmaschine sein, in der zum ersten Mal der Einfluß der Bestrahlungsbedingungen einen wesentlichen Faktor im Design und der Auswahl von Reaktorkomponenten darstellt [1, 2]. Deshalb stellt die Materialbelastung große Anforderungen an die technologische Umsetzung der Kernfusion. Die Entwicklung geeigneter Materialien, die den hohen Strahlen- und Wärmebelastungen ohne Verlust ihrer funktionalen Integrität widerstehen können, ist eine zentrale Aufgabe innerhalb des Fusionstechnologieprogrammes.

Dabei muß man zunächst zwei Systembereiche mit sehr unterschiedlichen Bedingungen trennen. Die direkt dem heißen Plasma zugewandten Komponenten, nämlich die Erste Wand und der Divertor, sind dem hohen Wärmefluß und dem Beschuß durch Plasmateilchen (d, t,  $\alpha$ ,  $e^-$ ) ausgesetzt. Neben der extremen thermischen Belastung verursachen die niederenergetischen Ionen und Elektronen oberflächennahe Schäden (Sputtering und Erosion).

Die 14 MeV-Neutronen haben auf der anderen Seite freie Weglängen von einigen Zentimetern und können so durch die Wandbeschichtungen bis tief in die dahinterliegenden Struktu-

ren, Blanket, Abschirmung, Vakuumgefäß und Magnetfeldspulen, vordringen. Dort werden sie vorrangig durch elastische Streuung an Atomkernen moderiert und in Kernreaktionen unter Emission von Photonen, leichten geladenen Teilchen oder wieder Neutronen absorbiert. Die in diesen Streuvorgängen getroffenen Atomkerne erhalten nun im allgemeinen einen beträchtlichen Rückstoß und können mit hoher kinetischer Energie von ihrem Gitterplatz verlagert werden, um dann weitere Rückstoßkerne freizusetzen. Die sich so ausbreitende Kaskade von energetischen Rückstoßkernen, führt zunächst nach Rekombination und Annihilation innerhalb der Kaskade („intrakaskadisch“) zu einer primären räumlichen Verteilung von punktförmigen Defekten. Je nach Umgebungstemperatur sind diese mobil und können sich an Defektsenken wie Korngrenzen, Verunreinigungen oder Versetzungen anlagern, dort eventuell rekombinieren oder aber zu Defektagglomeraten wachsen. Solche Ansammlungen kondensieren vorrangig als planare Versetzungsringe oder im Falle von Leerstellen auch als dreidimensionale Cluster (Voids). Darüber hinaus ist auch Ausscheidungsbildung möglich.

Durch Einfang einzelner Defekte und durch thermische Emission können diese sekundären Defektstrukturen ihre Größe und Form ändern, aufbrechen und mit anderen Defekten und Versetzungen wechselwirken unter teilweiser Auflösung, oder aber unter Bildung ausgedehnter Strukturen. Die sich so entwickelnde Mikrostruktur aus einzelnen Punktdefekten, Defektagglomeraten, Versetzungen, ausgeschiedenen Phasen, chemischer Unordnung usw. hat dann abhängig von den Bestrahlungsbedingungen wesentlichen Einfluß auf makroskopische Schädigungseffekte. Diese betreffen sowohl für metallische als auch keramische Werkstoffe deren mechanische (Zugfestigkeit, Bruchfestigkeit, Versprödung, Bestrahlungskriechen) und dimensionale Eigenschaften (Gitteraufweitung, Voidschwellen, Phasensegregation). In keramischen Materialien sind zudem Änderungen in der thermischen Leitfähigkeit, der Diffusivität und elektrischer Kenngrößen, wie elektrische Leitfähigkeit und Verlusttangens, von entscheidender Bedeutung für ihre Verwendung als Tritiumbrüter, Isolatoren und Hochfrequenzfenster.

### **1.2 Das dpa-Konzept**

Am Ausgangspunkt all dieser Materialveränderungen stehen also die durch neutroneninduzierte Reaktionen freigesetzten Rückstoßkerne in den jeweiligen Materialien. Diese PKA's („Primäry Knock on Atoms“) führen ihrerseits zu einer Kaskade weiterer Kollisionen zwischen Atomen in einem eng lokalisierten Bereich des Festkörpers. Eventuell können diese bei hinreichend großem Energieübertrag selbst als freie Rückstoßkerne (SKA's, Secundäry Knock on Atoms) in der Kaskade partizipieren und schließlich mit Gitterfehlstellen rekombinieren oder aber stabile Punktdefektpaare bilden.

Die Anzahl der durch einen primären Rückstoßkern erzeugten Gitteratomverlagerungen bzw. stabilen Defekte kann als Basis für die Definition eines Schädigungsparameters dienen, der in

der Lage ist, verschiedene Bestrahlungsbedingungen zuverlässig vergleichen zu können. Außerdem sollte es auf dieser Grundlage möglich sein, Korrelationen zwischen schädigender Bestrahlung und resultierenden Materialveränderungen herzustellen.

Ein solcher Parameter stellt, wenigstens prinzipiell, die Verlagerungsrate  $dpa$  pro Sekunde (Displacements per Atom) dar. Sie kombiniert die Wahrscheinlichkeit für die Erzeugung von PKA's mit der Anzahl der durch das jeweilige PKA erzeugten stabilen Defekte, integriert über die Flußdichte der bestrahlenden Teilchen.

Die  $dpa$ -Rate wird üblicherweise unter Verwendung des etablierten Strahlenschädigungsmodells [3] nach Norgett, Robinson und Torrens (nach den Autoren oft als NRT-Modell bezeichnet) berechnet. Dieses Modell beschreibt die Anzahl der Defekte  $N_d$ , die durch die Abbremsung eines PKA's mit definierter Energie, Masse und Kernladung in einem amorphen, monoatomaren Festkörper (mit ebenfalls definierter Masse und Kernladung) entstehen. Dazu implementiert es die Energiepartitions-Theorie nach Lindhard [4] mit Energieüberträgen auf Atome und Elektronen. Nur der elastisch transferierte Anteil auf Atomkerne, die Schädigungsenergie  $E_{dam}$ , ist verantwortlich für die Ausbildung der Kollisionskaskade. Unter Verwendung einer einfachen Schwellenenergie für Verlagerungen (in der Größenordnung von 40 eV) ist es dann möglich, die Anzahl sekundärer Verlagerungen zu berechnen.

Das Modell weist jedoch, was seine Eignung für fusionsrelevante Strahlenschädigung in leichtatomigen, mono- und polyatomaren Festkörpern anbelangt, entscheidende Defizite auf. Zum einen ist die zugrundeliegende Physik beschränkt auf niederenergetische, zumindest mittelschwere Atome in Targets derselben Masse und Kernladung. Zum anderen werden wichtige äußere Parameter wie Kristallstruktur, Dichte, Temperatur und heterogene Materialkonfigurationen vernachlässigt. Während der erste Bereich über die Modifizierung der Eingangsdaten in der Ableitung der Lindhard'schen Theorie einer Verbesserung prinzipiell zugänglich ist, scheint eine analytische Theorie wie diese den Anforderungen aus dem zweiten Bereich nicht zu genügen.

### 1.3 Zielsetzung der Arbeit

Ziel dieser Arbeit soll es aber sein, für ausgewählte leichte Materialien in Fusionsreaktorblankets (Beryllium und Lithiumorthosilikat) verlässliche Schädigungsparameter zu berechnen. Die speziellen Anforderungen, nämlich hochenergetische, intensive Neutronenbestrahlung, leichtatomige, polyatomare, z.T. auch ionisch gebundene Materialien, sowie heterogene Gefüge und Phasen, können im Rahmen herkömmlicher analytischer Methoden (wie eben des NRT-Modells, s. auch [5]) nur ungenügend berücksichtigt werden. Deshalb sollen die durch primäre Rückstoßkerne initiierten Stoßkaskaden in Computersimulationen auf der Basis der binären Stoßapproximation (BCA, Binary Collision Approximation, [6]) untersucht werden (Kapitel 2.2). Zum Einsatz kommt dabei der Code MARLOWE (Kapitel 2.3), der jedoch umfas-



send an die oben skizzierten Bedürfnisse angepaßt werden muß (näheres in Kapitel 2.3.3). Dazu sollen die benötigten Projektil-Target-Wechselwirkungen implementiert und das Kristallitmodell präzisiert und erweitert werden. Außerdem müssen das BCA-Kollisionsmodell umfassend neu konzipiert und geeignete Routinen zur Defektidentifizierung und -charakterisierung zusammengestellt werden.

Die adaptierte Version des MARLOWE-Codes soll dann zur Simulation von Kollisionskaskaden in Beryllium und  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  gemäß den skizzierten Bedingungen in einem (d,t)-Fusionsreaktor eingesetzt werden. Um die Sensitivität der eingebrachten Modifikationen bzw. der verwendeten Simulationsparameter auf die Defekterzeugung zu untersuchen, werden umfangreiche Parameteranalysen vorgenommen (Kapitel 5.3 bis 5.5). Anschließend sollen die für die Verlagerungsschädigung im Blanket relevanten Simulationen auf der Basis von Referenzmaterialdaten und geeignet gewählten Simulationsparametern durchgeführt werden (Kapitel 5.6 ff.). Dies betrifft nicht nur reine Materialien, sondern auch solche bei blanketttypischen Temperaturen, sowie ausgewählte lokal inhomogene Gefügestrukturen (Korngrenzen, Hohlräume, Gasblasen und Fremdphasen).

Die Ergebnisse dieser Simulationen stellen die wesentliche Datenbasis zur abschließenden Berechnung der Schädigungsparameter in den beiden Materialien dar (Kapitel 6). Ein detaillierter Vergleich der Schädigungsdaten, die im Rahmen dieser Arbeit berechnet wurden, mit solchen aus einfacheren Modellen (NRT-Lindhard) und Schädigungs-codes (SPECOMP / SPECTER [7, 8]) soll schließlich die charakteristischen Ergebnisse und Schlußfolgerungen für die Anwendbarkeit des hier entwickelten Schädigungsmodells auf andere leichtatomige, mono- und polyatomare Materialien aufzeigen.

## 2 KOLLISIONSKASKADEN UND PRIMÄRER DEFECTZUSTAND

### 2.1 Konzepte

Die zeitliche und räumliche Entwicklung von Kollisionenkaskaden, beginnend mit der Erzeugung des PKA's bis hin zur Ausbildung der Defektmikrostruktur, vollzieht sich in mehreren, sich kontinuierlich ablösenden Phasen, deren Charakterisierung jeweils spezifischer methodischer Ansätze bedarf [9].

Die ballistische Phase (typische Zeitskala etwa  $1 \text{ ps} = 10^{-12} \text{ s}$ ), in der alle Atome durch wechselseitige Stöße von ihren Gitterplätzen freigesetzt werden bis keine weiteren Verlagerungen mehr auftreten können, und die anschließende Relaxationsphase (10 ps) mit Thermalisierung und Neuformierung der in der ballistischen Phase erzeugten Defekte können adäquat in analytischen bzw. numerischen Transporttheorien (s. [4, 5, 10]) oder in atomistischen Computersimulationen (s. [11, 12]) behandelt werden. Für die anschließende Ausheilungs- bzw. Diffusionsphase (1  $\mu\text{s}$  ... 1 s) eignen sich makroskopische Methoden (thermisch aktivierte Diffusion, Reaktionskinetik, [13, 14]) zur Untersuchung der Punktdefektausbreitung, -agglomeration und -annihilation. Schließlich können über Reaktionsraten-Theorien [15, 16] auch die Kinetik komplexer Mikrostrukturen (Cluster, Versetzungen usw.) behandelt werden.

Es ist offensichtlich, daß eine umfassende detaillierte Beschreibung der vollständigen Stoßkaskaden- bzw. Defektentwicklung praktisch undurchführbar ist. Andererseits kann die Berechnung eines noch genauer zu definierenden primären Defektzustands (PDS, Primär Defect State) an einem bestimmten Abschnitt ein zuverlässiger Ansatzpunkt für weitere, nachgeschaltete Simulationen oder Rechnungen sein. Mehr noch, die Defektkonzentration nach Abschluß der ballistischen Phase definiert einen Schädigungszustand, der zwar wesentliche spezifische Materialeigenschaften auf atomistischer Skala beinhaltet (oder zumindest beinhalten kann), aber noch universell genug ist, um eine breite Extrapolation zu ermöglichen. Diese Wahl des PDS ist sicherlich nicht eindeutig; so ist es durchaus angemessen als solchen erst die Verteilung nach Abschluß der athermischen Ausheilungsphase zu definieren (s. beispielsweise [17]). In dieser Arbeit wird jedoch dieser PDS verwendet, insbesondere weil er eine logische und konsequente Erweiterung des NRT-*dpa*-Konzepts erlaubt.

Fundament dieses Modells ist, wie bereits erwähnt, die Energiepartitions-Theorie von Lindhard et al. [4]. Diese leitet sich aus einer linearen Boltzmann-Transportgleichung für eine additive Schädigungsgröße ab, die innerhalb der Stoßkaskade zwischen identischen Atomen in jeweils unkorrelierten Ereignissen geändert wird. Im konkreten Fall handelt es sich dabei um die Schädigungsenergie  $E_{dam}$ . Unter einigen Annahmen (u.a. Separation von ionischen und elektronischen Wechselwirkungen, Vernachlässigung der relativen Energieverluste an Elek-

tronen) erhält man die folgende integro-differentielle Gleichung für  $E_{dam}$  in Abhängigkeit von der kinetischen Energie  $T$  des primären Projektils:

$$\frac{dE_{dam}(T)}{dT} S_e(T) = \int d\sigma_{el} \{E_{dam}(T-T') - E_{dam}(T) + E_{dam}(T')\} \quad (1)$$

mit dem elektronischen Energieverlustquerschnitt  $S_e(T)$  und dem differentiellen Wirkungsquerschnitt für elastische Streuung zweier Atome  $d\sigma_{el}$ . In der Lindhard'schen Formulierung werden die LSS-Formel  $k\sqrt{E}$  [18] und das Thomas-Fermi-Atommodell verwendet. Die Integration der rechten Seite erstreckt sich über alle erlaubten Sekundärenergien  $T'$ .

Die numerische Approximation zur Lösung dieser Lindhard-Gleichung wird dann anstelle der kinetischen Energie  $T$  in einer modifizierten Kinchin-Pease-Formel [3] eingesetzt. Demnach erhält man die Anzahl permanenter Verlagerungen gemäß

$$N_d(T) = \begin{cases} 0 & ; 0 \leq E_{dam} < E_d \\ 1 & ; E_d \leq E_{dam} < 2,5E_d \\ \kappa \frac{E_{dam}}{2E_d} & ; 2,5E_d \leq E_{dam} \end{cases} \quad (2)$$

Dabei ist  $E_d$  eine feste, isotrope Verlagerungsschwelle im Targetmaterial, oberhalb derer spontane Rekombination vermieden und ein stabiles Frenkeldefektpaar gebildet wird. Der Effektivitätsfaktor  $\kappa$ , der die Abweichungen des interatomaren Potentials vom idealen Modell einer harten Kugel beschreibt, ist nahezu unabhängig von der Energie  $T$ , außer für  $T \rightarrow E_d$ , und wird mit dem Wert 0,8 angegeben.

Die Schädigungsenergie wird nach folgender Vorschrift bestimmt:

$$E_{dam} = \frac{T}{1 + k \cdot g(\varepsilon)} \quad (3)$$

$$g(\varepsilon) = 3,4008 \cdot \varepsilon^{1/6} + 0,40244 \cdot \varepsilon^{3/4} + \varepsilon$$

$$k = 0,1337 \cdot Z_1^{1/6} \left( \frac{Z_1}{M_1} \right)^{1/2}$$

$$\varepsilon = T \frac{a M_2}{Z_1 Z_2 e^2 (M_1 + M_2)}$$

$$a = \left( \frac{9\pi^2}{128} \right)^{1/3} \frac{a_0}{Z^{1/3}}; \quad Z^{2/3} = Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3}$$

$k$  ist die Proportionalitätskonstante im LSS-Querschnitt,  $\varepsilon$  die reduzierte Energie (dimensionslos) und  $a$  die Abschirmlänge des Thomas-Fermi-Potentials.

Charakteristische Merkmale dieser Funktion  $E_{dam}(T)$  sind ein zunächst linearer Anstieg mit  $T$  und bei hinreichend großen Energien eine Absättigung. In diesem Bereich, dem sogenannten Lindhard-Plateau, verhindert der im LSS-Modell unbegrenzt anwachsende inelastische Energieverlustquerschnitt eine Zunahme der elastischen Energieüberträge.

Ist die Energieverteilung der PKA's in Abhängigkeit von der Energie  $E$  des einfallenden Neutrons,  $\sigma_{PKA}(E, T)$ , bekannt, so kann damit die Verlagerungswahrscheinlichkeit im bestrahlten Material bestimmt werden. Diese Größe nennt man den Verlagerungsquerschnitt  $\sigma_D(E)$  [19, 20] (in barn):

$$\sigma_D(E) = \int_{T_{min}}^{T_{max}} \sigma_{PKA}(E, T) N_d(T) dT \quad (4)$$

Alternativ, unter Verwendung der Schädigungsenergie  $E_{dam}$  anstelle der Defektanzahl  $N_d$ , eignet sich der Schädigungsenergiequerschnitt (in barn·eV)

$$\sigma_{dam}(E) = \int_{T_{min}}^{T_{max}} \sigma_{PKA}(E, T) E_{dam}(T) dT \quad (5)$$

da er unabhängig ist von der jeweils gewählten Verlagerungsschwelle  $E_d$ . Im übrigen erweist sich  $E_{dam}$  in unterschiedlichen Schädigungsanalysen als ein relativ konstanter Parameter, während die Zahl der Defekte  $N_d$  (bzw. die Verlagerungsschwelle  $E_d$ ) ausgesprochen sensitiv und variabel von der verwendeten Methodik und den gewählten Eingabeparametern abhängt (vgl. [9, 21, 22]).

Die  $dpa$ -Rate ist die Reaktionsrate für Verlagerungen, quantifiziert durch den Verlagerungsquerschnitt  $\sigma_D(E)$ , in einem vorgegebenen Neutronenfluß  $\Phi(E)$ :

$$dpa/s = \int \sigma_D(E) \Phi(E) dE \quad (6)$$

Die Schädigungsparameter  $\sigma_D(E)$ ,  $\sigma_{dam}(E)$  und  $dpa/s$  hängen also zum einen von neutronenphysikalischen Parametern ab, zum anderen - und das ist entscheidend - von einer vernünftigen Beschreibung des PDS und der verlässlichen Angabe entsprechender Kenngrößen.

Der PDS kann, wie bereits erläutert, nicht nur über eine lineare Transporttheorie abgeleitet werden, sondern ist auch direkten, atomistischen Computersimulationen (CS) zugänglich (s.

dazu [11, 23]). Während eine analytische Theorie im wesentlichen eine statistische Beschreibung der Kaskade verwendet und als Resultat wieder produziert, stellen CS prinzipiell „Einzelfall“-Betrachtungen dar. Der Vorteil einer transporttheoretischen Behandlung liegt in den für eine schnelle Auswertung geeigneten analytischen oder zumindest numerisch zu lösenden Gleichungen für die zu berechnenden Schädigungsgrößen. Dies wird in CS kompensiert durch eine hohe Flexibilität in der Modellierung und der inhärenten Fähigkeit, einzelne Kaskaden zu visualisieren.

Zwei Klassen von CS-Modellen werden im allgemeinen unterschieden: Molekulardynamik (MD) als physikalisch strengere und binäre Stoßapproximation (BCA) als simulationstechnisch effektivere Methodik. In Simulationen auf Basis der MD (auch als Classical Dynamics oder Full Dynamics bezeichnet, [24, 25]) werden gekoppelte klassische Bewegungsgleichungen eines Systems von Gitteratomen (innerhalb einer sogenannten computational cell) simultan integriert. Wegen der finiten Größe der computational cell müssen jedoch geeignete Randbedingungen (periodisch, fest ...) definiert werden. Typische Anwendungen der MD liegen in der Analyse von Gleichgewichtseigenschaften in Festkörpern, Stabilität und Dynamik von Punktdefekten bis hin zur Untersuchung der Ausbildung und Kinetik von Defektmikrostrukturen. Zwar können interatomare Paarpotentiale verwendet werden (insbesondere für hochenergetische Atomkollisionen), realistischer sind jedoch Vielkörperpotentiale. Für einfache Materialien und Kristallstrukturen liegen solche vor (beispielsweise für fcc-Metalle, Si, SiC) oder können aus theoretischen Modellen entwickelt werden. Ungleich komplizierter ist deren Bestimmung für Verbindungen oder ionische Kristalle.

MD-Codes sind prinzipiell in der Lage, Kollisionskaskaden bis etwa zum Abschluß der Relaxationsphase (um 10 ps), oder sogar darüber hinaus, zu simulieren. Tatsächlich erfordert die numerische Integration der Bewegungsgleichungen gerade für hohe PKA-Energien enorme Rechenkapazitäten, so daß selbst mit beschleunigenden Verfahren (z.B. BCA-MD-Hybridmodelle) und massiv parallelem Rechnereinsatz hochenergetische Kaskadensimulationen in statistisch relevanter Zahl zu teuer bzw. impraktikabel sind.

BCA-Codes auf der anderen Seite zerlegen die Kollisionskaskade in ein System unabhängiger Zweikörperstöße [26], die ihrerseits lediglich über ihre asymptotischen, geradlinigen Trajektorien ausgewertet werden. Zugrundegelegt werden dabei in der Regel repulsive, kurzreichweitige Paarpotentiale. Aufgrund dieser Methodik eignen sich BCA-Simulationen für hochenergetische Kaskaden in Verbindungen oder Legierungen von kristalliner oder auch amorpher Form.

Dabei werden zwei deutlich abgegrenzte BCA-Typen unterschieden [27]. In MC-Codes (Monte Carlo) bestimmen stochastische Verteilungen die Lokalisierung von Targetatomen und die jeweils vorliegenden Stoßparameter. Sie sind deshalb in natürlicher Weise zur Simulation amorpher Festkörper prädestiniert. BC-Codes (Binary Crystal) dagegen setzen, wie

MD-Codes, auf Kristallitmodelle, in denen Atome jeweils deterministisch verfolgt werden können.

Beiden Varianten gemeinsam ist der Vorteil sehr schneller Simulationen, die selbst für Kaskaden im MeV-Bereich statistische Auswertungen in überschaubarer Rechenzeit ermöglichen. Begrenzt wird ihre Anwendung jedoch bei niedrigen Energien der beteiligten Atome, da hierbei vermehrt Mehrkörpereffekte eine Rolle spielen. Solche sind in der BCA explizit ausgeschlossen, können jedoch durch die Verwendung von Kristallbindungsenergien bzw. durch eine geeignete Behandlung quasisimultan auszuwertender Zweikörperkollisionen approximiert werden.

Zusammenfassend scheinen BCA-Simulationen geeignet zu sein, mit hoher Statistik hinreichend realistische Schädigungsparameter ( $dpa$ ) des PDS zu gewinnen. Ein BC-Code bietet sich an, um komplexe polyatomare Materialien und heterogene Strukturen zu modellieren.

Im folgenden soll dazu zunächst das Herzstück dieser Simulationen, das Prinzip der binären Stoßapproximation, erläutert werden. Anschließend wird der in dieser Arbeit eingesetzte Code MARLOWE vorgestellt und seine Eignung für die hier zu untersuchenden Materialien im Fusionsneutronenfeld und der damit verbundenen spezifischen Anforderungen überprüft. Daraus ergeben sich dann konkrete Ansatzpunkte für Modifikationen und Verbesserungen des Codes, die zu einer adäquaten, verlässlichen Bestimmung von Schädigungsparametern nötig sind.

## 2.2 *Binary Collision Approximation (BCA)*

Kern des binären Stoßmodells (BCA) ist die Annahme, daß alle Stoßvorgänge als Folge separater Zweikörperkollisionen behandelt werden können. Dies bedeutet wiederum, daß jeder einzelne Stoß mit Energie- und Impulsaustausch auf einer räumlichen Skala abläuft, die klein gegen mittlere Atomabstände im Target ist. Dann kann die Kinematik durch ein- und auslaufende Asymptoten der beiden beteiligten Teilchen beschrieben werden, da die Abweichungen der realen Trajektorien von diesen Asymptoten nur innerhalb der Kollisionszone beträchtlich sind. Weiterhin beschränkt man sich auf konservative Zentralpotentiale, so daß unter Beachtung der Drehimpulserhaltung die Bewegungen in einer Ebene ablaufen. Zusätzlich wird ein inelastischer Energieverlust  $Q$  zugelassen, der aber gänzlich in inneren Anregungen der Stoßpartner oder zur Anregung von Elektronen aufgebracht wird, so daß der zugehörige Impulsübertrag vernachlässigt werden kann.

Unter den Bedingungen von Kollisionskaskaden im Fusionsneutronenfeld ist zudem eine nichtrelativistische Kinematik mit ruhendem Target angemessen. Im Prinzip können beide Bedingungen aufgegeben werden, wobei die Implementierung relativistischer Formeln prinzipiell sehr einfach ist, wogegen die Kinematik zwischen zwei bewegten Teilchen zu ungleich komplizierteren kinematischen Formeln führt (s. beispielsweise [28, 27]).

Schematisch hat man folgendes Bild für den Stoßvorgang eines Teilchens der Masse  $M_1$  und der Energie  $E_0$  auf ein Target der Masse  $M_2$  in Ruhe:

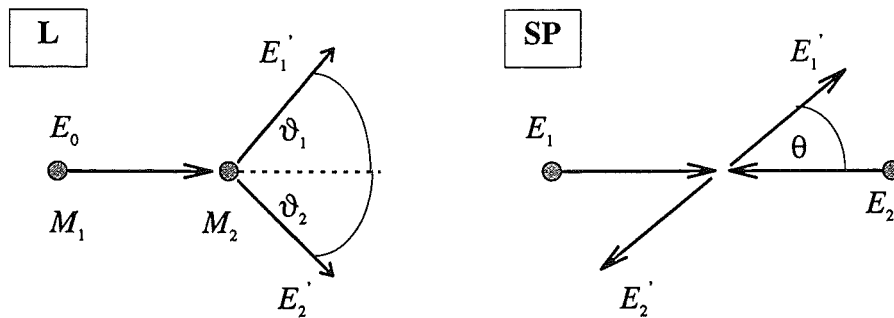


ABB. 2.1: Schematische Zweikörperkollisionen im Labor- und Schwerpunktsystem.

Die folgenden Ausführungen orientieren sich an den Darstellungen in den Referenzen [6], [27] und [29]. Üblicherweise rechnet man im Schwerpunktsystem (SP) und transformiert bei Bedarf die kinematischen Größen ins Laborsystem (L). Dazu beachte man die Energie des Schwerpunkts im L-System

$$E_R = \frac{A}{1+A} E_0; \quad \text{mit } A = \frac{M_2}{M_1} \quad (7)$$

Bei Berücksichtigung eines inelastischen Energieverlusts  $Q$  skalieren die Ausgangsgeschwindigkeiten der Teilchen mit einem Faktor  $f$ , wobei

$$f^2 = 1 - \frac{Q}{E_R} \quad (8)$$

ist. Die Stoßwinkel transformieren dann wie folgt:

$$\tan \vartheta_1 = \frac{Af \sin \theta}{1 + Af \cos \theta}; \quad \tan \vartheta_2 = \frac{f \sin \theta}{1 - f \cos \theta} \quad (9)$$

Für den Spezialfall rein elastischer Streuung ( $f = 1$ ) erhält man den Rückstoßwinkel

$$\vartheta_2 = \frac{\pi}{2} - \frac{\theta}{2} \quad (10)$$

und für den Fall  $Af = 1$ , also z.B. elastische Streuung zweier gleich schwerer Teilchen, findet man die beiden Winkel im L-System gemäß

$$\vartheta_1 = \frac{\theta}{2}; \quad \vartheta_1 + \vartheta_2 = \frac{\pi}{2} \quad (11)$$

Ist also der Stoßwinkel im SP-System  $\theta$ , dann bestimmt man die kinetischen Energien der auslaufenden Teilchen im L-System gemäß

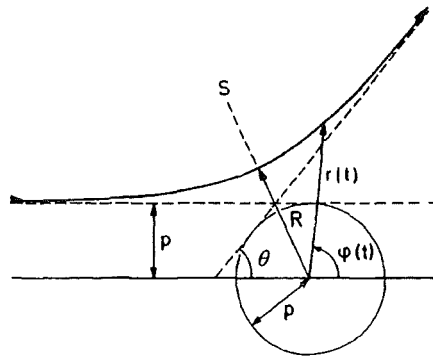
$$E_1' = E_0 \frac{1}{(1+A)^2} \left( (1+Af)^2 - 4Af \sin^2 \theta/2 \right) \quad (12)$$

$$E_2' = E_0 \frac{A}{(1+A)^2} \left( (1-f)^2 + 4f \sin^2 \theta/2 \right)$$

Üblich ist auch folgende Notierung für den Energieübertrag  $T$  an das Rückstoßteilchen

$$T = T_{\max} \left( f \sin^2 \theta/2 + \frac{1}{4}(1-f)^2 \right); \quad T_{\max} = \frac{4A}{(1+A)^2} E_0 \quad (13)$$

wobei  $T_{\max}$  der maximal mögliche Energieübertrag ist. Dieser wiederum ist dann am größten, wenn beide Teilchen gleich schwer sind ( $A = 1$ ).



**ABB. 2.2:** Binäre Kollision im Schwerpunktsystem: Definition von Stoßparameter  $p$ , minimalem Stoßabstand  $R$  und Streuwinkel  $\theta$ .  $r(t)$  und  $\phi(t)$  sind Koordinaten des Projektils,  $S$  beschreibt bei elastischer Streuung eine Symmetrieachse.

Zur Bestimmung der Stoßtrajektorien im elastischen Fall betrachte man zwei Massen  $M_1$  und  $M_2$  in einem Zentralpotential  $V(r)$ , das nur vom gegenseitigen Abstand  $r$  der zwei Massen abhängt. Im SP-System gilt dann die Energieerhaltung

$$\frac{\mu}{2} (\dot{r}^2 + r^2 \dot{\phi}^2) + V(r) = E_R \quad (14)$$



$$E_R = \frac{A}{1+A} E_0 \quad \text{Energie im SP-System}$$

$$\mu = \frac{M_1 M_2}{M_1 + M_2} \quad \text{reduzierte Masse}$$

und die Drehimpulserhaltung

$$r^2 \dot{\phi} = -v_0 p \quad (15)$$

$$p \quad \text{Stoßparameter}$$

$$v_0 = \sqrt{2\mu E_0} \quad \text{Geschwindigkeit des Projektils vor dem Stoß}$$

Aus diesen beiden Erhaltungssätzen folgt nach einfacher Umformung die  $r(t)$ - bzw.  $\phi(r)$ -Abhängigkeiten

$$dr = Mv_0 \sqrt{1 - \frac{V(r)}{E_R} - \frac{p^2}{r^2}} dt = Mv_0 g(r) dt \quad (16)$$

$$d\phi = \pm \frac{p}{r^2 g(r)} dr$$

Das obere Vorzeichen bezieht sich dabei auf die erste Hälfte des Stoßvorgangs, wenn sich die Teilchen der Apsis nähern, die durch ihren minimalen Stoßabstand  $R$  definiert ist. Dieser gibt, als Verbindungsgerade der beiden Stoßpartner, im Falle der elastischen Streuung eine Symmetrieachse  $S$  vor (vgl. ABB. 2.2).  $R$  bestimmt man aus der Bedingung  $dr = 0$ , d.h.  $g(r) = 0$ .

Den Streuwinkel  $\theta$  für rein elastische Streuung im SP-System erhält man aus der Integration von Gleichung (16):

$$\theta = \pi - 2p \int_R^{\infty} \frac{dr}{r^2 g(r)} \quad (17)$$

Dieses sogenannte Stoßintegral bleibt trotz der Polstelle bei  $R = 0$  endlich, wenn nur

$$\left. \frac{dV}{dr} \right|_R < 2p^2 E_R R^{-3} \quad (18)$$

ist. was für alle Potentiale mit repulsivem Kern erfüllt ist.

Auch für inelastische Stöße ( $f \leq 1$ ) wird gewöhnlich das Stoßintegral in dieser Form ausgewertet. Die Kinematik bleibt also elastisch, lediglich die Energien werden dem inelastischen

Verlust angepaßt. Deshalb spricht man in diesem Zusammenhang auch von der quasielastischen Näherung.

Das Stoßintegral muß im allgemeinen numerisch gelöst werden, lediglich für einfache Potentiale ist auch eine analytische Lösung möglich. Für ein Coulomb-Potential  $Z_1 Z_2 e^2 / r$  lautet so die Lösung

$$\theta = 2 \arccos \left( \frac{2pR}{p^2 + R^2} \right) \quad (19)$$

$$\text{mit } R = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{2E_R} + \sqrt{\left( \frac{Z_1 Z_2 e^2}{2E_R} \right)^2 + p^2}$$

Zur numerischen Quadratur des Stoßintegrals eignen sich verschiedene Verfahren. Hier soll nur das Gauß-Mehler-Verfahren [30], wie es in MARLOWE zum Einsatz kommt, erläutert werden. Dazu wird zunächst  $u := R/r$  substituiert, so daß die Integrationsgrenzen 0 und 1 lauten und der Integrand bezüglich  $u = 0$  symmetrisch ist. Dann kann das Stoßintegral (17) gemäß

$$\int_0^1 f(u) du = \sum_{i=1}^m w_i f(u_i) \quad (20)$$

mit  $m$  Stützstellen und

$$u_i = \cos \frac{2i-1}{4n} \pi \quad \text{Stützstellen}$$

$$w_i = \frac{\pi}{2n} \sin \frac{2i-1}{4n} \pi \quad \text{Gauß - Mehler Quadraturgewichte}$$

approximiert werden. Dabei kann  $m$  entsprechend der jeweils gewünschten Genauigkeit gewählt werden.

Beobachtet man nun die auslaufenden Teilchen in makroskopischen Entfernungen, d.h. um einige Größenordnungen über den interatomaren Abständen, so spielt sich der Stoßvorgang praktisch an einem Punkt ab. Die Angabe des Streuwinkels  $\theta$  reicht dann zur Bestimmung der asymptotischen Bahnen aus. Mikroskopisch hat man dagegen den Beobachter, das ist ein Targetatom, in unmittelbarer Nähe zum Kollisionsort, so daß auch die Ablenkung im Verlauf des Stoßvorgangs zur Bahnbestimmung hinzugezogen werden muß.

Aus der Energie- und Impulserhaltung folgt, wie bereits oben S. 11 erläutert, für die Schwerpunktsbewegung (Geschwindigkeit des Projektils ist  $v_0$ )

$$\int_0^{r'} dt = -\frac{1}{v_0} \int_{\infty}^R \frac{dr}{g(r)} + \frac{1}{fv_0} \int_R^{r'} \frac{dr}{g(r)}; \text{ mit } r' > R \quad (21)$$

wobei der erste Term die zeitlich konstante Bewegung vor Erreichen der Apsis beschreibt, der zweite Term die mit dem inelastischen Faktor  $f$  verlangsamte Bewegung danach. Man beachte, daß diese, wie auch die folgenden Integrale, nur für  $R \geq p$  definiert sind. Sei nun  $r(t=0) = L$  der Abstand der beiden Atome, für den  $V(r) \approx 0$  gilt. Ebenso sei  $r'$  so groß, daß auch hier keine Wechselwirkung mehr auftritt. Analog zur Funktion  $g(r)$  definiert man dazu  $\bar{g}(r) = (1 - p^2/r^2)^{1/2}$ . Dann folgt aus (21)

$$\begin{aligned} v_0 t' &= \int_R^{\infty} \left( \frac{1}{g(r)} - \frac{1}{\bar{g}(r)} \right) dr + \int_R^L \frac{1}{\bar{g}(r)} dr + \frac{1}{f} \left( \int_R^{\infty} \frac{1}{g(r)} dr - \int_{r'}^{\infty} \frac{1}{g(r)} dr - \right. \\ &\quad \left. - \int_R^{r'} \frac{1}{\bar{g}(r)} dr + \int_R^{r'} \frac{1}{\bar{g}(r)} dr \right) \\ &= \int_R^{\infty} \left( \frac{1}{g(r)} - \frac{1}{\bar{g}(r)} \right) dr + \int_R^L \frac{1}{\bar{g}(r)} dr + \frac{1}{f} \left( \int_R^{\infty} \left( \frac{1}{g(r)} - \frac{1}{\bar{g}(r)} \right) dr + \int_R^{r'} \frac{1}{\bar{g}(r)} dr \right) \end{aligned} \quad (22)$$

Mit der Definition

$$\tau = \sqrt{R^2 - p^2} - \int_R^{\infty} \left( \frac{1}{g(r)} - \frac{1}{\bar{g}(r)} \right) dr \quad (23)$$

erhält man dann wegen

$$\int_R^{r'} \frac{1}{\bar{g}(r)} dr = \sqrt{r'^2 - p^2} - \sqrt{R^2 - p^2} \quad (24)$$

folgende asymptotische Gleichung:

$$v_0 t' = \sqrt{L^2 - p^2} - \tau + \frac{1}{f} (\sqrt{r'^2 - p^2} - \tau) \quad (25)$$

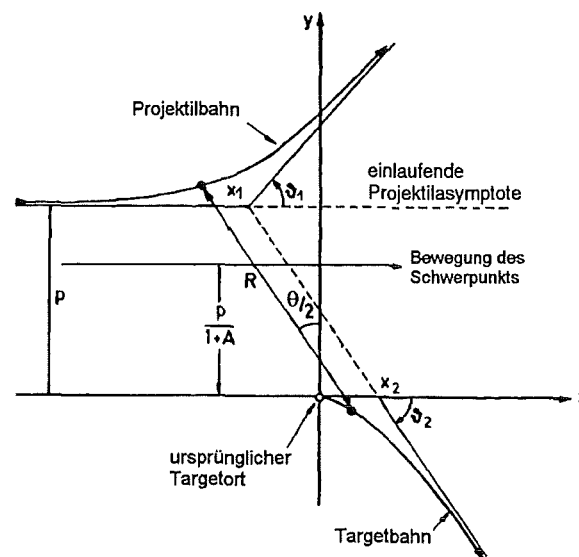
Die Abweichung zur Punktwechselwirkung wird also durch das Zeitintegral  $\tau$  festgelegt. Dabei ist  $2\tau/v_0$  die Wegzeitdifferenz zwischen einem elastisch gestreuten Teilchen und einem

Teilchen ohne Wechselwirkung. In der oben angegebenen Form ist das Zeitintegral nur für rein repulsive Potentiale definiert, da nur in diesem Fall stets  $R > p$  ist. Bei Vorliegen von attraktiven Potentialabschnitten kann der minimale Stoßabstand kleiner als der Stoßparameter sein, und  $\tau$  muß neu definiert werden (s. S. 63ff.).

Das Zeitintegral bleibt nur dann endlich, wenn das Potential hinreichend schnell gegen 0 geht, oder genauer, wenn

$$\lim_{r \rightarrow \infty} rV(r) = 0 \quad (26)$$

ist. Dies trifft für alle abgeschirmten Coulombpotentiale zu, nicht jedoch für reine Coulombpotentiale. In diesem Fall ist das Zeitintegral nicht definiert, da die Wechselwirkungszeit, wenigstens im Prinzip, unendlich groß ist. Im Rahmen einer BCA-Simulation muß man jedoch dafür sorgen, daß das Zeitintegral in jedem Fall berechnet oder zumindest abgeschätzt wird. Denn es bestimmt ganz wesentlich die Position der auslaufenden Teilchenasymptoten, die ihrerseits wiederum in der BCA zur Orts- und Zeitbestimmung benötigt werden. Dies soll im folgenden anhand der Skizze in **ABB. 2.3** ausgeführt werden.



**ABB. 2.3:** Binäre Kollision im Laborsystem: Trajektorien von Projektil und Target und deren Asymptoten, Definition der Abschnitte  $x_1$  und  $x_2$ .

Nur für elastische Streuung schneiden sich die beiden auslaufenden Asymptoten in einem Punkt auf der einlaufenden Projektilasymptoten. Ganz allgemein liegt der Schnittpunkt der Projektilasymptoten bei

$$x_1 = -\frac{\tau(1+f)}{f(1+A)} + \frac{p(1-Af)\tan(\theta/2)}{f(1+A)} \quad (27)$$

Für die auslaufende Targetasymptote ist es zweckmäßig, den Schnittpunkt mit einer Parallelen zur einlaufenden Projektilasymptoten (bei  $y = 0$ ) zu definieren, der bei

$$x_2 = -\frac{\tau(1+f)}{f(1+A)} + \frac{p(1+f)\tan(\theta/2)}{f(1+A)} \quad (28)$$

liegt. Dann erhält man für die Abweichung der beiden Schnittpunkte  $\Delta x = x_2 - x_1$  unabhängig von den beteiligten Massen und unabhängig vom inelastischen Energieverlust

$$x_2 - x_1 = p \tan(\theta/2) \quad (29)$$

Dazu beachte man, daß entsprechend der Skizze  $x_1$  negativ ist, wenn der Schnittpunkt vor dem ursprünglichen Targetort liegt. Dies ist, wie weiter unten noch ausgeführt wird (s. S. 77ff.), für repulsive Potentiale meist erfüllt.

Haben Projektil und Target zu Beginn der Kollision einen Abstand  $L$ , so sind die auf die Projektilrichtung projizierte Entfernung  $\zeta$  und die Länge der einlaufenden Asymptoten bis zum Schnittpunkt  $x_1$  (auch Kollisionslänge  $\bar{\zeta}$  genannt) gegeben durch

$$\zeta = \sqrt{L^2 - p^2} \quad , \quad \bar{\zeta} = \zeta - x_1 \quad (30)$$

Außerdem ist es möglich, Projektil und Target im jeweiligen Schnittpunkt der Asymptoten eine Zeit zuzuordnen, die der Abbremsung und Beschleunigung der beiden Teilchen Rechnung trägt [29]. Dabei ist angenommen, daß die Kollision in einem gegenseitigen Abstand  $L$  beginnt und der Endzustand der Kollision erreicht ist, wenn wieder beide Teilchen diesen Abstand  $L$  aufweisen. Dazu setzt man in der Asymptotengleichung (25) für  $r'$  den Abstand  $r_A$  der Asymptoten ein, wenn die beiden Teilchen die Stoßapsis erreicht haben, nämlich

$$r_A^2 = p^2 + (x_2 - x_1)^2 = p^2 + (p \tan(\theta/2))^2 \quad (31)$$

und erhält dann eine Kollisionszeit  $t_A$  aus der modifizierten Kollisionslänge

$$\zeta^* = v_0 t_A = \zeta + \frac{1}{f} (p \tan(\theta/2) - (1+f)\tau) \quad (32)$$

Die Zeit  $t_A$  muß wegen des inelastischen Energieverlust bis zum Asymptotenschnittpunkt korrigiert werden. Da die Bewegung verzögert wird, wird die Kollisionszeit etwas größer, und zwar um den Faktor

$$-\frac{\ln(1-q)}{q}, \quad q = \frac{kE_0^{1/2}\bar{\zeta}}{2E_0} \quad (33)$$

wenn  $kE_0^{1/2}$  den nichtlokalen Energieverlustquerschnitt darstellt. Zu den Größenabschätzungen und eventuellen Korrekturen gegenüber dem LSS-Querschnitt s. Kapitel 3.2, S. 43.

## 2.3 MARLOWE

Zur Simulation von Stoßkaskaden im Rahmen der im vorigen Kapitel vorgestellten binären Stoßapproximation existieren eine Vielzahl unterschiedlicher Computerprogramme. Eine umfassende Zusammenstellung solcher BCA-Codes findet man z.B. bei W. Eckstein [27]. Sie können prinzipiell in zwei Gruppen klassifiziert werden, zum einen die Monte-Carlo-Codes, die stochastische Stoßkonstellationen simulieren und deshalb im wesentlichen für amorphe Targets geeignet sind, zum anderen die Binary-Crystal-Codes, die lediglich zur Initialisierung stochastische Methoden verwenden, ansonsten aber deterministisch Stoßfolgen in einem fixierten Kristalliten simulieren. In diese zweite Klasse fällt der ursprünglich von M.T. Robinson und I.M. Torrens [31] entwickelte Code MARLOWE [32], der für diese Arbeit in der Version 13 vorlag.

### 2.3.1 Beschreibung des Codes

MARLOWE ist ein modular aufgebautes Programm, das sehr flexibel BCA-Kaskaden in kristallinen Target simulieren kann. Seine spezielle Attraktivität für die vorliegende Aufgabenstellung verdankt der Code im wesentlichen dieser offenen und gut dokumentierten Struktur, die eine Adaption bzw. Modifikation des Codes an die speziellen Belange sehr erleichtert. Die Funktionsweise des Codes ist dem schematischen Ablaufdiagramm in **ABB. 2.4** zu entnehmen.

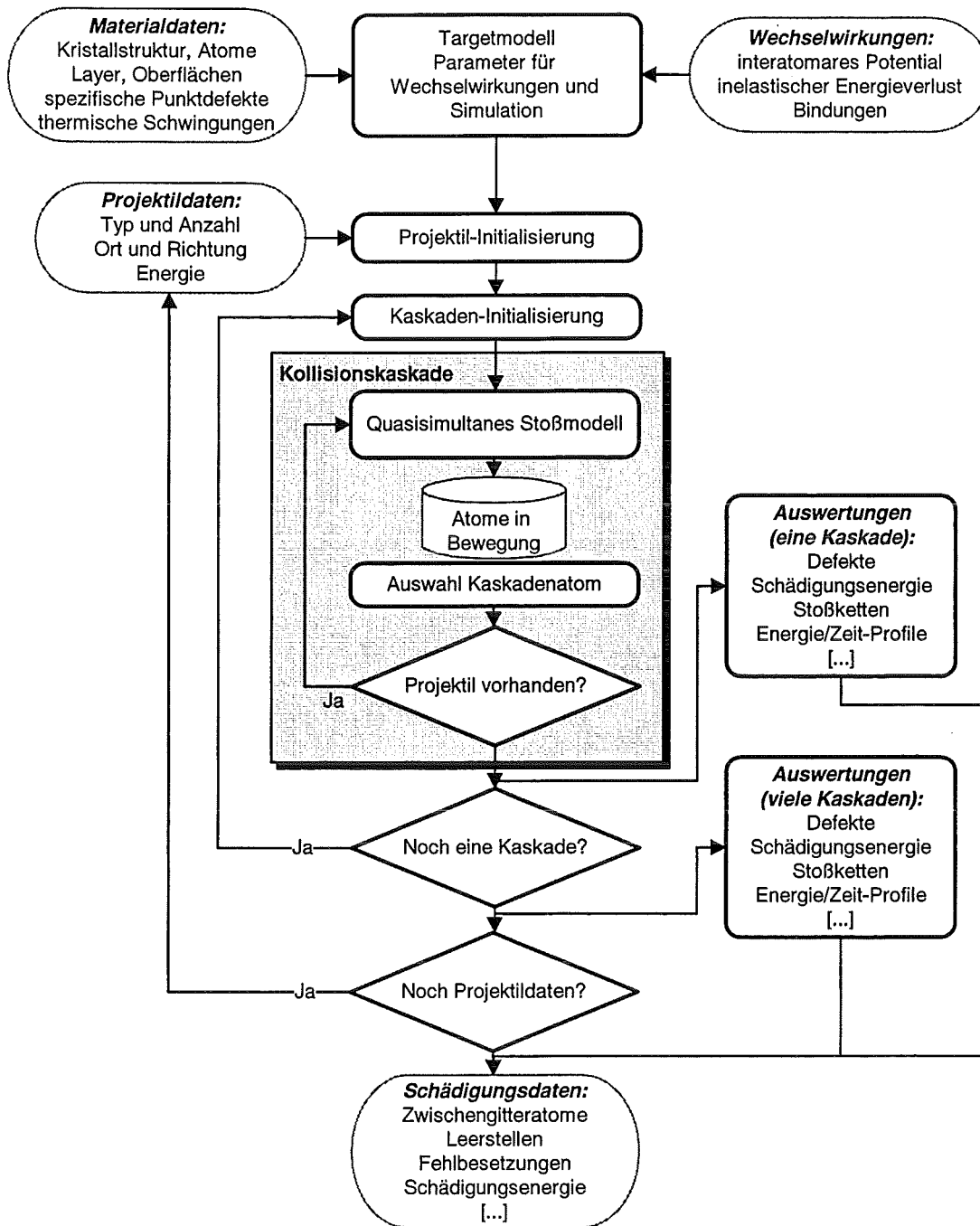


ABB. 2.4: Schematischer Ablaufplan für MARLOWE.

Nach Eingabe der relevanten Material- und Wechselwirkungsdaten wird zunächst das Targetmodell konstruiert und Parameter für die physikalischen Wechselwirkungen bzw. zur Durchführung der Simulation bereitgestellt. Anschließend können für eine Reihe unterschiedlicher Projekttilcharakterisierungen („Datensätze“) die BCA-Simulationen durchgeführt werden. Dazu müssen jeweils die Projekttildaten initialisiert werden. Anschließend müssen für jede einzelne Kaskade (insbesondere innerhalb eines Projekttildatensatzes) die spezifischen Startbedingungen festgelegt werden.

Innerhalb einer jeden Kollisionskaskade erfolgt die Berechnung aller Kollisionen für jedes bewegte Atom („Kaskadenatom“) im Rahmen der BCA und des quasisimultanen Kollisions-

modells (s. folgendes Kapitel 2.3.2). Alle Kaskadenatome werden gemäß einer Tabelle, die nach der Zeit oder der Geschwindigkeit geordnet ist, abgearbeitet. Wenn schließlich alle Atome gestoppt sind, ist die Kaskade abgeschlossen und kann nach Wahl ausgewertet werden. Analoge Auswertungen für viele Kaskaden innerhalb eines Projektildatensatzes erlauben dann die Angabe statistischer Kaskadenresultate.

Bereits in der vorliegenden Version 13 der MARLOWE-Codes sind viele Features integriert, die eine realistische Simulation von Verlagerungsschädigung in leichten Materialien in Fusionsreaktorblankets möglich erscheinen lassen:

- Kollisionen innerhalb der Kaskade können nach der Zeit geordnet werden. Dazu wird eine Tabelle von Zeitscheiben fester Länge (z.B.  $1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$ ) verwaltet, in der zur Auswertung stehende Kollisionen vermerkt sind. Die jeweils in einer Zeitscheibe liegenden Targetbegegnungen können so sequentiell abgearbeitet werden, bevor eine neue Zeitscheibe aktiv wird. Dieses Verfahren erlaubt die korrekte Zuordnung von Rekombinationsvorgängen, Stößen mit gestoppten Zwischengitteratomen oder auch die Ablehnung eines Stoßvorgangs, wenn er zu einer rückwärts gerichteten Bewegung führen würde.
- Das interatomare Potential kann aus einer Reihe rein repulsiver abgeschirmter Coulombpotentiale (Molière, ZBL und andere exponentielle Parametrisierungen) sowie dem Born-Mayer-Typ ausgewählt werden. Nicht vorgesehen sind unabgeschirmte, langreichweitige Coulombpotentiale, sowie attraktive Wechselwirkungen.
- Der inelastische Energieverlust kann lokal und nichtlokal in einer Niederenergieform nach Lindhard bzw. Firsov und Oen-Robinson ausgewertet werden. Dieser Ansatz ist jedoch nur für Energien bis etwa  $25 \text{ keV/amu}^1$  geeignet, was für leichte Atome im  $14 \text{ MeV}$ -Neutronenfeld schnell überschritten werden kann. Dann wird der Energieverlust z.T. erheblich überschätzt.
- Die Energieverlustparameter in polyatomaren Materialien werden nach der Bragg-Regel bestimmt. Nicht berücksichtigt werden Abweichungen bedingt durch Bindungs- und Phaseneffekte.
- Targetatomen können individuelle Bindungsenergien zugeordnet werden. Dabei wird unterschieden zwischen gewöhnlichen Verlagerungen (Target und Projektil fliegen weiter), Ersetzungsstößen (Projektil stoppt) und Zwischengitterverlagerungen (Targetatom wird von einem Zwischengitterplatz verlagert). Die lokale Umgebung kann jedoch eine Bindungsveränderung bewirken und muß in einer dynamischen, nichtlinearen Kaskadensimulation berücksichtigt werden.
- Alle Atome können unkorrelierte isotrope thermische Schwingungen ausführen. Die Amplitude wird bestimmt aus der Debye-Waller-Theorie (s. [33, 27])

---

<sup>1</sup> atomic mass unit,  $1 \text{ amu} = \frac{1}{12} \cdot \text{Masse von C}^{12}$



$$\langle u_i^2 \rangle = \frac{3\hbar^2}{Mk\theta_D} \left( \frac{T^2}{\theta_D^2} \int_0^{\theta_D/T} \frac{xdx}{e^x - 1} + \frac{1}{4} \right) \quad (34)$$

Darin ist  $u_i$  die Auslenkung in einer kartesischen Koordinate,  $M$  die Masse des Atoms,  $\theta_D$  die Debye-Temperatur des Materials und  $T$  die absolute Temperatur. Das Integral kann nicht analytisch gelöst werden, sondern muß numerisch approximiert werden. In MARLOWE wird dazu eine Reihenentwicklung [34] verwendet. Die tatsächlichen Auslenkungen selbst sind durch eine Gaußverteilung

$$P(u) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{u^2}{\langle u^2 \rangle}\right) \quad (35)$$

gegeben.

- Die Targetmodellierung erlaubt die Definition praktisch beliebiger Kristallstrukturen und -besetzungen, insbesondere auch leere bzw. statistisch besetzte Punktlagen. Dabei können unterschiedliche, in unendlich ausgedehnten parallelen Schichten angeordnete Layer vorgegeben werden, deren Dicke jedoch ebenso frei wählbar ist wie die Angabe äußerer Targetoberflächen. Leider treten Ungenauigkeiten in der Zuordnung zu reellen Gitterpunkten auf, sowie Inkonsistenzen in der Verwaltung von Projektilpositionen und zugehörigem Referenzgitterplatz. Nicht möglich ist zudem das Modellieren von begrenzten geometrischen Strukturen oder auch Hohlräumen. Dies wiederum wäre eine Voraussetzung zur Simulation von heterogenen Materialien und Gefügen.
- Nach der Simulation einer Reihe von Kaskaden liefert MARLOWE bei Bedarf eine Vielzahl statistischer Auswertungen. Im Zusammenhang mit der Verwendung des BCA-Codes in Schädigungsanalysen interessiert vorrangig die Zahl der stabilen Defekte nach Abschluß der Kaskadenausbreitung. Dazu identifiziert der Code zunächst Defektpaare, die korrelierte oder unkorrelierte Rekombinationen eingehen, und ordnet dann die übrigen stabilen Defekte entsprechend ihres Atom-Leerstellen-Abstandes. Bei großen Kaskaden (d.h. große räumliche Ausdehnung, viele Defektpaare, Subkaskadenbildung) interessiert aber nicht nur die totale Anzahl der Defekte, sondern zusätzlich ihre räumliche Verteilung und Korrelation. Insbesondere sollten so auch Defektagglomerate zum Ende der Kollisionsphase identifiziert werden, um Aussagen über mögliche sekundäre Mechanismen treffen zu können.

### 2.3.2 Ein Modell quasisimultaner Stöße

Trotz des Prinzips isolierter Zweikörperstöße ist man dennoch aus mehreren Gründen darauf angewiesen, unter gewissen Bedingungen auch mehrere Stöße simultan auszuwerten. Ein Argument ist, auch innerhalb der BCA Mehrkörpereffekte bei niedrigen Projektilenergien zu

simulieren. Denn in diesem Fall muß die Wechselwirkung des Projektils mit mehreren Targetatomen behandelt werden. Ein weiteres Argument betrifft die Symmetrie des Kristallgitters. Diese ist verantwortlich für Channelling, lineare Stoßketten und Fokussierung. Eine adäquate Behandlung muß in der Lage sein, z.B. für symmetrische Targetanordnungen einen solchen Fokussierungseffekt zu erzielen.

Dabei genügt es nun nicht, die Stöße sequentiell abzuwickeln [23]. Diese Methode führt nämlich bei einer eigentlich perfekt symmetrischen Anordnung zu einer letztlich defokussierenden Ablenkung und ist deshalb wenig geeignet, die spezifischen Symmetrieeigenschaften eines Kristalls in die BCA-Simulation zu integrieren. Ein anderes, in MARLOWE implementiertes Verfahren basiert auf der quasisimultanen Auswertung mehrerer Targetbegegnungen und anschließender vektorieller Addition der individuellen asymptotischen Bewegungen.

Im einzelnen werden folgende Schritte durchlaufen:

In Phase 1 wird aufgrund kinematischer Größen eine geeignete Auswahl möglicher simultaner Targets vorgeschlagen. In Phase 2 werden unter Berücksichtigung der Stoßauswertung sowohl die Kollisionspunkte als auch die Kollisionszeiten überprüft. Nach Abschluß dieser Tests liegt eine Liste quasisimultaner Targets vor, deren weiteres Schicksal in Phase 3 bestimmt wird.

Darin werden Impuls und Energie skaliert, wobei wegen des nichtlokalen Energieverlustes auch zusätzliche Korrekturen nötig sein können. Dann werden alle Targets an ihre Kollisionspunkte gesetzt und ihnen die Zeit des Projektils in der Apsis zugewiesen. Das Projektil selbst rückt zum nächstgelegenen Schnittpunkt seiner individuellen auslaufenden Asymptoten vor.

Nach Abschluß des eigentlichen Kollisionsvorgangs und Platzierung aller beteiligten Stoßpartner wird in Phase 4 für das aktuelle Projektil eine neue minimale Stoßentfernung (d.i. minimaler Abstand zum nächsten Target im folgenden Stoßvorgang) bestimmt. Dabei soll keines der bisherigen Targets in einem späteren Stoßvorgang auftauchen mit Ausnahme der Targets, die bei hoher Projektilablenkung einen nunmehr kleineren Stoßparameter aufweisen als vor diesem Stoß.

### 2.3.3 Modifikationen im Code

Gemäß der vorgegebenen Zielsetzung dieser Arbeit und den Möglichkeiten des Codes in der vorliegenden Version 13 muß MARLOWE wesentlich ergänzt und modifiziert werden. Dies betrifft vier Bereiche, die erst in der gegenseitigen Abstimmung realistische Simulationen und damit verlässliche Aussagen zur Defekterzeugung erlauben:

1. Zunächst muß die zugrundeliegende Physik der *Projektil-Target-Wechselwirkungen* für hohe Primärenergien und komplexe, polyatomare Targets implementiert werden (Kapitel

- 3). Dazu werden geeignete interatomare Paarpotentiale, insbesondere unabgeschirmte Coulombpotentiale, ausgewählt. Diese sind nötig, um die langreichweitigen Wechselwirkungen in ionisch oder zumindest teilweise ionisch gebundenen Materialien adäquat zu beschreiben. Deren Implementierung in den Code und in das BCA-Modell impliziert eine Vielzahl weitreichender Modifikationen, wie weiter unten noch ausgeführt wird. Desweiteren muß der inelastische Energieverlust an Elektronen im Hochenergiebereich (d.h. bis einige MeV/amu) berücksichtigt werden. Dies betrifft sowohl den kontinuierlichen, nicht-lokalen Querschnitt, als auch den diskreten, lokalen Energieverlust in jedem Stoßvorgang mit einem Targetatom. Compound-Effekte im nichtlokalen Energieverlust, also Abweichungen zu Bragg's Regel, sind ebenso einzubauen, wie Korrekturen im Niederenergiequerschnitt (sogenannte  $Z_2$ -Oszillationen). Weiterer Ansatzpunkt innerhalb der physikalischen Erweiterungen ist das lokale Bindungsmodell, das in geeigneter Weise die Umgebung eines potentiellen Rückstoßkerns bei der Bestimmung der Bindungsenergie berücksichtigt. Hierzu wird der Einfluß von Leerstellen auf Bindungsverlust bzw. teilweiser Bindungsverstärkung untersucht.
2. Diese Modifikation läßt sich aber auch als Teil des zweiten Änderungsblocks ansehen, der die *Modellierung der Targets* umfaßt (Kapitel 4.1 und 4.2). Wesentlich ist hierin die Vorgabe, heterogene Phasen- und Gefügestrukturen detailliert modellieren zu können, um so realistische Materialkonfigurationen einer Simulation zugänglich zu machen. Zu diesem Zweck werden lateral begrenzte Layer eingeführt, die somit im wesentlichen für quaderförmige Geometrien geeignet sind. Damit ist es dann möglich, die durch die Bestrahlung induzierten mikroskopischen Gefügeveränderungen, wie Void- und Blasenbildung, einzubinden. Zusätzliche Anpassungen betreffen die durch die langreichweitigen Coulomb-Potentiale notwendig gewordenen Änderungen, nämlich große Nachbarnlisten und mehrfache Layerübergänge. Außerdem muß die Kristallpropagation und die Ortsidentifizierung exakter formuliert werden.
3. Im dritten Block wird das quasielastische *BCA-Kollisionsmodell* durch die Berücksichtigung des lokalen inelastischen Verlustes in den auslaufenden Teilchentrajektorien zu einem inelastischen Modell erweitert (Kapitel 4.3). Zusätzliche Änderungen betreffen die Implementierung attraktiver interatomarer Potentiale, langreichweitiger Coulombpotentiale und des neuen Layerschemas. Diese Modifikationen in Verbindung mit einer speziellen Behandlung niederenergetischer Stöße führt zu einem umfassend neukonzipiertem BCA-Modell für Targetauswahl, Stoßauswertung, quasisimultane Behandlung und asymptotischer Entwicklung.
4. Die abschließenden Änderungen befassen sich mit der *Identifizierung von Defekten* und beinhalten im wesentlichen die räumliche Charakterisierung der Defekte, sowie ihre gegenseitige Korrelation zur Beurteilung potentieller Agglomerate (Kapitel 4.4).

## 3 ATOMISTISCHE WECHSELWIRKUNGEN

### 3.1 *Interatomares Potential*

Einer der wesentlichen Faktoren in der Simulation von Ion-Target-Wechselwirkungen in Festkörpern ist die interatomare Potentialfunktion. Dabei kann man zunächst zwei Bereiche abgrenzen, die unterschiedlichen theoretischen Beschreibungen zugänglich sind.

Für kleine Entfernungen erhält man eine Paarwechselwirkung zweier Atome, bestehend aus Atomkernen und Elektronenverteilung, die im allgemeinen kugelsymmetrisch im Schwerpunktssystem ist und nur vom Abstand der Atome abhängt. Für größere Entfernungen (etwa Gleichgewichtsabstände in Kristallen) tragen mehrere Atome in der Umgebung zur Änderung der potentiellen Energie eines Atoms bei. Die Elektronenverteilungen reflektieren dann die kohäsiven Aspekte im Festkörper.

#### 3.1.1 *Repulsive Paarpotentiale*

In nahen Kollisionen zweier Atome hat man es im Prinzip schon mit einem Mehrkörperproblem zu tun, da Atomkerne und Elektronen jeweils über Coulombfelder wechselwirken. Doch kann man sich auf ein Zweikörperproblem beschränken, wenn die Elektron-Elektron- und Elektron-Ion-Wechselwirkungen geeignet separiert werden. Dies wird in der sogenannten Born-Oppenheimer-Approximation erreicht, in der Elektronen- und Kernwellenfunktionen getrennt behandelt werden [35]. Die Elektronen besitzen in dieser Näherung eine sehr viel größere kinetische Energie als die Atomkerne, die deshalb bezüglich der Elektronenbewegung als „eingefroren“ zu betrachten sind. Dann tragen die Elektronen zur Potentialfunktion der Atomkerne bei. Anschaulich wird dies, wenn man die so erhaltene Potentialfunktion als Produkt einer Punktwechselwirkung der positiv geladenen Atomkerne und einer Abschirmung durch die gemeinsame negative Elektronendichte schreibt.

Ein weit verbreiteter Ansatz zur Bestimmung dieser gemeinsamen Elektronenverteilung zwischen den beiden Stoßpartnern ist die Annahme, daß beide Ladungsverteilungen ohne Neuorganisation überlagert werden. Im Überlappbereich erhöhter Elektronendichte müssen dann zusätzliche Korrekturen zur kinetischen Energie, sowie Korrelations- und Austauschsterme berücksichtigt werden, normalerweise im Rahmen eines freien Elektronengases [36]. Die Elektronendichteverteilungen der einzelnen Atome, die in diesen Berechnungen eingehen, stammen z.B. aus statistischen Atommodellen (Thomas-Fermi, s. etwa [37]) oder aus präziseren Hartree-Fock-Rechnungen [36, 38].

Eine weite Klasse solchermaßen berechneter Potentiale werden in der Form abgeschirmter Coulomb-Potentiale dargestellt:

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r^2} \Phi(r/a) \quad (36)$$

mit einer Abschirmfunktion  $\Phi$  ( $\Phi(0) = 1$ ,  $\Phi(\infty) = 0$ ) und einer geeignet gewählten Abschirmlänge  $a$ . Oft ist diese ein frei wählbarer Parameter, der aber meist so angepaßt wird, daß  $\Phi(r/a)$  universal ist, d.h. nicht explizit von den beteiligten Atomen abhängt. Die Abhängigkeit von der Kernladung steckt dann ausschließlich in der Abschirmlänge. Liegen Potentiale für die Wechselwirkung identischer Atome (homonukleare Potentiale) vor, so können alle Kombinationen verschiedener Atome (heteronukleare Potentiale) mit einer Kombinationsregel behandelt werden. Damit entfallen die umfangreichen Rechnungen für einzelne Atom-Atom-Kombinationen. Im Prinzip werden zwei Kombinationsregeln bevorzugt, zum einen das geometrische Mittel

$$V_{12} = \sqrt{V_{11} V_{22}} \quad (37)$$

der homonuklearen Potentiale  $V_{ii}$  [35], zum anderen eine Regel für die Abschirmlänge [39]

$$a_{12}^{-m} = \frac{1}{2} (a_{11}^{-m} + a_{22}^{-m}) \quad (38)$$

wobei der Exponent  $m$  je nach Definition der Abschirmlänge zwischen 1 und 2 schwankt.

Bekannte Beispiele für Abschirmfunktionen nach diesem Muster sind die Potentiale nach Thomas-Fermi (in verschiedenen numerischen Approximationen, z.B. Sommerfeld, March, s. [35]), Lenz-Jensen [40], Bohr [41] und Molière [42]. Wie die beiden letzten Potentiale, so gibt es noch ein Vielzahl weiterer Potentialfunktionen, die als Summe von Exponentialfunktionen vorliegen:

$$\Phi(r) = \sum_i C_i \exp(-A_i r / a) \quad (39)$$

Eine Zusammenstellung gebräuchlicher und in MARLOWE verwendeter Potentialparameter ist in TAB. 3.1 aufgeführt.

TAB. 3.1: Potentialparameter gebräuchlicher abgeschirmter Coulombpotentiale [27].

Potential	$C_1$	$C_2$	$C_3$	$C_4$	$A_1$	$A_2$	$A_3$	$A_4$
Bohr	1	0	0	0	1	0	0	0
Molière	0,35	0,55	0,10	0	0,3	1,2	6,0	0
ZBL <sup>(1)</sup>	0,028171	0,28022	0,59086	0,18175	0,20162	0,40290	0,94229	3,1998

<sup>(1)</sup> Potential nach Ziegler, Biersack, Littmark [36], s.u.

Ein wichtiges Potential, daß nicht in dieser Form vorliegt, ist das Born-Mayer-Potential [43]

$$V(r) = Ae^{-r/a} \quad (40)$$

das ursprünglich zur Behandlung der Abstoßung geschlossener Schalen in ionischen Kristallen verwendet wurde, mittlerweile aber auch für andere Materialien angepaßt wurde. Es ist jedoch nur für einen kleinen Ladungsüberlapp-Bereich ausgelegt, d.h.  $r$  darf nicht zu klein sein. Insbesondere bleibt das Potential im Nullpunkt endlich. Deshalb wird hier oft der Ansatz gemacht, es mit einem Molière-Potential für kleine Abstände zu kombinieren, wobei sich beide Potentiale im Nächsten-Nachbarn-Abstand kreuzen.

Basierend auf Hartree-Fock-Ladungsverteilungen haben Ziegler et al. [36] eine Vielzahl von homonuklearen Potentialen berechnet und ihre Ergebnisse in Form einer universalen Abschirmfunktion präsentiert, die über eine eigene Abschirmlänge definiert ist:

$$a_{ZBL} = \frac{0,8853a_0}{Z_1^{0,23} + Z_2^{0,23}} \quad (41)$$

Dieses ZBL-Potential hat sich in Computersimulationen, ob BCA oder MD, als besonders erfolgreich erwiesen und zeigt gute Übereinstimmung mit experimentellen Daten bzw. ab-initio-Potentialen [44].

Ein neueres, bisher nur selten verwendetes Potential, ist das AMLJ-Potential (Average Modified Lenz-Jensen) von Nakagawa und Yamamura [45, 46, 39]. Es wurde im Rahmen dieser Arbeit in die vorliegende Version 13 von MARLOWE implementiert. Mittlerweile ist die neue Version 14 ebenfalls mit dieser Option ausgestattet.

Basierend auf relativistischen Dirac-Hartree-Fock-Slater-Ladungsverteilungen, eingeschränkt auf Wigner-Seitz-Zellen der Atome, wurden homonukleare Potentiale berechnet und folgende Abschirmfunktionen angegeben:

$$\Phi(x) = \exp(-\alpha_i x + \beta_i x^{3/2} - \gamma_i x^2) \quad (42)$$

Dabei sind die Koeffizienten  $\alpha_i$ ,  $\beta_i$  und  $\gamma_i$  zunächst für jedes Atom separat gegeben. Doch kann ein gemeinsamer Trend registriert werden, so daß mittlere homonukleare Parameter gemäß

$$\alpha_i = 2,70 \cdot Z^{0,205} a_0^{-1}; \quad \beta_i = 1,83 \cdot Z^{0,169} a_0^{-3/2}; \quad \gamma_i = 0,615 \cdot Z^{0,0557} a_0^{-2} \quad (43)$$

bestimmt werden können. Doch ist keine eindeutige Abschirmlänge gegeben, die die gesamte Z-Abhängigkeit einschließt. Insofern ist AMLJ kein universales Potential. Die unterschiedliche Z-Abhängigkeiten der Koeffizienten spiegeln die unterschiedlichen Beiträge zum interatomaren Potential wider, so daß man auch von lokalen Abschirmlängen sprechen kann.

Gegenüber den gebräuchlichen ad-hoc-Kombinationsregeln für heteronukleare Potentiale werden für das AMLJ-Potential getrennte Parametrisierungen für die einzelnen Koeffizienten angegeben. Diese ergeben sich aus dem Fit mehrerer direkt berechneter heteronuklearer Potentiale:

$$\Phi(r) = \exp(-A_{12}r + B_{12}r^{3/2} - C_{12}r^2) \quad (44)$$

Dabei sind die homonuklearen Koeffizienten  $A_{ii}$  entweder separat gegeben oder durch die gemittelte Form (s.o.). Die gemischten Koeffizienten sind dann explizit durch

$$A_{12} = \left[ \frac{A_{11}^{3/2} + A_{22}^{3/2}}{2} \right]^{2/3}; \quad B_{12} = \frac{B_{11} + B_{12}}{2}; \quad C_{12} = \left[ \frac{C_{11}^{3/4} + C_{22}^{3/4}}{2} \right]^{4/3} \quad (45)$$

gegeben.

Im Vergleich zu anderen abgeschirmten Coulomb-Potentialen zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung für kleine Abstände. Im Bereich oberhalb etwa 0,1 bis 0,2 nm ist AMLJ jedoch deutlich schwächer als z.B. ZBL. Ursache dieser Diskrepanz ist die Beschränkung auf Wigner-Seitz-Zellen in der Potentialberechnung. Andererseits ist dieses Verhalten für Festkörperpotentiale angemessen, da es überhöhte nukleare Energieverluste vermeidet, die z.B. durch zu weitgestreckte Ladungsverteilungen auftauchen können.

#### 3.1.2 Attraktive abgeschirmte Coulomb-Potentiale

Beschränkt man sich in der Wechselwirkung zweier Atome auf Energie etwa oberhalb weniger Elektronenvolt pro atomarer Masseneinheit und kleine Stoßabstände, so sind die bisher diskutierten, ausschließlich repulsiven Potentiale ausreichend, um den Stoßvorgang mit hoher Genauigkeit zu behandeln. Nachteilig ist jedoch u.a., daß solche Potentiale unausweichlich zu dichtgepackten Strukturen führen. Im anderen Fall ist man gezwungen, einen attraktiven Part zu addieren, der in der Lage ist, die gebundenen Zustände zweier (oder vieler) Atome zu beschreiben. Offensichtlich gelangt man hierbei in einen Bereich, wo die Paarpotentialbeschreibung nicht mehr adäquat ist. Eher sind Clusterpotentiale oder -funktionale geeignet, die Mehrkörperwechselwirkung (MB; Many Body) zu modellieren. Solche MB-Potentiale können über „Tight-Binding“- oder „Embedded-Atom“-Verfahren bestimmt werden (s. beispielsweise [47]).

Trotzdem können attraktive Zweikörperpotentiale formuliert werden. Ein bekanntes Beispiel ist das Lennard-Jones-Potential [48], das in seiner allgemeinen Form folgende Parametrisierung aufweist [27]:

$$V(r) = \lambda_n r^{-n} - \lambda_m r^{-m} \quad (46)$$

Gebräuchlich ist jedoch vor allem das (6-12)-Potential mit  $m = 6$  und  $n = 12$ . Dabei beschreibt der attraktive Term Dipol-Dipol-Wechselwirkungen (Van-der-Waals-Kräfte). Das (6-12)-Potential wurde ursprünglich zur Beschreibung der Temperaturabhängigkeit der Viskosität in Edelgasen verwendet. Ähnliche verwandte Potentiale wurden von Buckingham et al. (s. [35]) postuliert, sind aber offensichtlich nicht in Computersimulationen verwendet worden.

Ein ebenso einfaches wie weitverbreitetes Potential, dessen Parameter für eine Reihe von Metallen vorliegen, ist von Morse [49] eingeführt worden, um Energieniveaus von diatomischen Molekülen zu bestimmen. Es besteht wie das Lennard-Jones-Potential aus einem attraktiven und einem repulsiven Anteil,

$$V(r) = D \exp[-2\alpha(r - r_0)] - 2D \exp[-\alpha(r - r_0)] \quad (47)$$

wobei  $D$  das Potentialminimum am Ort  $r_0$  angibt und  $\alpha$  im wesentlichen den Nulldurchgang des Potentials bestimmt. Da der repulsive Charakter des Morse-Potentials zu schwach ist, wird es meist für kleine Energien durch ein abgeschirmtes Coulombpotential (z.B. Molière) ergänzt und der Zwischenbereich durch ein kubisches Polynom gefittet.

Die neue Version 14 von MARLOWE verfügt über das Morse-Potential. Dies beinhaltet demgemäß eine Implementierung der attraktiven Stoßkinematik in Analogie zu der in dieser Arbeit vorgestellten Fassung.

### 3.1.3 Coulomb-Potential in ionischen Festkörpern

Alle bisher diskutierten Potentiale weisen als gemeinsame Eigenschaft ihre begrenzte Reichweite auf. Jenseits etwa eines Nächsten-Nachbarn-Abstands verschwinden sie sehr rasch. Sie sind deshalb in Simulationsrechnungen, die einen durch die Kristallstruktur bzw. Dichte des Targets beschränkten Stoßparameter vorgeben, durchaus angemessen. Dann ist gewährleistet, daß binäre Auswertungen einzelner Stöße ausreichend sind, da weiter entfernte Atome praktisch keine Wirkung am Ort des Projektils zeigen. Außerdem ist der Kollisionsbereich, also der Bereich, in dem sich die Ablenkung vollzieht, endlich und auf maximal wenige Ångström<sup>1</sup> im Durchmesser eingeschränkt. Das Zeitintegral konvergiert nämlich wegen

<sup>1</sup> 1 Ångström (Å) =  $10^{-10}$  m = 0,1 nm



$$\lim_{r \rightarrow \infty} rV(r) = 0 \quad (48)$$

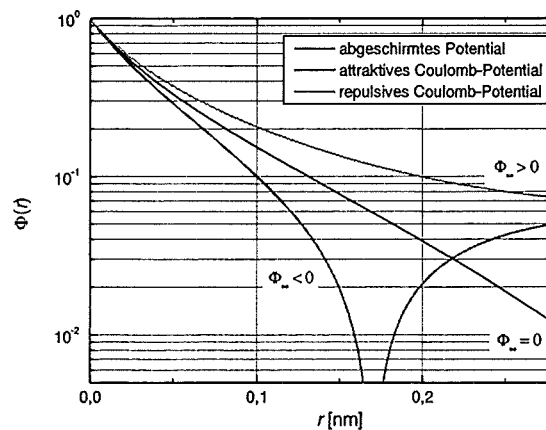
Effektiv handelt es sich also um eine Nächste-Nachbarn-Wechselwirkung.

Für ionische geladene Atome hat man demgegenüber gänzlich veränderte Bedingungen. Die interatomaren Potentiale sind für große Abstände nicht mehr völlig abgeschirmt, vielmehr bleibt ein reines Coulombpotential der ionischen Ladungen übrig. Auch weit entfernte Targetatome wirken so auf das Projektil ein. Wegen der im Prinzip unendlichen Reichweite von teilweise abgeschirmten Coulombpotentialen erhält man zudem Schwierigkeiten in der Festlegung des Zeitintegrals, das streng genommen nicht existiert (s. S. 15).

Tragen Projektil und Target die Ionenladungen  $Z_1^*$  und  $Z_2^*$ , so findet man für die Abschirmfunktion des interatomaren Potentials

$$\lim_{x \rightarrow \infty} \Phi(x) = \frac{Z_1^* Z_2^*}{Z_1 Z_2} = \Phi_\infty \neq 0 \quad (49)$$

Die Abschirmfunktion verschwindet also nicht für große Abstände, sondern läuft gegen den asymptotischen Wert  $\Phi_\infty$ , der entweder positiv (repulsiv) oder negativ (attraktiv) ist. Schematisch erhält man also die in **ABB. 3.1** gezeigten Abschirmfunktionen.



**ABB. 3.1:** Abschirmfunktionen (schematisch) für Coulomb-Potentiale:  $\Phi_\infty$  ist Restabschirmfunktion für große Abstände. Für attraktives Coulomb-Potential ist der Absolutbetrag von  $\Phi$  aufgetragen.

Selbst für Kombinationen von Neutralatom-Ion ergeben sich Abweichungen, die bedingt sind durch geänderte Elektronendichteverteilungen. So erhält man z.B. für ein positiv geladenes Targetatom eine stärkere Abschirmung vor allem bei großen Abständen, da der Überlappbereich der beteiligten Elektronenwolken kleiner geworden ist. Besonders markante Effekte erwartet man für leichte bzw. stark ionisierte Atome, denn dann ist  $|\Phi_\infty|$  besonders groß ( $\text{Li}^+ - \text{Li}^+$ :

$\Phi_\infty = 1/9$ ), und die Abweichungen zu einem analogen abgeschirmten Coulomb-Potential treten schon bei kleinen Abständen deutlich zutage.

Solche Coulomb-Potentiale sind nach Kenntnis des Autors bisher nicht in BCA-Computersimulationen verwendet worden. Dies liegt daran, daß sich der Wechselwirkungsbereich über Abstände jenseits nächster Nachbarn erstreckt, der Streuquerschnitt unendlich ist (und damit auch die Kernabbremmung) und das Zeitintegral nicht konvergiert. Zudem liegen kaum Daten vor, da vorrangig Neutralatome im Grundzustand im Mittelpunkt des Interesses stehen. Will man nun trotz dieser Schwierigkeiten solche Potentiale in eine BCA-Simulation integrieren, so stellen sich folgende Aufgaben:

1. Auswahl einer geeigneten Parametrisierung der Potentialfunktionen
2. Behandlung entfernter Target; Erhöhung des maximalen Stoßparameters
3. Berücksichtigung von attraktiven Potentialen in der BCA
4. Modifizierungen des BCA-Modells und der Bestimmung des Zeitintegrals
5. Modifizierungen des Modells quasisimultaner Stöße

Die Punkte 2 bis 5 werden in den folgenden Kapiteln ausführlich behandelt. An dieser Stelle soll eine Methode vorgeschlagen werden, teilweise abgeschirmte Coulombpotentiale zu parametrisieren. Man betrachte dazu die Abschirmfunktion, deren Randbedingungen

$$\lim_{r \rightarrow 0} \Phi(r) = 1; \quad \lim_{r \rightarrow \infty} \Phi(r) = \Phi_\infty \neq 0 \quad (50)$$

lauten. Insofern kann für hinreichend kleine Abstände  $r$  (d.h. entsprechend hohe Energien) ein abgeschirmtes Coulombpotential  $\Phi_s$  angesetzt werden. Dieses soll dann glatt übergehen in  $\Phi = \Phi_\infty$  für große  $r$ . Dazu sei folgender Interpolationsansatz gemacht:

$$\Phi(r) = \Phi_s(r)(1 - \Phi_\infty) + \Phi_\infty \quad (51)$$

Damit ist dann das Potential

$$\begin{aligned} V(r) &= \frac{Z_1 Z_2 e^2 (1 - \Phi_\infty)}{r} \left( \Phi_s\left(\frac{r}{a}\right) + \frac{\Phi_\infty}{1 - \Phi_\infty} \right) \\ &= \frac{Z_1^* Z_2^* e^2}{r} \left( \Phi_s\left(\frac{r}{a}\right) + c_\Phi \right), \end{aligned} \quad (52)$$

so daß die Änderung bezüglich des abgeschirmten Potentials darin besteht, den Coulomb-Faktor  $Z_1 Z_2$  durch die ionischen Ladungen  $Z_1^* Z_2^*$  zu ersetzen und zur Abschirmfunktion eine konstante  $c_\Phi$  zu addieren. Damit zeigt die neue Abschirmfunktion ein asymptotisch korrektes

Verhalten, wie ursprünglich gefordert; abgeschirmtes Coulombpotential für  $r \rightarrow 0$ , Coulombpotential zweier Ladungen  $Z_1^*$  und  $Z_2^*$  für  $r \rightarrow \infty$ . Am Kreuzungspunkt  $\Phi_s = \Phi_\infty$  nimmt  $\Phi$  den Wert  $2\Phi_\infty - \Phi_\infty^2$  an, d.h. die neue Abschirmfunktion liegt dann um maximal 100 % oberhalb der ursprünglichen. Je größer  $\Phi_\infty$  ist, d.h. je leichter bzw. stärker geladen die Ionen sind, um so deutlicher weicht  $\Phi$  schon bei kleinen Abständen von  $\Phi_s$  ab. Das Anschmiegen an die Asymptoten ist bei kleinem  $\Phi_\infty$  klarer zu erkennen. In diesem Fall zeigt sich erst für relativ große Abstände das unabgeschirmte Verhalten. Für attraktive Abschirmfunktionen (d.h.  $\Phi_\infty < 0$ ) ergibt sich der Nulldurchgang des Potentials bei  $r_0$  mit  $\Phi_s(r_0) = -\Phi_\infty / (1 - \Phi_\infty)$ , das Minimum  $V(r_{\min})$  wird angenommen für

$$\Phi'_s(r_{\min})r_{\min} - \Phi_s(r_{\min}) = \frac{\Phi_\infty}{1 - \Phi_\infty} \tag{53}$$

Um die Güte dieser Parametrisierung zu überprüfen, wurde diese anhand der Daten aus [50] getestet. Die dort angegebenen Potentiale sind ähnlich der in [36] erläuterten Methodik aus dem Überlapp von Elektronenwolken zweier kollidierender Lenz-Jensen-Atome berechnet und an eine Exponentialsumme (s. Glg. (39)) gefittet. Die Parameter für die Kombinationen  $\text{He}^+ - \text{Cu}^+$ ,  $\text{Cl}^- - \text{Cl}^-$  und  $\text{Al}^{3+} - \text{Al}^{3+}$  sind in folgender Tabelle aufgeführt:

TAB. 3.2: Potentialparameter für Ion-Ion-Paare [50]

	$C_1 = \Phi_\infty$	$C_2$	$C_3$	$A_1$	$A_2$	$A_3$	$a$ [nm]
$\text{He}^+ - \text{Cu}^+$	0,01724	0,61131	0,37145	0	0,5232	1,8288	0,0131
$\text{Cl}^- - \text{Cl}^-$	0,00346	0,37355	0,623	0	0,3595	1,3095	0,0115
$\text{Al}^{3+} - \text{Al}^{3+}$	0,053254	0,946746	0	0	0,74	0	0,0125

Die Abschirmlängen sind nach Firsov berechnet. Die drei Projektil-Target-Kombinationen decken dabei einen weiten Bereich von  $\Phi_\infty$ -Werten ab (etwa 0,003 .. 0,05).

Unter Verwendung von AMLJ-Abschirmfunktionen (mit spezifischen Parametern  $\alpha_i$ ,  $\beta_i$  und  $\gamma_i$ ) ergeben sich nach obiger Methode folgende neue Abschirmfunktionen für die teilweise abgeschirmten Coulombpotentiale:

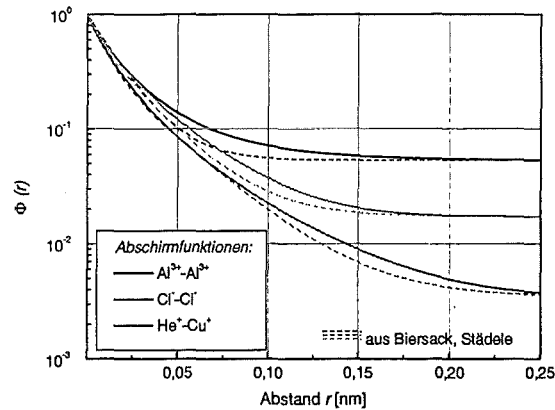


ABB. 3.2: Abschirmfunktionen für Ion-Ion-Potentiale: Vergleich einer Parametrisierung (—) mit Daten aus Ref. [50] (.....).

Im Schaubild erkennt man die relativ gute Übereinstimmung der Approximation mit den Kurven aus [50], die jedoch, bis auf sehr kleine Abstände, stets niedriger liegen. Mit steigendem  $\Phi_{\infty}$  nimmt die maximale Differenz zu und liegt für  $\text{Al}^{3+}\text{-Al}^{3+}$  bei etwa 40 % (für die beiden anderen Kombinationen bei ca. 30 %). Der Abstandsbereich, in dem die Differenz 10 % übersteigt, liegt bei 0,02 bis 0,15 nm ( $\text{He}^+\text{-Cu}^+$  und  $\text{Al}^{3+}\text{-Al}^{3+}$ ) bzw. 0,09 bis 0,22 nm ( $\text{Cl}^-\text{-Cl}^-$ ).

Auch ein Vergleich des attraktiven Potentials  $\text{K}^+\text{-Cl}^-$ , das in Abbildung 2a von Referenz [50] graphisch gegeben ist, zeigt qualitativ eine ähnlich gute Übereinstimmung, vor allem ist auch der Nulldurchgang bei etwa  $15,4a$ , entsprechend 0,172 nm, reproduzierbar.

### 3.2 Elektronischer Energieverlust

Atome verlieren beim Durchgang durch Materie kinetische Energie und werden bei entsprechend dickem Target bis zur Ruhe abgebremst. Dabei bezeichnet der spezifische Energieverlust ( $dE/dx$ ) die entlang einer infinitesimalen Wegstrecke  $dx$  abgegebene Energie  $dE$ . Der dazugehörige Energieverlust- oder Bremsquerschnitt  $S$  ist der auf die Atomdichte  $N$  des Targets bezogene spezifische Energieverlust und besitzt demgemäß die Dimension Energie\*Fläche.

$$S = \frac{1}{N} \frac{dE}{dx} \quad (54)$$

Für nicht zu kleine Energien rührt der hauptsächliche Anteil aus den Wechselwirkungen mit den Elektronen des Targets, nämlich Anregung und Ionisation, her. Im Gegensatz zum Energieverlust durch elastische Stöße mit den Atomkernen spricht man deshalb vom sogenannten inelastischen Energieverlust.

### 3.2.1 Der Hochenergieansatz: Bethe-Bloch und effektive Ladungen

Bereits mit klassischen Argumenten (Rutherfordstreuung an Elektronen bzw. Atomkernen) läßt sich ableiten, daß der Energieverlust umgekehrt proportional des Quadrates der Projektilgeschwindigkeit ist, aber proportional einem Logarithmus des Quotienten aus maximalem und minimalem Energieübertrag [51]. Für Projektilgeschwindigkeiten  $v$  weit oberhalb der Orbitalgeschwindigkeit der äußeren, schwach gebundenen Elektronen (in der Größenordnung der Bohrgeschwindigkeit  $v_0 = e^2 / \hbar = 2,19 \cdot 10^6 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  ist dann der Energieverlust an die Elektronen sehr viel größer als der an den Kern.

Nach Bohrs Adiabazitätsargument [52] werden für  $v < v_0$  die Energieverluste an Elektronen geringer, da nun diese ihre Bewegung adiabatisch an die augenblickliche Projektilposition anpassen. Der Energieverlust nimmt ebenso ab, wenn die Kollisionszeit länger wird als eine Bahnperiode der Valenzelektronen. Insofern bestimmt dies auch ein oberes Limit für den Stoßparameter zwischen Projektil und Elektron. Die klassische Bohr-Formel lautet dann [53]:

$$S = \frac{4\pi Z_1^2 Z_2 e^4}{m_e v^2} \ln \left( 1,123 \frac{m_e v^3}{Z_1 e^2 \omega_0} \right) \quad (55)$$

Dabei ist  $v$  die Geschwindigkeit des Projektils mit Kernladung  $Z_1$ ,  $e$  und  $m_e$  die Ladung und Masse des Elektrons,  $\omega_0$  die Oszillatorfrequenz der Elektronen im Target mit der Kernladung  $Z_2$ .

Wegen der hohen Dichte in kondensierter Materie sind bei hohen Projektilenergien kollektive Elektronenanregungen möglich, z.B. Polarisation. Das Target wird dabei über eine komplexe Dielektrizitätskonstante beschrieben, die aus der dielektrischen Resonanztheorie (s. [54]) abgeleitet werden kann.

Im einfachsten Fall eines freien Elektronengases ergibt sich so für den differentiellen Energieverlust  $dE$  eines Atoms der Kernladung  $Z_1$  entlang der Wegstrecke  $dx$  [55]

$$\frac{dE}{dx} = \frac{Z_1^2 e^2 \omega_p^2}{v^2} \ln \left( \frac{2m_e v^2}{\hbar \omega_p} \right) \quad (56)$$

mit  $\omega_p = (4\pi e^2 n_e / m_e)^{1/2}$  der Plasmafrequenz des Elektronengases ( $n$  ist die Elektronenkonzentration).

Die quantenmechanische Behandlung nach Bethe und Bloch [56, 57] liefert folgenden Ausdruck für das elektronische Bremsvermögen  $S$  (in eV cm<sup>2</sup>)

$$S = \frac{4\pi Z_1^2 Z_2 e^4}{m_e v^2} L \quad (57)$$

Der sogenannte Bethe-Logarithmus  $L$  besteht in der Born-Approximation lediglich aus dem Term  $L_0$ , während unter Berücksichtigung höherer Ordnungen der Störungsrechnung auch die Barkas-Korrektur  $Z_1 L_1$  und der Bloch-Term  $Z_1^2 L_2$  hinzukommen [58, 59].

$$L = L_0 + Z_1 L_1 + Z_1^2 L_2 \quad (58)$$

$$L_0(v, Z_2) = \ln\left(\frac{2m_e v^2}{I}\right) + \ln\left(\frac{1}{1-\beta^2}\right) + \beta^2 - \frac{C(v)}{Z_2} - \frac{\delta}{2}$$

$$L_1(v, Z_2) = \frac{2F[(v/v_0)Z_2^{-1/2}]}{Z_2^{1/2}} L_0$$

$$-Z_1^2 L_2(v, Z_2) = \left(\frac{\kappa}{2}\right)^2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n(n^2 + (\kappa/2)^2)}$$

Darin ist  $I$  das mittlere Ionisierungspotential des Targets, das im wesentlichen das gewichtete Mittel aller erlaubten Energieüberträge im Elektronensystem des Targets ist.  $\beta$  ist der kinematische Faktor  $v/c$  und ist ebenso wie die Shell-Korrektur  $C(v)/Z_2$  und die Dichte-Korrektur  $\delta/2$ , da es sich zum einen um Hochenergie-Korrekturen (relativistische Effekte) handelt, zum anderen wegen des unten erläuterten Überbrückungsschemas zu kleineren Energien, von untergeordneter Bedeutung. Die Barkas-Korrektur erklärt  $Z_1^3$ -Effekte in Energieverlust-Messungen und ist bedingt durch dynamische Abschirmung in der Anfangsphase einer Kollision mit den Elektronen des Targets, die zu einer Änderung der klassischen Rutherfordstreuung führt. Eine theoretische Ableitung dieses Effekts [60] liefert die oben angegebene  $F$ -Funktion, die rasch mit steigendem Argument abnimmt. Unter Berücksichtigung auch naher Kollisionen, d.h. gebundener Elektronen, erhält man eine Verdoppelung des Effekts [61]. Der Bloch-Term berücksichtigt die Sättigung des Energieübertrags bei kleinen Stoßparametern und führt in diesem Fall zu einem reduzierten Energieverlust. Der Parameter  $\kappa = 2 Z_1 v/v_0$  stellt einen Entwicklungsparameter dar, wobei für  $\kappa < 1$  die quantenmechanische Störungsrechnung akzeptabel ist [53]. In diesem Bereich ist auch die Bloch-Korrektur, wie oben angegeben, gültig und stellt gewissermaßen den Übergang von der Bethe-Bloch- zur Bohr-Formel dar [58] (Glg. (55) und (57)).

Bisher sind, entsprechend den hohen Energien, jeweils Punktladungen vorausgesetzt. Für kleinere Projektilenergien oder alternativ schwerere Ionen hat man es aber mit nur teilweise von Elektronen abgestreiften Atomkernen zu tun. In der schon von Bohr formulierten Auffassung [62] geht man davon aus, daß alle Elektronen, deren Bahngeschwindigkeit kleiner ist die Projektilgeschwindigkeit, von diesem abgestreift sind. In der Lokalen-Dichte-Approximation

erhält man dann unter Vernachlässigung einer Targetabhängigkeit folgende wichtige Skalierungsregel [36], auf der viele Auswertungen von Energieverlustquerschnitten basieren:

$$\frac{S_A(v, Z_A)}{S_B(v, Z_B)} = \frac{Z_A^*(v)^2}{Z_B^*(v)^2} \quad (59)$$

(für zwei Ionen  $Z_A$  und  $Z_B$  bei gleicher Geschwindigkeit im selben Target)

mit den effektiven Ladungen  $Z^*$ , wobei  $Z^* = \gamma Z$  ist. Der effektive Ladungsfaktor  $\gamma$  erreicht demgemäß für alle Ionen bei hinreichend großer Geschwindigkeit den Wert 1.

Northcliffe und Schilling [63] haben eine umfangreiche Datenbasis analysiert und für Ionen mit Kernladungen  $Z > 2$  folgende Approximation des Ladungsfaktors  $\gamma$  bei der Geschwindigkeit  $v$  gefunden (s. [36]):

$$\gamma^2 = 1 - \exp\left(-0,92v / \left(v_0 Z^{2/3}\right)\right) \quad (60)$$

Für Protonen setzt man definitionsgemäß  $\gamma = 1$ .

Für Helium, das gerade im Fusionsreaktor von entscheidender Bedeutung ist, weil es in den Materialien, die von schnellen Neutronen durchströmt werden, über  $(n, \alpha)$ -Schwellwertreaktionen erzeugt werden kann, ist die obige Darstellung der effektiven Ladung bzw. des Ladungsfaktors nicht geeignet. Hierzu kann die von Ziegler et al. [36] angegebene Formel

$$\gamma_{\text{He}}^2 = 1 - \exp\left(-\sum_{i=0}^5 a_i (\ln E)^i\right); \quad E \text{ in keV/amu}, \quad E \geq 1 \quad (61)$$

$$\begin{aligned} a_0 &= 0,2865 & a_1 &= 0,1266 & a_2 &= -0,001429 \\ a_3 &= 0,02402 & a_4 &= -0,01135 & a_5 &= 0,001475 \end{aligned}$$

benutzt werden. In Anbetracht des für eine Simulation hohen Rechenaufwandes wurde diese Formel noch einmal an einfachere Exponentialform gefittet

$$\gamma_{\text{He}}^2 = 1 - 0,541 \exp(-5,48 \cdot 10^{-3} E) - 0,274 \exp(-0,293E) \quad (62)$$

Die Abweichungen zur Ziegler-Formel (61) betragen maximal 2 %, auch der Wert für 1 keV/amu von 0,26 stimmt ausgezeichnet mit den 0,25 der genaueren Formel überein.

### 3.2.2 Der Niederenergieansatz: Lindhard und Überbrückungsmodell

Geht man zu noch kleineren Geschwindigkeiten über, wenn also  $v$  sehr viel kleiner als die Fermigeschwindigkeit der Elektronen im Target ist, findet man mit wenigen Ausnahmen einen geschwindigkeitsproportionalen elektronischen Bremsquerschnitt. Grundlegende Arbeiten zur Wechselwirkung von nichtrelativistischen, geladenen Teilchen mit quantisierten Elektronenplasmen durch Lindhard und Mitarbeiter haben zu der unter dem Namen LSS bekanntgewordenen Theorie ([4, 18]) geführt. Diese beruht auf der Grundannahme, daß die Wechselwirkung des geladenen Teilchens mit dem Elektronengas eine Störung dessen homogener Dichte darstellt und entsprechend mit störungstheoretischen Methoden berechnet werden kann.

Der elektronische Energieverlust lautet dann

$$S = \xi_e \cdot 8\pi e^2 a_0 \frac{Z_1 Z_2}{Z} \frac{v}{v_0} \quad (63)$$

$$\xi_e \approx Z_1^{1/6}$$

$$Z^{2/3} = Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3}$$

wobei er nur für Geschwindigkeiten  $v < v_0 Z_1^{2/3}$  gültig ist. Der Bohrsche Radius  $a_0 = \hbar^2 / m_e e^2$  beträgt  $5,29 \cdot 10^{-11}$  m.

Oft schreibt man, um die Proportionalität mit der Energie zu betonen,

$$S = k \sqrt{E} \quad (64)$$

$$\text{mit } k = 1,20608 \cdot 10^{-20} \frac{Z_1^{7/6} Z_2}{Z M_1^{1/2}} \cdot \text{eV}^{1/2} \text{m}^2$$

und  $M_1$  der Masse des Projektils in amu.

Der LSS-Querschnitt gilt dann für Energien bis etwa  $25 Z_1^{4/3}$  keV/amu.

Innerhalb dieser Grenze beschreibt diese Formel das Niederenergieverhalten sehr gut, wenn auch experimentell sogenannte  $Z_1$ -Oszillationen um den gemittelten Wert  $\xi_e = Z_1^{1/6}$  gemessen wurden (s. z.B. [64, 65]). Auch gibt es Hinweise auf eine modifizierte Abhängigkeit  $S \propto E^{0,45}$ , die aber ebenso wie die in Halbleitern mit großer Elektronenlücke beobachteten Abhängigkeit  $S \propto v^{0,7}$  (s. [36]) nicht weiter berücksichtigt werden soll.

Die explizite Targetabhängigkeit des inelastischen Energieverlustes wird überlagert durch  $Z_2$ -Oszillationen (s. auch [66]). Eine Zusammenstellung von Korrekturfaktoren  $c_K$  zum Niederenergiequerschnitt für Protonen findet man bei Eckstein [27] bzw. Andersen und Ziegler [59]. Dabei schwanken die Faktoren zwischen 0,67 für Lithium-Targets ( $Z=3$ ) und 2,39 für Xenon



( $Z=54$ ). Für andere leichte Ionen liegen nur vereinzelte Daten vor (z.B. Helium, Lithium, Bor, Stickstoff, s. [67, 68]), doch findet man auch hier dieselben charakteristischen Maxima und Minima in den  $c_K(Z_2)$ -Kurven. Auch der quantitative Vergleich bei gleichen Geschwindigkeiten zeigt zumindest ähnliche Werte. Deshalb werden die Proton-Werte als Referenzwerte betrachtet, die auch für andere leichte Ionen verwendet werden können.

Zwischen den beiden theoretisch mehr oder minder gut abgesicherten Bereichen, dem LSS-Querschnitt für kleine Energien und dem Bethe-Bloch-Querschnitt ab etwa 200 keV/amu, liegt ein intermediärer Bereich, der bisher noch nicht in geschlossener Form theoretisch begründet worden ist. In diesem Bereich liegt auch das Maximum des Bremsquerschnittes. Ein fundierter Ansatz zur Beschreibung dieses Bereiches v.a. für schwere Ionen ist die Brandt-Kitagawa-Theorie (BK-Theorie, [69]). Sie beinhaltet zwei wesentliche Modifikationen, zum einen bezüglich des Ladungszustandes des Ions, zum anderen bezüglich der Klassifizierung von Ion-Elektron-Kollisionen. Im ersten Fall betrachtet man alle Elektronen, deren Geschwindigkeit kleiner ist als die Differenz aus Projektilgeschwindigkeit und Fermi-Geschwindigkeit der Targetelektronen, als abgestreift. Im zweiten Fall wird unterschieden zwischen entfernten Kollisionen, die im Rahmen der bisherigen Theorie behandelt werden, und nahen Kollisionen, die bei reduzierter Abschirmung zu einem höheren Energieverlust führen.

Zwar steht die BK-Theorie auf relativ fundierten physikalischen Modellen, die entsprechenden Formeln zur Berechnung des Energieverlustquerschnittes (s. [36]) sind aber für zeitintensive Simulationsrechnungen zu komplex. Geeigneter sind hier verlässliche Interpolationsvorschriften, die auf einfache Weise ein Überbrücken dieses Bereiches erlauben. Als besonders robust und genau hat sich der Ansatz von Varelas und Biersack [70] erwiesen:

$$S^{-1} = S_{low}^{-1} + S_{high}^{-1} \quad (65)$$

Er zeichnet sich neben seiner guten Korrelation mit experimentellen Werten im intermediären Energiebereich auch durch die implizit richtigen Ansätze im Nieder- und Hochenergiebereich (nämlich  $S_{low}$  gemäß Glg. (63),  $S_{high}$  gemäß Glg. (57)) aus. Da jedoch die Bethe-Bloch-Formel für zu kleine Energien unterhalb ihres Gültigkeitsbereiches versagt, nämlich dann, wenn  $E$  kleiner wird als etwa  $500 \cdot I / \text{amu}$ , muß sie in geeigneter Weise extrapoliert werden, um im Interpolationsansatz einen akzeptablen Verlauf zu liefern. Die von Biersack und Haggmark [71] vorgeschlagene Form

$$S_{high} = \frac{4\pi e^4 (Z_1^*)^2 Z_2}{m_e v^2} \ln \left( \frac{2m_e v^2}{I} + 1 + C \frac{I}{2m_e v^2} \right) \quad (66)$$

$C = 5$  außer für  $Z_1 < 3$ :  $C = 100 \cdot Z_1 / Z_2$

eignet sich, wie der Vergleich mit experimentellen Daten zeigt, besonders gut.

### 3.2.3 Der lokale Energieverlust: Oen-Robinson

Die in den bisherigen Überlegungen vorgestellten Modelle und Formulierungen betreffen den kontinuierlichen oder nichtlokalen Energieverlust. Dabei wird vorausgesetzt, daß ein Ionenstrahl alle Stoßparameter in Kollisionen mit den Targetelektronen abdeckt, d.h. alle Elektronendichten tragen gemeinsam zum Energieverlustquerschnitt bei. Dieser wird dann mit  $S_{\text{random}}$  bezeichnet. Für kanalisierte Ionen, die also in offenen axialen oder planaren Kanälen des Targetkristalls fokussiert sind, mißt man jedoch deutlich geringere Bremsquerschnitte, da nur ein Bereich relativ kleiner Elektronendichten zur Abbremsung beiträgt [51].

Dieser Sachverhalt wird im Modell von Firsov [72] behandelt. Dabei überlagern sich die Elektronenwolken zweier kollidierender Atome. Die Elektronen treten dann durch die Firsov-Fläche, eine imaginäre Ebene zwischen den beiden Atomkernen, in beiden Richtungen und übernehmen Impuls vom Projektil. In diesem Modell ergibt sich ein lokaler Energieverlust  $Q$ , der eine Funktion des Stoßparameters  $p$  ist (s. [27]):

$$Q(p, E) = \frac{\alpha E^{1/2}}{(1 + \beta p)^5} \quad (67)$$

Die Parameter  $\alpha$  und  $\beta$  ergeben sich dann aus der speziellen Wahl der Elektronendichte. Im ursprünglichen Modell stammt diese aus dem Thomas-Fermi-Atommodell.

Mit einem solchen, für atomistische Simulationen gut geeigneten Ansatz, läßt sich der Energieverlust in separaten Kollisionen bestimmen. Den zugehörigen Bremsquerschnitt erhält man dann, indem man alle Stoßparameter über einen Kreis verteilt berücksichtigt, gemäß

$$S(E) = 2\pi \int_0^{\infty} p Q(p, E) dp \quad (68)$$

In Firsovs Modell ist angenommen, daß aufgrund der hohen Relativenergie das Projektil im Kollisionsvorgang keine Ablenkung erfährt. Insofern ist die Abhängigkeit vom Stoßparameter angemessen. Übergeht man jedoch diese Beschränkung, läßt also eine Ablenkung des Projektils zu, so verliert der Stoßparameter an Bedeutung. Wichtiger ist im Zusammenhang mit dem lokalen Energieverlust der minimale Stoßabstand  $R(p, E)$  beider Kollisionspartner. Zudem kann eine Elektronendichteverteilung, die exponentiell mit dem Abstand abfällt, zugrunde gelegt werden. Ein Ansatz, den lokalen Energieverlust mit diesen Parametern zu beschreiben, stammt von Oen und Robinson [73]:

$$Q(R, E) = k\sqrt{E} \frac{\gamma^2}{2\pi a^2} \exp(-\gamma R(p, E) / a) \quad (69)$$

Dabei ist  $k$  die Lindhard-Konstante aus Gleichung (64),  $a$  die Abschirmlänge des interatomaren Potentials und  $\gamma$  ein Parameter, der in der originalen Arbeit den Wert 0,3 besitzt. Entgegen der oftmals geübten Praxis,  $\gamma$  als freien Parameter zu betrachten, muß betont werden, daß der Wert 0,3 aus der speziellen Verwendung des Molière-Potentials abgeleitet werden kann.

### 3.2.4 Anpassung an Ladungsverteilungen und Bethe-Bloch-Formel

Der Exponentialterm hat die nominale Funktion, die Elektronendichteverteilung der beiden sich überlagernden Elektronenwolken der kollidierenden Atome zu beschreiben. In einer statistischen Beschreibung des Atoms, wie sie in der Behandlung der interatomaren Potentiale im allgemeinen gebräuchlich ist, bietet es sich an, die dort verwendete, glatte Elektronendichte als Basis für die Überlappdichte anzusetzen. Die Parameter im Oen-Robinson-Ansatz sollten dann dem jeweiligen interatomaren Potential bzw. dessen Abschirmfunktion angepaßt werden. Ein in dieser Arbeit verfolgter Ansatz soll im folgenden ausgeführt werden.

Dazu betrachte man die Poisson-Gleichung für die Ladungsverteilung  $\rho(r)$  in einem Zentralpotential  $V(r) = Z_1 Z_2 \Phi(r) / r$

$$\rho(r) \propto \frac{Z_1 Z_2}{r} \frac{d^2 \Phi}{dr^2} \quad (70)$$

Sei das Potential nun ein abgeschirmtes Coulomb-Potential mit exponentiellen Termen in der Abschirmfunktion (wie z.B. ZBL oder Molière)

$$\Phi(r) = \sum_i C_i \exp(-A_i r / a) \quad (71)$$

Dann ergibt sich eine radiale Elektronendichteverteilung

$$\rho(r) \propto \frac{Z_1 Z_2}{r} \sum_i \frac{A_i^2}{a^2} C_i \exp(-A_i r / a) \quad (72)$$

Für das AMLJ-Potential mit  $\Phi(r) = \exp(-Ar + Br^{1.5} - Cr^2)$  erhält man aber

$$\rho(r) \propto \frac{Z_1 Z_2}{r} \left[ \left( \frac{3}{4} B r^{-1/2} - 2C \right) + \left( -A + 1,5 B r^{1/2} - 2C r \right)^2 \right] \exp(-A r + B r^{1,5} - C r^2) \quad (73)$$

Im ersten Fall (Glg. (72)) wäre man also versucht, die exponentielle Abhängigkeit der bisherigen Oen-Robinson-Formel um zusätzliche Terme mit unterschiedlichen Exponenten zu erweitern. Einen entsprechenden Ansatz findet man z.B. in der aktuellen MARLOWE Version 14. Im zweiten Fall (Glg. (73)), wo die radiale Elektronendichte nicht nur exponentielle Abhängigkeiten aufweist, ist dieses einfache Vorgehen nicht mehr möglich.

Tatsächlich verwendet die ursprüngliche Formulierung des Oen-Robinson-Ansatzes den kleinsten Koeffizienten  $-A_i$  der Exponentialentwicklung der Abschirmfunktion, womit im Grunde das Verhalten für große Abstände  $r$  beschrieben wird. Dann variiert die Elektronendichte wie  $\exp(-A_i r) / r$ . Für das AMLJ-Potential verhält sich  $\rho(r)$  für große  $r$  wie  $\exp(-C r^2) / r$ . Diese Form ist nicht für den Oen-Robinson-Ansatz geeignet. Wenn man diesen nun nicht gemäß

$$Q(R, E) \propto R(p, E) \cdot \exp(-\gamma R(p, E)^2 / a^2) \quad (74)$$

neu schreiben, sondern seine funktionale Abhängigkeit behalten will, sucht man einen linearen Exponentialterm für die asymptotische Entwicklung. Ein solcher Term ist jedoch für AMLJ nicht definiert, da das Potential für große  $r$  (etwa Nächster-Nachbar-Abstand) sehr stark abfällt. Ein forciertes Anpassen würde in jedem Fall zu einer eng lokalisierten Elektronendichteverteilung führen, ganz im Gegensatz zu den abgeschirmten Coulombpotentialen.

Alternativ kann die Entwicklung der Ladungsdichte für kleine  $r$  betrachtet werden. Für alle abgeschirmten Coulomb-Potentiale erhält man ein sehr ähnliches Verhalten

$$\rho(r) \xrightarrow{r \rightarrow 0} \frac{Z_1 Z_2}{r} \left( \sum_i \frac{A_i^2}{a^2} C_i \right) \exp(-\Gamma r / a) \quad (75)$$

$$\text{mit } \Gamma = \frac{\sum A_i^3 C_i}{\sum A_i^2 C_i}$$

wobei  $\Gamma$  bei etwa 2,7 bis 3,2 liegt. Der Abfall ist also in diesem Bereich sehr viel steiler als im weiteren Verlauf der Abschirmfunktion. Die Entwicklung für das AMLJ-Potential führt aber zu dem singulären Ausdruck

$$\frac{d^2\Phi}{dr^2} \xrightarrow{r \rightarrow 0} \frac{3}{4} Br^{-1/2} \quad (76)$$

Damit ist dieser Ansatz, wie auch der vorige Fall  $r \rightarrow \infty$ , im Zuge einer universellen Anpassung, die nicht nur exponentielle Abschirmfunktionen gemäß (71) behandeln kann, ebenso ungeeignet.

Andererseits soll sich die radiale Abhängigkeit des lokalen Energieverlustes an der entsprechenden Elektronendichteverteilung orientieren. Die Reduzierung auf eine linear-exponentielle Funktion stellt in jedem Fall eine Approximation und Verallgemeinerung für die jeweilige atomspezifische Verteilung dar, so wie eine statistische Beschreibung keine Schalenstrukturen beschreiben kann. Insofern ist die Wahl eines geeigneten Koeffizienten, z.B. des minimalen Parameters  $A_1$ , nur eine Möglichkeit von vielen, sich dieser realen Verteilung für das gegebene Problem zu nähern. In einer BCA-Simulation scheint es deshalb angemessen zu sein, die Elektronendichteverteilung bis zu dem maximal möglichen Stoßabstand anzunähern. Für rein repulsive Potentiale ist dies bei hohen Energien der vorgegebene maximale Stoßparameter  $p_{\max}$ , während bei attraktiven Potentialen auch größere Werte auftauchen können. Im hier verfolgten Ansatz soll aber die Anpassung bis zum maximalen Stoßparameter erfolgen. Da die zweite Ableitung von  $\Phi(r)$  für  $r = 0$  nicht in jedem Fall existiert, soll  $\Phi(r)$  im Bereich  $0 \leq r \leq p_{\max}$  durch  $\exp(-\gamma r)$  approximiert werden;  $\rho(r) \sim d^2\Phi / dr^2$  hat dann dieselbe exponentielle Abhängigkeit.

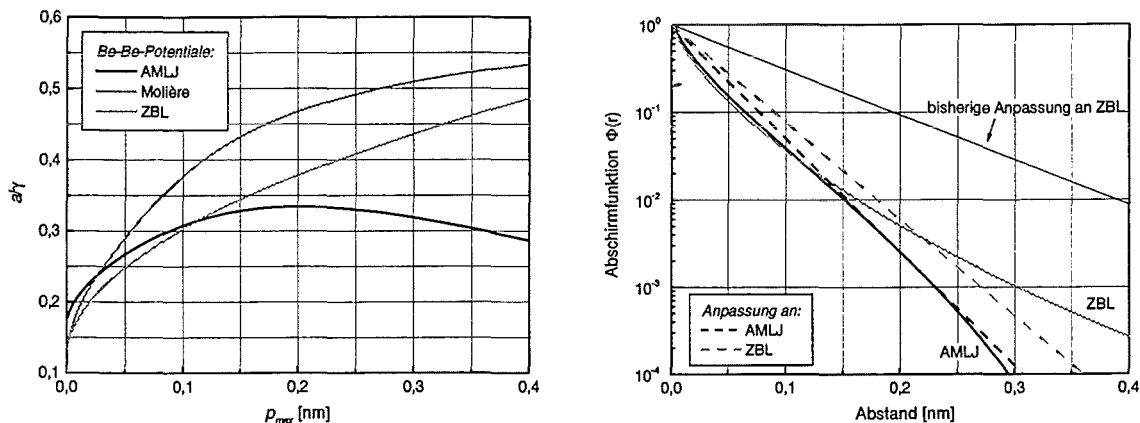
Dieses Verfahren ist für beliebige abgeschirmte Coulomb-Potentiale zu verwenden und liefert eine plausible exponentielle Verteilung des inelastischen Energieverlustes. Diese hängt dann wesentlich vom Quotienten aus der Abschirmlänge  $a$  des interatomaren Potentials und  $\gamma$  ab. Dessen Abhängigkeit von  $p_{\max}$  ist am Beispiel von Be-Be-Potentialen in ABB. 3.3 (links) dargestellt. Während offensichtlich für kleine Abstände die interatomaren Potentiale ähnliche Elektronendichten beschreiben, zeigen Molière und ZBL eine schwache Abschirmung bei großen Abständen. Ihr  $a/\gamma$  steigt folglich immer mehr an. Demgegenüber durchläuft die AMLJ-Kurve ein Maximum um 0,2 nm und sinkt dann langsam ab. Gegenüber den ursprünglichen Werten  $a/\gamma$ , die die asymptotischen Grenzwerte dieser Kurven für große  $p_{\max}$  sind, ergeben sich so zwar deutliche Abweichungen (für vorgegebenes  $p_{\max}$ , s. TAB. 3.3), die Unterschiede zwischen einzelnen Potentialen bleiben aber erhalten.

TAB. 3.3: Abschirmparameter  $a/\gamma$  für Be-Be-Potentiale: Maximaler Stoßparameter ist  $p_{\max} = 0,22$  nm.

	AMLJ <sup>(1)</sup>	AMLJ <sup>(2)</sup>	ZBL	Molière	Born-Mayer
bisher	-	-	0,845	0,620	0,219
neu	0,334	0,320	0,391	0,479	0,254

<sup>(1)</sup> mit spezifischen Parametern für Be; <sup>(2)</sup> mit gemittelten Parametern

Eine Ausnahme ist das ZBL-Potential, dessen neuer  $a/\gamma$ -Wert um mehr als 50 % reduziert ist. Dies liegt daran, daß der kleinste Koeffizient  $A_1$  mit 0,2016 gegenüber den anderen Potentialen extrem klein ist. Diese Abhängigkeit wird aber erst bei großen Abständen erreicht, so daß zunächst noch größere Koeffizienten überwiegen und damit  $a/\gamma$  effektiv niedriger angesetzt werden sollte. Auch zeigt der Vergleich der genauen Abschirmfunktionen mit den nach obigem Verfahren produzierten Exponentialfunktionen (vgl. **ABB. 3.3**, rechts), daß diese den Verlauf bis zu relevanten Abständen sehr gut beschreiben, besser als in der bisherigen Praxis.



**ABB. 3.3:** Anpassung der Elektronendichte an Potentialabschirmung:  $a/\gamma$  in der Oen-Robinson-Formel (links); Anpassung an Abschirmfunktionen für  $p_{\max} = 0,22$  nm.

Das Verfahren kann auch für andere beliebige repulsive Potentiale angewandt werden, unter der Voraussetzung, daß in diesem Falle  $d^2V(r) / dr^2$  angepaßt werden muß. Lediglich für attraktive Potentiale kann das Verfahren versagen, wenn  $V(p_{\max}) < 0$  ist. Zur Umgehung dieser Schwierigkeit wird ein einfacher iterativer Ansatz gewählt, indem  $p_{\max}$  sukzessive erniedrigt wird, bis das Potential positiv ist. Dies führt zwangsläufig zu einer relativ stark lokalisierten Ladungsdichteverteilung und damit zu einem lokalen Energieverlust, der für große Abstände schnell abfällt.

Wie im nichtlokalen Fall gilt der angegebene Energieverlust (69) in dieser Form nur für Energien bis etwa  $25 Z_1^{4/3}$  keV/amu. Bei höheren Energien wird er überschätzt, so daß auch hier in geeigneter Weise das Hochenergieverhalten integriert werden muß. Dies kann in Analogie zum nichtlokalen Querschnitt über das dort beschriebene Verfahren geschehen:

$$Q = S \frac{\gamma^2}{2\pi a^2} \exp(-\gamma R(p, E) / a) \quad (77)$$

$$S^{-1} = S_{low}^{-1} + S_{high}^{-1}$$

Berechnet man den inelastischen Bremsquerschnitt über Gleichung (68), nämlich

$$S(E) = S_{random}(E) \cdot \frac{\gamma^2}{a^2} \int_0^{\infty} \exp(-\gamma R(p, E) / a) p dp = S_{random}(E) \cdot \eta(E, \gamma) \quad (78)$$

so erhält man für nicht zu kleine Energien (wenn  $R(p, E)$  kaum von  $p$  abweicht) den nichtlokalen Querschnitt  $S_{random}$ , der beliebige („random“) Stoßparameter überstreicht. Bei kleineren Energien sinkt er jedoch unter diesen Wert ab (für repulsive Potentiale schneller als für attraktive, da  $R(p, E)$  stets größer als  $p$  ist). Insofern führt der lokale abstandsabhängige Ansatz in natürlicher Weise zu einer Reduktion der inelastischen Verluste bei kleinen Energien.

In einer BCA-Simulation ist es aber notwendig, den Stoßparameter in einer Kollision auf maximal  $p_{max}$  zu beschränken. Damit wird also ein Teil des inelastischen Bremsquerschnitts ausgelassen, da nicht alle Stoßparameter berücksichtigt werden können. Für hohe Energien (mit  $R(p, E) = p$ ) hat man dann

$$S(E) = 2\pi \int_0^{p_{max}} p Q(p, E) dp = S \left[ 1 - \left( 1 + \gamma p_{max} / a \right) \exp\left(-\gamma p_{max} / a\right) \right]. \quad (79)$$

Dieser Querschnitt ist also stets kleiner als der entsprechende nichtlokale Querschnitt, selbst bei diesen hohen Energien. Dabei ist die Differenz im allgemeinen recht klein (wenige Prozent). Diese kann man dadurch ausgleichen, daß man den zweiten Term als einen zusätzlichen Beitrag dem nichtlokalen Querschnitt zuschlägt.

Ein zweites BCA-typisches Artefakt betrifft den entlang einer endlichen Wegstrecke  $\Delta x$  auftretenden Energieverlust. Gemäß des differentiellen Charakters des spezifischen Energieverlustes muß dieser über  $\Delta x$  integriert werden, d.h. gegenüber der Annahme konstanter Geschwindigkeit ist die durch die verlangsamte Bewegung verursachte kontinuierliche Energieänderung  $\Delta E_{nl}$  geringer. Genauer findet man

$$\Delta E_{nl} = - \int_0^{\Delta x} \frac{dE(x)}{dx} dx. \quad (80)$$

Im Falle der LSS-Formel ergibt sich dann:

$$\Delta E_{nl} = k \sqrt{E_0} \Delta x \left( 1 - \frac{1}{2} \frac{k \sqrt{E_0} \Delta x}{2 E_0} \right) = \Delta E_{nl}^{unkorrigiert} \left( 1 - \frac{1}{4 E_0} \Delta E_{nl}^{unkorrigiert} \right), \quad (81)$$

wenn  $E_0$  die Energie zu Beginn der Wegstrecke  $\Delta x$  ist. Die relative Korrektur ist also proportional  $\Delta x / E_0^{-1/2}$ .

Um eine Größenabschätzung zu machen, sei  $\Delta x = 0,1$  nm. Dann ergibt sich für Beryllium ( $Z = 4$ ,  $M = 9$ ) bzw. Silizium ( $Z = 14$ ,  $M = 28$ ) folgende Korrekturen für  $E_0 = 10, 100, 1000$  eV: 5,7 %; 1,8 %; 0,6 % bzw. 13,8 %; 4,4 %; 1,4 %.

Damit wird klar, daß die Korrektur für BCA-typische Entfernungen von wenigen Ångstrom oberhalb einigen keV sehr klein ist. Dies ist um so prägnanter, je leichter das Atom ist. In jedem Fall liegt man noch im Gültigkeitsbereich der LSS-Formel, eine Anpassung des Energieverlustquerschnittes mit Hilfe der Bethe-Bloch-Formel ist deshalb in diesem Zusammenhang nicht nötig. Die Korrektur in diesem Bereich wird dann zwar überschätzt, ist aber selbst praktisch vernachlässigbar.

### 3.2.5 Bragg-Regel und semiempirische Korrektur

Für elementare Targetmaterialien ist die experimentelle Datenbasis sehr groß und die theoretische Beschreibung, wie oben erläutert, gut fundiert. Anders verhält es sich bei polyatomaren Materialien, also Verbindungen und Mischungen, und verschiedene Phasen desselben Materials. Die Datenbasis ist deutlich dünner, und empirische Approximationen sind schwieriger in allgemeiner Form zu präsentieren. Im wesentlichen beruft man sich bei der Bestimmung des nichtlokalen Energieverlustes auf eine einfache lineare Additivitätsregel (Braggs Regel, [74]). Sie besagt, daß sich das Bremsvermögen eines aus mehreren Atomspezies zusammengesetzten Materials als Summe der Beiträge der einzelnen Konstituenten, gewichtet durch die jeweilige relative Atomhäufigkeit, ergibt.

Konkret ergibt sich der Energieverlustquerschnitt gemäß [75]

$$S_{Compound} = \sum_i n_i S_i = \sum_i a_i \left( \frac{dE}{dx} \right)_i \quad (82)$$

und das mittlere Ionisierungspotential

$$\ln I_{Compound} = \frac{\sum_i n_i Z_i \ln I_i}{\sum_i n_i Z_i} \quad (83)$$

mit der relativen Atomhäufigkeit  $n_i$  und der Atomdichte  $a_i$  der Atome  $i$  im Material.

Empirisch ist Braggs Regel weitgehend betätigt. Trotzdem werden z.T. deutliche Diskrepanzen zu Experimenten konstatiert [76, 77]. Diese betreffen vorrangig Energien nahe oder unterhalb des Energieverlustmaximums, sowie Verbindungen mit Elementen kleiner Kernladungszahl  $Z$  [78]. Dies ist unmittelbar einleuchtend, da für immer kleinere Energien vorrangig Valenzelektronen zur Abbremsung beitragen, die z.B. in Niedrig- $Z$ -Atomen einen signifikanten Beitrag ausmachen. Die Verteilung der Valenzelektronen ist aber abhängig von der Bin-



derung der atomaren Konstituenten, so daß ihr Einfluß auf den Energieverlust in den oben skizzierten Fällen besonders dominant ist. Die einzelnen Konstituenten können nicht völlig separat betrachtet werden, wie es die Bragg-Regel vorschreibt, vielmehr müssen Bindungs- und Phaseneffekte eingebracht werden. Deshalb scheint eine Erweiterung der Bragg-Regel sehr attraktiv, die molekulare oder funktionale Gruppen berücksichtigt ([78, 79, 80]) bzw. getrennte Beiträge von Rumpf- und Valenzelektronen (CAB-Modell, Cores And Bonds, [81]). Beide verwandten Ansätze haben sich als ziemlich erfolgreich erwiesen, um experimentelle Werte zu reproduzieren. Eine Extrapolation auf andere Materialien und Verbindungen ist demgegenüber eher unsicher [75].

Phaseneffekte sind in diesen modifizierten Bragg-Modellen nur implizit enthalten. Allgemein kann aber konstatiert werden, daß Energieverlustquerschnitte in Gasen größer sind als in kondensierten Phasen desselben Materials. Dies rührt von der stärkeren Bindung von Außenelektronen in kondensierten Phasen her. Ein indirekter Effekt kann durch die unterschiedliche effektive Ladung eines Projektils in einer Mischung verschiedener Atome oder in unterschiedlichen Phasen eines Elementes eingebracht werden, wenn Ladungsaustauschprozesse eventuell beschleunigt werden [82].

Wesentlicher Parameter für die Bestimmung der Energieverlustquerschnitte im Bereich des Maximums und bei noch höheren Energien, wo die Kurve stark von der Bethe-Bloch-Formel beeinflusst wird, ist das mittlere Ionisierungspotential  $I$ . Insofern ist es möglich, durch Anpassung dieses Wertes eine zufriedenstellende Übereinstimmung von berechneter und experimenteller Kurve zu erhalten. Insbesondere kann ein effektives Ionisierungspotential aus experimentellen Werten abgeleitet werden, wobei aber stets zusätzliche Korrekturen, z.B. wegen des Shell-Terms im Bethe-Logarithmus, angebracht werden müssen. Fehlen solche experimentell oder auch theoretische ermittelten Werte, so kann ein einfaches Schema zur Bestimmung von  $I_{Compound}$  verwendet werden, indem die  $I$ -Werte der einzelnen Konstituenten nach Anpassung gemäß Bragg zusammengesetzt werden [58]. Mit diesem Wert kann man dann im Bereich oberhalb etwa 500 keV/amu die Energieverlustquerschnitte in der Bethe-Bloch-Formel bestimmen.

Der besonders sensitive Bereich unterhalb davon, der gerade für leichte Atome unter 14 MeV-Neutronenbestrahlung von großer Bedeutung ist, ist schwieriger zu behandeln. Doch wird von Thwaites [75] eine semiempirische Vorschrift angeführt, die auf der Sichtung vieler Experimente und von dort abgeleiteten approximativen Trends basiert. Es stellt zumindest eine erste approximative Korrektur zu den Bragg-Resultaten dar, ist aber - und das ist für eine Implementierung in einem Simulationscode entscheidend - praktisch und rechnerisch sehr kompakt, da nur wenige Parameter bestimmt werden müssen, anhand derer die einfachen, additiv zusammengesetzten Querschnitte angepaßt werden.

Im einzelnen verfährt man nach folgendem Schema für jedes beteiligte Atom (Energien in keV/amu):

1.  $E > 500$ : verwende  $I_{Compound}$  statt  $I_{Bragg}$  in der Bethe-Bloch-Formel
2.  $100 < E < 500$ : interpoliere die relative Abweichung zwischen  $S_{Compound}$  und  $S_{Bragg}$ , wobei die Abweichung bei 100 keV/amu durch das Verhältnis  $I_{Compound} / I_{Bragg}$  gegeben ist.
3.  $10 < E < 100$ : konstante Abweichung mit dem Wert bei 100 keV/amu (d.h. relative Abweichung steigt für kleinere Energien)
4.  $1 < E < 10$ : konstante relative Abweichung mit dem Wert bei 10 keV/amu

Dabei wurde im zweiten Schritt eine Vereinfachung gegenüber einer etwas genaueren Form vorgenommen, die zwar etwas weniger genau, dafür aber deutlich schneller ist. Die Vereinfachung betrifft zum einen die Verwendung der unteren Energiegrenze von 100 keV/amu, die eine Näherung für das Energieverlustmaximum darstellen soll. Bei dieser Energie liegt die beobachtete Korrektur innerhalb weniger Prozent um den Quotienten  $I_{Compound} / I_{Bragg}$ . Mit der dann bis 500 keV/amu interpolierten Korrektur erreicht man eine Genauigkeit bezüglich den experimentellen Werten von allgemein um 5 % und weniger. Angesichts der experimentellen Unsicherheiten in diesem Energiebereich, die in der Größenordnung von 10 % liegen, ist die Verwendung der vereinfachten Korrektur durchaus angemessen.

Die Implementierung des obigen Schemas (1. bis 4.) erreicht man leicht durch

1. setze  $I_{Compound}$  in die Bethe-Bloch-Formel ein.
2.  $S_{Compound} = S_{Bragg} \cdot (f_a \cdot E + f_b)$
3.  $S_{Compound} = S_{Bragg} + f_c$
4.  $S_{Compound} = S_{Bragg} \cdot f_d$

Die Koeffizienten  $f_a$  bis  $f_d$  sind dann die charakteristischen Größen für die Korrektur.  $f_a$  ist im allgemeinen sehr klein,  $f_b$  und  $f_d$  sind für kondensierte Phasen praktisch immer kleiner 1. Diese beiden multiplikativen Koeffizienten geben einen guten Eindruck von den zu erwartenden Änderungen. Dabei hängt  $f_b$  nur sehr schwach von der Ladung des jeweiligen Ions ab, im Gegensatz zu  $f_d$ , das für schwere Ionen im allgemeinen einige Prozent kleiner ist.

### 3.3 Kristallbindung

Beim Aufbau chemischer Verbindungen bzw. kristalliner Festkörper wird die sogenannte Konfigurationsenergie  $E_c$  frei. Sie beschreibt die Energiedifferenz, wenn alle Konstituenten aus unendlicher Entfernung herangeholt werden und die Verbindung bzw. den Kristall bilden. In einer, der binären Stoßapproximation angemessenen Paarpotentialbeschreibung definiert man demgemäß [83]

$$E_C = \frac{1}{2} \sum_{i,j} V_2^{eff}(\vec{R}_i, \vec{R}_j) \quad (84)$$

wobei  $V_2^{eff}$  ein effektives Paarpotential zwischen zwei Konstituenten an den Orten  $\vec{R}_i$  und  $\vec{R}_j$  ist und sich die Summe über alle beteiligten Konstituenten (Atome, Ionen, Moleküle) erstreckt.

Soll nun ein Atom oder Ion aus dieser Konfiguration entfernt werden, muß Energie aufgebracht werden. Je nach der speziellen Fragestellung, kommen unterschiedliche Ansätze in Betracht, um diese Energie zu bestimmen bzw. zu definieren. Zum einen kann die Stärke der interatomaren Bindungen unter dem Begriff Bindungsenergie quantifiziert werden. Mit der Leerstellenbildungsenergie bezeichnet man demgegenüber die Differenz aus den Konfigurationsenergien des perfekten Kristalls und des Kristalls mit einer Leerstelle. In Anlehnung daran muß eine Leerstellenmigrationsenergie aufgebracht werden, um die athermische Bewegung einer Leerstelle zu ermöglichen. Analoge Bezeichnungen führt man auch für Zwischengitteratome ein (Interstitialbildungs- bzw. migrationsenergie).

Bezüglich der Art der Bindung unterscheidet man metallische, polare (kovalente) und ionische Bindung (neben anderen wie Van-der-Waals- und Wasserstoffbrückenbindungen), je nach der speziellen Verteilung der äußersten Hüllenelektronen, die die freien Konstituenten in das Kristallgitter einbringen. Im Regelfall findet man selten einen einzigen Bindungscharakter vor, sondern eine Überlagerung verschiedener Typen. So weisen manche Metalle einen kleinen kovalenten Beitrag auf, während bei kovalenten Bindungspartnern je nach Differenz der Elektronegativitäten eine ionische Komponente hinzutritt. Diese partielle Ionizität  $I_{AB}$  zwischen zwei Komponenten  $A$  und  $B$  kann gemäß Pauling direkt aus der Differenz der Elektronegativitäten  $x_A$  und  $x_B$  abgeleitet werden [84]:

$$I_{AB} = 1 - \exp\left(-\frac{1}{4}(x_A - x_B)^2\right) \quad (85)$$

In einer vollen dynamischen Simulation beschreibt das interatomare Mehrkörper-Potential die Bindung der Konstituenten. Im Falle der BCA mit rein repulsiven Potentialen ist es nicht möglich, solche Bindungseffekte adhoc einzubauen. Selbst in attraktiven Potentialen ist keine Bindungsenergie enthalten, sondern muß explizit angegeben werden. Im einfachsten Fall gibt man für jedes Atom eine feste Bindungsenergie vor. In MARLOWE, Version 13, kann zudem zwischen gewöhnlichen Verlagerungen, Ersetzungsstößen und Zwischengitterverlagerungen unterschieden werden. Im folgenden soll untersucht werden, inwieweit die lokale Umgebung eines Atoms dessen Bindung beeinflusst, und wie ein solcher Effekt in die BCA-Simulation eingebaut werden kann.

### 3.3.1 Lokale Paarpotentialbeschreibung

In der Nähe eines Punktdefekts (Leerstelle, Zwischengitteratom oder substitutionelles Fremdatom) bilden sich Verspannungsfelder aus, in denen die umliegenden Gitteratome auf neue Ruhelagen relaxieren. Diese sind gegenüber den exakten Punktlagen des Gitters verrückt und bewirken deshalb eine Änderung der Konfigurationsenergie. Die Größe und Form eines Verspannungsfeldes hängen stark von der Gitterstruktur und der gewählten Minimalverrückung (z.B. 3 % des nominellen Atomabstands) ab. Im allgemeinen erhält man so nichtsphärische Körper mit einem Volumen von wenigen bis einigen hundert mittleren Atomvolumina. Für Leerstellen sind diese Verspannungsfelder eher kleiner als für ein Zwischengitteratom im gleichen Gitter [85, 86]. Liegen mehrere Punktdefekte in enger Nachbarschaft, so kann man in einfachster Näherung die Verspannungsfelder linear kombinieren und die potentiellen Energieänderungen addieren.

Liegen vorrangig ionische Bindungen vor, so erwartet man aufgrund der Langreichweitigkeit coulombscher Kräfte eher größere Verspannungsfelder. Je nach Polarität der Fehlstelle werden die Bindungslängen verkürzt oder verlängert, entsprechend die Bindung verstärkt oder geschwächt. Insbesondere ist dann auch eine Fehlbesetzung durch ein angrenzendes Ion entgegengesetzter Ladung erleichtert.

Kovalent gebundene Atome erfahren einen Bindungsaufbruch, der im wesentlichen nur die Atome im Abstand nächster Nachbarn beeinflusst. Die Verspannungsfelder tendieren zu kompakten Formen. Zwischengitteratome verursachen nur leichte Verdrängungen und sind selbst nur sehr schwach gebunden.

Im Metallen muß zusätzlich noch eine Tendenz zur Bindungsverstärkung berücksichtigt werden. Ursache hierfür ist, daß nach Aufbruch einer Verbindung durch Verlagerung eines Atoms die Abstände benachbarter Atome zur Kompensation verkürzt werden und deren Bindungsstärke ansteigt. Qualitativ findet man, daß für sinkende Koordinationszahl eines Atoms dessen Bindungsstärke, bezogen auf ein Nachbaratom, zunimmt. Quantitative Aussagen lassen sich z.B. über ein „Tight-Binding“-Modell (TB-Modell) gewinnen [47]. Darin ist die Konfigurationsenergie des Systems die Summe aus einem (repulsiven) radialen Paarpotentialbeitrag und dem attraktiven TB-Term:

$$E_C = \frac{1}{2} \sum_{i,j} V_2(R_{ij}) + \sum_i U_{TB}^i(\mu_2^i) \quad (86)$$

$$R_{ij} = |\vec{R}_i - \vec{R}_j|$$

Die einzelnen Bindungsbeiträge  $U_{TB}^i$  hängen von der auf den jeweiligen Gitterplatz  $\vec{R}_i$  projizierten Einelektronenzustandsdichte  $\rho_i(E)$  ab:

$$U_{TB}^i = 2 \int_{-\infty}^{E_F} E \rho_i(E) dE \quad (87)$$

mit  $\rho_i(E) = \sum_{\nu} |\langle \Psi_{\nu} | i \rangle|^2 \delta(E - E_{\nu})$  und  $E_F$  der Fermienergie der Elektronen

Darin sind die  $\Psi_{\nu}$  Eigenfunktionen zur Energie  $E_{\nu}$  des Einelektron-Hamiltonian  $H = \sum_{i \neq j} h_{ij} |i\rangle\langle j|$  mit orthogonal gewählten lokalisierten Elektronorbitalen  $|i\rangle$ .  $\mu_2^i$  (vgl. Glg. (86)) ist dann das zweite Moment von  $E$ :

$$\mu_2^i = \int_{-\infty}^{\infty} E^2 \rho_i(E) dE = \sum_j h_{ij}^2 \quad (88)$$

Beschränkt man sich auf das zweite Moment zur Beschreibung von  $\rho_i(E)$  (d.i. im wesentlichen die Valenzbandbreite), so erhält man aus Dimensionsgründen ( $U_{TB}$  in Einheiten der Energie,  $\mu_2^i$  in (Energie)<sup>2</sup>)

$$U_{TB}^i = -const. (\mu_2^i)^{1/2} \quad (89)$$

Nun folgt wegen  $\mu_2^i \propto Z$  (= Anzahl der nächsten Nachbarn, die zur Bindung beitragen) auch  $U_{TB} \propto Z^{1/2}$ , d.h. pro Bindung erhält man eine Bindungsstärke proportional  $Z^{1/2} / Z = Z^{-1/2}$ , da aufgrund des Pauli-Prinzips Elektronen nicht in beliebiger Weise zur Bindung beitragen können.

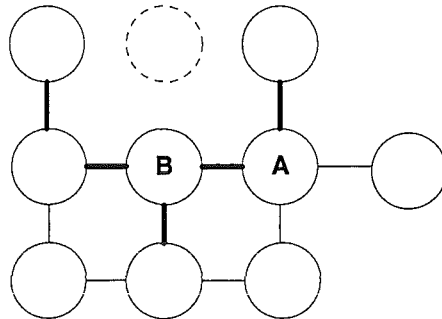
Findet man umgekehrt einen solchen  $U$ - $Z$ -Zusammenhang, dann ist eine Paarpotentialbeschreibung der Konfigurationsenergie angemessen. Man definiert ein Referenzsystem, das auch rein hypothetisch sein kann, als diejenige lokale Umgebung, von der die realisierten lokalen Umgebungen nur leicht abweichen.  $U_{TB}$  kann dann um den Wert  $\mu_2^{ref}$  des Referenzsystems entwickelt werden. In linearer Näherung erhält man so ein effektives Paarpotential

$$V_2^{eff}(\bar{R}_i, \bar{R}_j; \mu_2^{ref}) = V_2(R_{ij}) + 2h_{ij}^2 \frac{dU_{TB}}{d\mu_2}(\mu_2^{ref}) \quad (90)$$

Damit läßt sich auch die Bindungsänderung zwischen zwei Gitterplätzen mit lokalen Koordinationszahlen  $Z_i$  und  $Z_j$  gegenüber der Referenzkoordination  $Z_{ref}$  bestimmen:

$$V_2^{eff}(\bar{R}_i, \bar{R}_j; \mu_2^i, \mu_2^j) = V_2(R_{ij}) + h_{ij}^2 \frac{dU_{TB}}{d\mu_2}(\mu_2^{ref}) \left( \sqrt{\frac{Z_{ref}}{Z_i}} + \sqrt{\frac{Z_{ref}}{Z_j}} \right) \quad (91)$$

Veranschaulichen läßt sich dieser Formalismus an einem einfachen zweidimensionalen Modell mit Nächsten-Nachbarn-Bindungen, das die Umgebung einer Gitterfehlstelle darstellt:



**ABB. 3.4:** Schematische Darstellung von Bindungsverstärkungen in der Nähe einer Leerstelle. Breite Linien bezeichnen Bindungen, die durch die Leerstelle verstärkt werden.

Offensichtlich hat das Atom B drei verstärkte Bindungen, so daß die resultierende Bindungsstärke  $3\sqrt{4/3} = 3,46$  beträgt. Ohne Bindungsverstärkung hätte man einfach den Wert 3,0. Das Atom A hat weiterhin 4 Bindungen, wovon aber zwei durch Anwesenheit der Leerstelle verstärkt sind. Die totale Bindungsstärke beträgt also  $2\sqrt{4/3} + 2 = 4,31$ . In diesem Beispiel erkennt man, daß bevorzugt mit B ein Leerstellenpaar gebildet werden kann.

Die nächsten Nachbarn einer Leerstelle sind zwar schwächer gebunden, da Bindungen wegfallen, aber die übrigen Bindungen sind zum Teil verstärkt. Übernächste Nachbarn sind sogar stärker gebunden als im ungestörten Gitter, da ihre Bindungen in Leerstellennähe verstärkt sind. Dieser Effekt ist jedoch nicht aus der direkten Nachbarnliste eines solchen Atoms (A im obigen Beispiel) abzulesen, sondern lediglich aus der eines direkten Nachbarn. Im skizzierten Beispiel bedeutet dies, daß über die Stärke der Bindung B-A nichts ausgesagt werden kann, sofern man sich auf die direkten Nachbarschaft des Atoms A beruft, sondern nur dann, wenn auch die Nachbarnliste des Atoms B untersucht wird. Selbst in diesem einfachen zweidimensionalen Modell mit ausschließlich Nächsten-Nachbarn-Verbindungen bedeutet es einen mehrfachen Aufwand, die Bindungsverstärkung eines solchen Atoms festzustellen. Dies ist um so prägnanter für realistische Modellierungen in einem BCA-Modell, so daß nur Atome mit einer direkten Bindungsbeeinflussung in das lokale Bindungsmodell integriert werden sollen (s. nächstes Kapitel).

Nach den in Ref. [47] angegebenen Daten (bcc-Übergangsmetalle), erlaubt ein solcher TB-Paarpotential-Ansatz eine relativ gute Berechnung von Leerstellenbildungsenergien. Die Werte liegen innerhalb etwa 5 % der vollständigen TB-Ergebnisse und innerhalb etwa 20 % der experimentellen Werte. Ein Vergleich von den in [85] aufgeführten Ergebnisse von molekulardynamischen Rechnungen für Änderungen der Konfigurationsenergien  $E_c$  im Verspannungsfeld einer Leerstelle (in *Fe* (bcc), *Ni* (fcc) und in einem idealen hcp-Metall) mit dem TB-Formalismus zeigt **TAB. 3.4:**

TAB. 3.4: Konfigurationsenergien  $E_c$  und deren Änderungen im Verspannungsfeld einer Leerstelle:

	bcc, Z=8	fcc, Z=12	hcp, Z=6
$E_c$ [eV]	1,537	1,408	1,425
$\Delta E_c$ [eV], Beeler [85]	0,099	0,133	0,132
$\Delta E_c$ [eV], diese Arbeit	0,10	0,06	0,124

Auch diese Werte verdeutlichen, daß der einfache Formalismus Resultate liefern kann, die in vernünftiger Übereinstimmung mit akkuraten Berechnungen stehen.

### 3.3.2 Das lokale Bindungsmodell

Das hier neu implementierte lokale Bindungsmodell basiert auf diesem Formalismus, wobei unterschiedliche Bindungsarten separat integriert sind. Im einzelnen definiert man zunächst für jedes Atom  $i$  auf jedem kristallographisch verschiedenen Gitterplatz  $\nu$  minimale und maximale Bindungsenergien  $E_B^{\min, \max}(i, \nu)$ , innerhalb derer die tatsächliche Bindungsenergie je nach lokaler Umgebung schwanken kann. Dabei bestimmt die kohäsive Energie die obere Grenze, während die minimale Bindungsenergie nicht eindeutig festgelegt ist. Nach einem Vorschlag von M.T. Robinson [87] kann jedoch die Leerstellenbildungsenergie  $E_\nu$  die minimale Bindungsenergie definieren, wenn man  $E_\nu$  als die Differenz der maximalen und einer mittleren Bindungsenergie (für die halbe nominelle Koordination) schreibt.

Zusätzlich zu den einzelnen Bindungsenergien spezifiziert man die relativen Bindungsanteile zu benachbarten Gitterpunkten und deren Art (metallisch, ionisch, kovalent). Damit ist es dann auch leicht möglich, gemischte Bindungen (z.B. metallisch-kovalent) zu definieren.

Der Verlust einer Bindung wirkt sich nun je nach Bindungstyp unterschiedlich aus. Für metallische Bindungsanteile erhält man die oben erläuterte Verstärkung, die entsprechend der Bindungsspezifizierung in folgender Weise verallgemeinert werden kann:

$$E_{B,met}(i, \nu) = E_{B,met}^{\max}(i, \nu) \left( \frac{E_{B,met}^{\max}(i, \nu) - E_{B,met}^V(i, \nu)}{E_{B,met}^{\max}(i, \nu)} \right)^{1/2} \quad (92)$$

Dabei ist  $E_{B,met}^{\max}(i, \nu)$  die gesamte metallische Bindungsenergie eines Atoms für ein perfektes Gitter und  $E_{B,met}^V(i, \nu)$  der durch Leerstellen in der Nachbarschaft verursachte metallische Bindungsverlust. Diese Form geht also über das einfache Nächste-Nachbarn-Schema hinaus in der Hinsicht, daß die Voraussetzung gleichlanger und -starker Bindungen zu nächsten Nachbarn fallengelassen wird. Vielmehr wird für jeden Nachbarn aus der Nachbarnliste eines Atoms dessen individueller metallischer Bindungsanteil spezifiziert. Dies erlaubt die Einbeziehung von unterschiedlichen Bindungslängen und entfernteren Nachbarn in das lokale Bin-

dungsmodell. Die Bindungsverstärkung ergibt sich dann, indem alle Bindungsverluste addiert werden und gemäß (92) die tatsächliche Bindungsenergie berechnet wird.

Kovalente Bindungsverluste werden nicht durch Verkürzung übriger Bindungen reduziert, sondern verringern direkt die Bindungsenergie, d.h. der kovalente Anteil  $E_{B,kov}^{\max}(i, \nu)$  sinkt analog dem Verlust  $E_{B,kov}^V(i, \nu)$ :

$$E_{B,kov}(i, \nu) = E_{B,kov}^{\max}(i, \nu) - E_{B,kov}^V(i, \nu) \quad (93)$$

In ionischen Bindungen muß die Polarität der Nachbargitterplätze beachtet werden. So bedeutet das Fehlen eines homopolaren Ions eine Festigung der Bindung, da eine repulsive Komponente wegfällt. Im umgekehrten Fall verursacht die fehlende attraktive Komponente eine Schwächung. Wie bei kovalenter Bindung kann man auch im ionischen Fall davon ausgehen, daß die entsprechenden Bindungsänderungen linear dem Gewinn bzw. Verlust an ionischer Bindungsenergie folgen:

$$E_{B,ion}(i, \nu) = E_{B,ion}^{\max}(i, \nu) - E_{B,ion}^V(i, \nu) \quad (94)$$

$$\text{mit } E_{B,ion}^V(i, \nu) = - \sum_{\text{Leerstellen } \mu} E_{B,ion}(i, \nu, \mu) \frac{Z^*(i) Z^*(\mu)}{|Z^*(i) Z^*(\mu)|}$$

Dabei ist  $E_{B,ion}(i, \nu, \mu)$  der ionische Bindungsbeitrag für Atom  $i$  auf Gitterplatz  $\nu$  mit nomineller Besetzung auf Gitterplatz  $\mu$ ,  $Z^*(i)$  bzw.  $Z^*(\mu)$  die ionische Ladung des betrachteten Gitteratoms bzw. die nominelle ionische Ladung am Ort der Leerstelle. Der Bruch in obiger Gleichung ist dann das Vorzeichen des Produktes beider Ladungen und bestimmt folglich Zuwachs oder Verlust. Aufgrund der Polaritätsabhängigkeit der ionischen Bindung spielen auch Fremdatome eine wichtige Rolle in der lokalen Umgebung. Diese werden in obiges Modell (94) eingebunden, indem die Differenz aus aktuellem Bindungsbeitrag und nominalem Bindungsbeitrag (wenn Gitterplatz ordnungsgemäß besetzt wäre) addiert wird.

Die Summe der gemäß (92)-(94) berechneten Beiträge muß nun auf die maximale Bindungsenergie für dieses Atom auf dem entsprechenden Gitterplatz normiert werden. Dann erhält man gemäß

$$E_B(i, \nu) = E_B^{\min}(i, \nu) + \frac{\sum_x E_{B,x}(i, \nu)}{E_B^{\max}(i, \nu)} (E_B^{\max}(i, \nu) - E_B^{\min}(i, \nu)) \quad (95)$$

die lokale Bindungsenergie  $E_B(i, \nu)$  für ein Atom  $i$  auf Gitterplatz  $\nu$ .



Zwischengitteratome werden in der Bestimmung der lokalen Bindungsenergie nicht berücksichtigt. Andererseits können sie in der gleichen Methodik wie reguläre Gitteratome behandelt werden, sofern Bindungsenergien und -anteile bekannt sind. Fehlen solche Angaben, kann wie gewohnt eine feste, konstante Bindungsenergie gewählt werden. Dazu bieten sich die Zwischengittermigrationsenergie (s. z.B. [88, 89]) oder die Aktivierungsenergie für Selbstdiffusion (s. z.B. [90]) an.

Für Ersetzungsstöße wird im Prinzip das Modell für gewöhnliche Gitteratomverlagerungen übernommen, wenngleich die maximale Bindungsenergie, die im übrigen meist sehr viel kleiner als die gewöhnliche Bindungsenergie gewählt wird (s. z.B. [87, 91]), einheitlich für alle Gitterpunkte vorgegeben ist.

## 4 KRISTALLMODELLIERUNG UND BCA-SIMULATIONSMODELL

### 4.1 Kristallite

MARLOWE erlaubt es, in flexibler Weise Kristalle und deren Atombesetzungen zu definieren. Dabei werden die drei kristallographischen Achsen der Elementarzelle, Gitterkonstanten und Winkel, und eine eventuelle Zentrierung angegeben, sowie die Basis der Kristallstruktur, d.h. die Punktlagen innerhalb der Elementarzelle. Für primitive und einfach-zentrierte Gitter reicht so die Angabe einer einzigen kristallographischen Punktlage, um die kristalline Struktur des Targets zu definieren. Koordinaten können sowohl in internen, orthogonalen Einheiten, als auch im jeweiligen, i.a. nichtorthogonalen Kristallsystem des Targets angegeben werden. Der Code generiert dann, abhängig von einem geeignet gewählten Suchradius, einen elementaren Kristalliten (etwa einige hundert Gitterpunkte) und Nachbarnlisten zu jedem Gitterpunkt. Der vollständige Kristall wird dann, ausgehend vom Kristalliten, durch Addition von Koordinaten der Nachbarnlisten entlang der Atomtrajektorien konstruiert.

In der vorliegenden Arbeit wurden einige wesentliche Verbesserungen an diesem Kristallitmodell vorgenommen. Dies betrifft Korrekturen in der Genauigkeit der Gitter, schnellere Suchroutinen, verlässliche Implementierung von Voidgitterplätzen und vollständigen Voidlayern, sowie die Suche nach Rekombinationsplätzen.

#### 4.1.1 Präzision und reale Gitterpunkte

Erster Ansatzpunkt war, die Genauigkeit der im Code verwendeten Kristallgitter zu erhöhen. Werden nämlich Koordinaten aus der Eingabe direkt verwendet, so ist nicht garantiert, daß diese exakt auf Gitterpunkte fallen. Will man andererseits Projekteile definiert von Gitterpunkten starten, was für PKA's vorgeschrieben ist, muß man die vorliegenden Koordinaten auf die realisierten Punktlagen einschränken. Zu diesem Zweck wurden zwei Optionen vorgesehen, zum einen eine Festlegung auf den nächsten Gitterplatz unabhängig vom vorgegebenen Typ und zum anderen die Zuweisung an den nächsten Gitterplatz des ausgewählten Typs. Konkret beginnt die Suche nicht beim Koordinatenursprung (wie in MARLOWE 13), sondern am Ursprung der Elementarzelle, die den fraglichen Punkt enthält. Dieser Ansatz kann in vielen Fällen eine deutliche Beschleunigung auch für Kristallsuchvorgänge bringen, z.B. dann, wenn der gesuchte Punkt sehr weit entfernt vom Ursprung liegt. Anschließend wird in der Nachbarnliste ein geeigneter, näherliegender Gitterpunkt ausgesucht. Besonderes Augenmerk muß dabei auf die Vollständigkeit dieser Listen gelegt werden, da diese in der Regel nicht alle definierten Gitterpunkte des Kristalls umfassen. Will man in diesem Falle einen Gitterplatz des ausgewählten Typs finden, muß man zunächst beliebige andere Gitterpunkte sukzessive verwenden, bis der gesuchte Punkt innerhalb der Suchentfernung einer Nachbarn-

liste liegt. So wird sichergestellt, daß immer dann ein korrekter Gitterplatz gefunden wird, wenn er tatsächlich innerhalb des Nachbarsuchradius liegt. Andernfalls wird ein anderer, nahegelegener Gitterplatz ausgewählt. Wählt man dann zusätzlich identische Projektil- und Referenzorte in der Eingabe, dann startet das Projektil direkt von einem realen Gitterplatz, alternativ bleibt die relative Differenz zwischen den beiden Koordinaten erhalten.

### *4.1.2 Voidgitterplätze und Zwischengitterpositionen*

Es ist im Kristallitmodell möglich, Gitterplätze ohne Besetzung bzw. mit teilweiser Besetzung zu definieren. Im folgenden werden diese als Voidplätze bzw. Voidanteile bezeichnet.

Voidplätze sollten keine Auswirkungen auf die Kaskadenentwicklung und die Kaskadenresultate haben. Trotzdem findet man solche, von z.T. drastischen Ausmaßen, in den ursprünglichen MARLOWE-Simulationen. Ursache hierfür ist der Algorithmus bei Targetsuche und für simultane Kollisionen (vgl. Kapitel 2.3.2). Voidplätze tauchen in prinzipiell der gleichen Weise wie herkömmliche Gitterplätze in den Targetlisten auf. Sie spielen vor allem dann eine Rolle, wenn das Projektil kein besetztes Target (Gitteratom oder Zwischengitteratom) in der aktuellen Zeitscheibe trifft. In solchen Fällen kann ein Voidplatz als nächster Referenzplatz ausgewählt werden, von dem aus eine erneute Targetsuche gestartet wird, oder das Projektil rückt unabgelenkt bis zu diesem Voidplatz vor. Die anschließende Targetsuche liefert in jedem Fall eine neue, die Stoßkinematik modifizierende Konstellation von Targetpositionen. Besonders prägnant ist dies, wenn das Projektil vorrückt und entsprechend einen nichtlokalen Energieverlust aufweist. Die folgende Stoßauswertung wird mit reduzierter Projektilenergie berechnet, so daß sich alle Stoßintegrale ändern. Nochmals: dies ist kein physikalischer Effekt, sondern ein Artefakt des Simulationsmodells in MARLOWE.

Um nun solche modellierungsbedingten Änderungen weitgehend auszuschalten, wurde der Algorithmus zur Targetsuche modifiziert: Zunächst werden wie bisher alle Gitterplätze in der Nachbarnliste selektiert (inklusive also der Voidplätze) und eventuelle Zuordnungen von Zwischengitteratomen berücksichtigt. Anschließend werden dann alle unbesetzten Gitterplätze (inklusive Voidplätze) ausgesondert, mit Ausnahme des nächstgelegenen Voidplatzes, sofern keine herkömmlichen Gitterplätze in der Liste potentieller simultaner Targets auftauchen. Dies ist vor allem im Zusammenhang mit Voidlayern von Bedeutung (s. Kap. 4.1.4 und 4.3.2.1).

Diese Modifikation der Targetsuche führt in den meisten Fällen zu identischen Kollisionskonstellationen, so daß unabhängig von der Dichte von Voidplätzen Kaskadenresultate reproduzierbar bleiben. Bedingt durch die für Voidgitter nötigen Änderungen erhält man trotzdem in etlichen Fällen einen Projektilreferenzplatz, der ein Voidplatz ist. In diesen Fällen ist das oben beschriebene abweichende Verhalten möglich. Bei größeren Suchradien ist dieser Effekt etwas vermindert.

Solchermaßen definierte Voidplätze können nun dazu verwendet werden, gestoppten Kaskadenatomen Zwischengitterpositionen zuzuordnen. Dies erfordert vorrangig eine Anpassung der Defektidentifizierung in MARLOWE. In der vorliegenden Fassung werden gestoppte Kaskadenatome ausschließlich mit echten Gitterfehlstellen, die in der Kaskade erzeugt oder zusätzlich definiert wurden, gepaart. Ein Zwischengitterplatz, als Voidplatz definiert, kann in dieser Methodik nicht eingebracht werden. Dasselbe gilt auch für teilweise besetzte Gitterlagen, die also einen unter Umständen signifikanten Voidanteil aufweisen.

Demgemäß sollen zwei Ausnahmen für die Zuordnung zu echten Leerstellen im folgenden vorgestellt und implementiert werden:

1. Statistisch besetzte Gitterplätze mit einem Voidanteil  $\nu$ : Dann soll eine Rekombination mit der Wahrscheinlichkeit  $\nu$  erlaubt sein, für weiter entfernte Atome jedoch stark abstandsabhängig (s.u. Gleichung (96)).
2. Voidplätze: Ein gestopptes Atom soll diesem Platz zugeordnet werden, wenn dieser der Referenzplatz ist. Andernfalls soll es mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit einem Atom in der Nachbarschaft zugewiesen werden. Fall jedoch eine echte Leerstelle oder ein vakanter, statistisch besetzter Gitterplatz (s. 1.) innerhalb der abgesuchten Entfernung liegt, ergibt sich wie gewohnt eine Rekombination („near pairs“).

Die modifizierte Wahrscheinlichkeit für die Zuordnung zu nahen Referenzpunkten (Voidanteile oder Voidplätze) soll mit dem Abstand zum Atom stark abfallen mit einer charakteristischen Länge, die etwa dem Abstand nächster Nachbarn entspricht. Ohne eine solche Einschränkung würde man praktisch immer eine Rekombination mit einem Voidanteil erhalten. Außerdem wäre nicht klar, wie rekombinierte Defekte von stabilen Defekten bei Anwesenheit von Voidplätzen zu trennen sind. Erst eine schnell mit dem Abstand abfallende Zuordnungswahrscheinlichkeit sichert dieses Defektidentifizierungskonzept.

Dazu wird folgende Wahrscheinlichkeit postuliert:

$$W(r) = W_0 \cdot \exp(-r / r_{\min}) \quad (96)$$

mit  $W_0$  der Wahrscheinlichkeit im Abstand  $r = 0$  (d.h.  $W_0 = \nu$  für Fall 1,  $W_0 = 1$  für Fall 2) und  $r_{\min}$  dem minimalen Atomabstand des Targetkristalls.

Im Abstand  $r = r_{\min}$  beträgt also die Wahrscheinlichkeit für eine Zuordnung  $W = 0,37 \cdot W_0$ , und bei  $r = 2 \cdot r_{\min}$  erhält man  $W = 0,14 \cdot W_0$ .

Die Implementierung dieses abstandsabhängigen Rekombinations- bzw. Zuordnungsmodells beginnt mit einer in der Eingabe festzulegenden Auswahl, ob und in welchem Maße diese Zuordnungen in der Fällen 1 und 2 möglich sind. Insbesondere kann für jeden Gitterplatz, unabhängig von dessen tatsächlichem Voidanteil, die Wahrscheinlichkeit  $W_0$  gewählt werden. In der Defektidentifizierung wird zunächst der Referenzplatz des augenblicklichen Atoms unter-

sucht. Ist dieser eine Leerstelle, dann rekombinieren beide spontan. Wenn nicht, kann das Atom einem Zwischengitterplatz zugeordnet werden oder aber es rekombiniert mit der Wahrscheinlichkeit  $W_0$  auf einem vakanten Gitterplatz. Ist jedoch diesem Gitterplatz bereits ein anderes gestopptes Kaskadenatom zugeordnet, das bereits früher gestoppt wurde, dann ist die vorgesehene Zuordnung verboten.

Wenn das Atom nun nicht mit seinem Referenzplatz rekombiniert hat, wird seine Nachbarnliste untersucht. Hierbei stehen dann gewöhnliche Leerstellen und vakante Gitterplätze (sofern diese verfügbar sind, s.o.) in Konkurrenz; insbesondere kann so ein Atom mit einem Voidanteil rekombinieren, wenn der entsprechende Gitterplatz näher liegt als alle echten Leerstellen.

Ist auch in diesem Schritt keine Rekombination erfolgt, steht das Atom als Teil eines stabilen Defektpaares zur Verfügung. Es wird einem Gitterreferenzplatz zugeordnet, normalerweise dem bisherigen, jedoch mit der Wahrscheinlichkeit  $W(r)$  einem Voidplatz.

Alle gemäß Fall 1 rekombinierten Atome werden getrennt registriert, ebenso die Belegungen von Voidplätzen.

### 4.1.3 Kristallsuche

Im bisherigen MARLOWE-Modell ist der maximale Suchradius gleichzeitig der Radius für spontane Defektrekombination. Liegen jedoch langreichweitige Potentiale vor, deren Reichweite ein Vielfaches eines Nächsten-Nachbarn-Abstands beträgt, so ist diese strenge Kopplung unzulässig. Denn zur konsistenten Stoßsimulation werden entsprechend große Nachbarnlisten benötigt, die alle Targets umfassen, die am Ort des Projektils eine Ablenkung verursachen können. Innerhalb dieses großen Suchradius ist aber nur ein kleinerer Teil für spontane Rekombination verfügbar. Dieser Kristallbereich soll aber ähnlich schnell durchsucht werden können, wie die Targetliste.

Realisiert wird diese Anforderung dadurch, daß zwei Suchradien verwendet werden, Der erste betrifft in gewohnter Weise die Suche nach potentiellen Targets in der jeweiligen Nachbarnliste, der zweite stellt den Rekombinationsradius dar. Dieser wird im allgemeinen kleiner als der erste gewählt, um über Nachbarnlisten Rekombinationen identifizieren zu können. Außerdem muß eine modellierungsbedingte Unzulänglichkeit beachtet werden. Da nämlich stets Nachbarnlisten eines Gitterpunktes untersucht werden und ein Atom eventuell einem relativ weit entfernten Referenzplatz zugewiesen ist, kann der Abstand einer Rekombination durchaus größer sein als durch den Rekombinationsradius vorgegeben. Umgekehrt tauchen dann auch Defektpaare mit einem zu kleinen relativen Abstand auf. Durch eine präzisere Zuweisung des Atoms auf einen Gitterplatz (wie in den obigen Abschnitten ausgeführt) sind nun solche Fälle deutlich reduziert, aber nicht eliminiert. Da aber beide Effekte, Rekombinationen jenseits des Rekombinationsradius und zu nahe Defektpaare, gegenläufig sind, kann mit guter Genauigkeit das Defektergebnis übernommen werden.

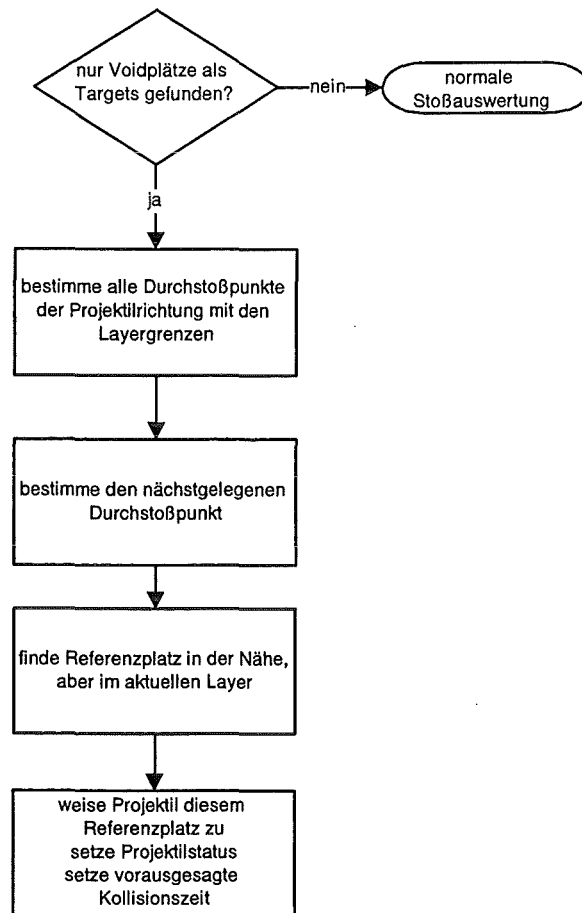
#### 4.1.4 Voidlayer

Neben der sehr flexiblen Beschreibung einzelner Kristallstrukturen, können diese im Targetmodell von MARLOWE in mehrere, unendlich ausgedehnte parallele Layer (Schichten) gestapelt werden, wobei jeder Layer prinzipiell völlig unabhängig in Kristallstruktur und atomarer Zusammensetzung ist. Ein Layer, der lediglich aus Voidplätzen aufgebaut ist (um Hohlräume, Lunken, Risse usw. zu simulieren), kann in diesem Schema jedoch nicht definiert werden. Solche Voidlayer verursachen Kaskadenabbrüche wegen Projektilen, die dorthin vordringen und dann kein wirkliches Target finden. Eventuell wird der Referenzplatz des Projektils solange angepaßt, bis ein Voidplatz außerhalb der aktuellen Zeitscheibe zu liegen kommt. Anschließend erfolgt aber keine Stoßauswertung, sondern es wird ein erneuter Suchvorgang gestartet, solange bis die Suche als erfolglos gewertet wird.

Naheliegender wäre der Ansatz, die Voidplätze durch statistisch besetzte Punktlagen zu ersetzen und eine Stoßauswertung im Rahmen des simultanen Kollisionsmodells zu erzwingen für den Fall, daß nur leere Targetpositionen gefunden wurden. So einfach dieses Schema ist, so schnell versagt es in vielen Fällen, wo durch ungünstige Wahl eines Referenzplatzes ein Vorwärtsschreiten des Projektils unmöglich gemacht wird. Zudem ist das Verfahren sehr zeitaufwendig, da eigentlich unnötige Stoßberechnungen durchgeführt werden. Besonders kraß ist dies, wenn das Projektil unter einem spitzen Winkel in den Voidlayer eintritt und durch Channelling verschwindend kleine Energieverluste erfährt. Gemildert werden können solche Extremfälle jedoch durch die lateralen Begrenzungen, die im folgenden Kapitel 4.2 ausführlich erläutert werden.

Ein letztlich erfolgreiches Schema, Voidlayer in einer korrekten und schnellen Simulation einzubinden, basiert darauf, auch bei Vorliegen ausschließlicher Voidplätze in der Targetliste eine Stoßauswertung zu forcieren. Dann kann einer dieser Voidplätze in der aktuellen Zeitscheibe liegen, und das Projektil rückt dorthin vor. Zwar funktioniert diese Methode, sie ist aber impraktikabel, wenn wie oben durch Channelling sehr große Kaskadenzeiten erreicht werden.

Zur Umgehung dieser Schwierigkeit werden im neuen Modell drei Möglichkeiten angeboten, wovon zwei wahlfrei sind. Dies beinhaltet zum einen die Wahl eines Zeit-Cutoffs, an dem alle noch aktiven Projektile gestoppt werden. Zum anderen können durch laterale Begrenzungen des Voidlayers fokussierte Projektile schneller wieder in normale kristalline Layer eindringen. Der wesentliche Ansatz, um das Durchqueren von Voidlayern zu beschleunigen, besteht jedoch in einem Raytracing-Verfahren. Dies besteht für das vorliegende Problem aus folgenden Schritten:



Zusätzlich sind einige Besonderheiten zu beachten:

- Es muß gewährleistet sein, daß kein kontinuierlicher Energieverlust während des Durchgangs durch den Voidlayer auftritt. Dies erreicht man dadurch, daß über den Projektilstatus (d.h. unabhängig von der Lage des Projektils eventuell außerhalb des Voidlayers) das Raytracing erkannt wird.
- Während des Raytracings durch den Void-Layer soll die periodische Neuauswertung nach einer festen Anzahl von Zeitscheiben weitestgehend vermieden werden. Dazu wird genau für diesen Fall der Zeitscheibenoffset so stark vergrößert, daß selbst in groß dimensionierten Layern (etwa 1.000..10.000 nm Durchmesser) nur noch wenige Auswertungen erfolgen. Der Durchgang ist also simulationstechnisch enorm schnell berechnet.
- Wenn ein Projektil beim Übergang in den Voidlayer noch in einem besetzten Layer liegt, werden zunächst zwei Durchstoßpunkte, nämlich durch zwei parallele Layerbegrenzungen, entlang der Projektirichtung gefunden. In diesem Fall muß die entferntere Ebene als Austrittsfläche angesehen werden.
- Weitere Vorsichtsmaßnahmen betreffen ganz allgemein die Implementierung lateral begrenzter Layer (s. Kapitel 4.2).
- Im Raytracingschema wird der Referenzplatz des Projektils an die entfernte Layergrenzfläche vorgerückt. Eventuell befindet sich dieser dann nicht im nominellen Layer des Pro-

jektilortes. Die Targetsuchroutine muß für diesen Fall erweitert werden, damit nicht unbeabsichtigt der Referenzplatz zurückgesetzt wird und sich eine Endlosschleife ergibt.

- Der Zeitcutoff soll eine letzte Maßnahme sein, Channelling von hochenergetischen Projektilen in ausgedehnten Voidlayern zu beschränken. Wird nun für ein Projektil beim Austritt aus dem Voidlayer eine Kollisionszeit jenseits des Cutoffs berechnet, so wird es als ein verloren gegangenes Projektil klassifiziert, aber dennoch an diese Position gesetzt.

## 4.2 *Lateral begrenzte Layer*

In der vorliegenden Form der Targetmodellierung konnten parallele Layer endlicher Dicke, jedoch in lateraler Richtung unbegrenzt, zu geschichteten Materialien zusammengesetzt werden. Die einzelnen Layer (beliebiger Kristallstruktur und Besetzung) sind mono- oder polykristallin bzw. amorph. Diese Modifikationen werden durch zufällige Kristallrotationen approximiert. Zusätzlich können eine begrenzte Anzahl einzelner Punktdefekte (Zwischengitteratome, Leerstellen, Fremdatome) eingebracht werden. Ebenso ist es möglich, eine Feinstporosität durch statistisch verteilte Voidanteile zu simulieren. Weitergehende Materialspezifikationen sind aber in diesem Targetmodell nicht vorgesehen.

In realen Materialien erkennt man jedoch eine große Bandbreite sehr unterschiedlicher Strukturen, die in ihrer Komplexität eine simulationstechnische Umsetzung unmöglich erscheinen lassen. Dennoch müssen solche Inhomogenitäten und Irregularitäten in geeigneter Weise behandelt werden, wenn verlässliche Schädigungseffekte in Festkörpern berechnet werden sollen.

Im folgenden sollen zunächst allgemein realisierte Mikrostrukturen klassifiziert und auf ihre Modellierungsfähigkeit untersucht werden. Die kristalline Feinstruktur wird weitgehend von der kristallographischen Elementarzelle und der Position der Konstituenten innerhalb dieser Zelle bestimmt. Mit der Angabe von Raumgruppe und Basis ist also ein idealer Monokristall definiert. Zusätzlich findet man in Realstrukturen Gitterbaufehler, die gemäß ihrer räumlichen Dimension gegliedert werden können [92, 93]: Punktfehler, 0-dimensional (Leerstellen, Zwischengitteratome, Fremdatome), Linienfehler, 1-dimensional (Versetzungen), Flächenfehler, 2-dimensional (Korngrenzen, Stapelfehler) und Raumfehler, 3-dimensional (Leerstellenagglomerate, Cluster). Besteht das Material zudem aus zwei oder mehr homogen oder inhomogen verteilten Komponenten (Kristalle oder Phasen), so bildet sich eine charakteristische Gefügestruktur [94, 95]. Merkmale dieser Struktur sind dann Korn- oder Phasengrenzen (Großwinkel-, Kleinwinkel-, Zwillingsgrenzen), Einlagerungen, Ausscheidungen, Poren und Risse. Dabei können diese Ausformungen makroskopische Dimensionen annehmen und eine Grobstruktur definieren.

Zusätzlich zu diesen natürlichen oder fabrikationsbedingten Abweichungen von der Idealstruktur treten im Falle von intensiven Bestrahlungen (z.B. mit Neutronen, Ionen oder Elek-



tronen) weitere induzierte Materialveränderungen hinzu [96]. Die Palette reicht dabei von Punktdefekten über Defektcluster zu Kaskadenzonen als Effekte einzelner Kollisionskaskaden. Zusätzlich treten Transmutationen durch unelastische Kernreaktionen oder Gasbildung (v.a. bei Neutronenbestrahlung: Wasserstoffisotope, Helium) auf. Solche Gase können dann bei allgemein schwacher Löslichkeit in der Matrix teilweise ausgedehnte Blasen bilden (s. beispielsweise [97]). Eine weitere globale Materialveränderung ist die in einigen keramischen Materialien beobachtete Metamiktisierung (s. beispielsweise [98, 99]), also der weitgehende Verlust kristalliner Ordnung. Dieser Vorgang spielt jedoch in den hier untersuchten Materialien keine Rolle und wird deshalb im folgenden nicht weiter diskutiert.

Bezüglich der Modellierung solcher Strukturen in atomistischen, mikroskopischen Simulationen müssen zwei Aspekte berücksichtigt werden: erstens kann aus der Vielzahl möglicher Konstellationen nur eine Auswahl getroffen werden, die wesentliche Merkmale und typische Bedingungen beinhaltet, und zweitens sind nur Dimensionen in der Größenordnung einzelner Stoßkaskaden relevant. Für die maximalen Primärenergien in den untersuchten Materialien erhält man so ein Maß von einigen Mikrometern als charakteristische Länge.

Unter diesen Voraussetzungen bieten sich zwei Modellschemata an. Strukturen, die auf wenige Atomabstände beschränkt sind (z.B. Punktdefekte, Kaskadenreste) lassen sich als Aufzählung einzelner Atome und Leerstellen beschreiben, solange deren Anzahl praktikabel bleibt. Trifft dies nicht mehr zu oder haben die zu behandelnden Strukturen lineare Ausdehnungen weit jenseits einiger Elementarzellen, so kann man sich auf die Modellierung als separate Layer stützen. Jedoch ist das bisherige Layerkonzept in MARLOWE aufgrund der Einschränkung unendlicher paralleler Layer wenig geeignet, begrenzte Raumbereiche sehr unterschiedlicher Form zu beschreiben. Andererseits können bereits zusätzliche laterale Begrenzungen eine flexible Modellierung ermöglichen. Diese stützt sich dann auf quaderförmige Strukturen, mit deren Hilfe dann kompakte Geometrien (Würfel, Platten, Nadeln) sehr gut simuliert werden können.

Die im Rahmen dieser Arbeit implementierte Layermodellierung basiert auf folgender Targetzerlegung:

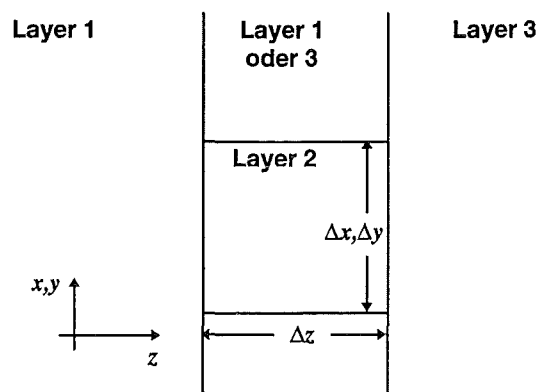


ABB. 4.1: Targetmodell in Marlowe mit lateral begrenzten Layern

In diesem Schema stellt die  $z$ -Achse die Normale auf die Layergrenzflächen dar, die Lage dieser in Bezug auf die  $x$ - $y$ -Ebene wird durch die Angabe zweier distinkter Vektoren in der Layergrenzfläche festgelegt. Layer 1 und 3 können in  $z$ -Richtung begrenzt oder unbegrenzt sein und eventuell identische Materialien aufnehmen. Der mittlere Layer 2 kann in allen drei Raumrichtungen beliebig ausgedehnt sein. Bereiche außerhalb dieses Layers in derselben  $z$ -Schicht werden entweder Layer 1 oder Layer 3 zugewiesen. Praktisch kann man also für eine Schicht  $\Delta z$  zwei Bereiche definieren, einen inneren Bereich der Ausdehnung  $\Delta x$  und  $\Delta y$  (eventuell auch unbegrenzt) und einen äußeren, der formal einem benachbarten Layer entspricht. Ein Target kann dann aus einer beliebigen Kombination solcher Layer bestehen. Eine typische Modellierung ist dann z.B. eine quaderförmiger, eingeschobener Layer zwischen zwei identischen Layern.

Um den Übergang eines Projektils von einem Layer zu einem benachbarten Layer korrekt zu realisieren, müssen zusätzlich zu jeder Layergrenzfläche zwei parallele Ebenen verwendet werden. Diese liegen im maximalen Suchabstand ober- bzw. unterhalb jeder  $z$ -Fläche (in  $z$ -Richtung) und außer- bzw. innerhalb des inneren Quaders (in  $x$ - und  $y$ -Richtung). Bei gegebener  $z$ -Koordinate kann der gewählte Punkt inner- oder außerhalb des inneren Quaders liegen und entsprechend einer Kristallstruktur zugeordnet werden.

Das Targetmodell mit lateralen Begrenzungen muß nun in allen Teilen der BCA-Simulation, die bisher von unendlichen  $z$ -parallelen Layern ausgegangen sind, implementiert werden. Modifiziert werden müssen deshalb

- Identifizierung des aktuellen Layers am Projektilort
- Suchroutinen für potentielle simultane Targets,
- Suchroutine für den nächstgelegenen Gitterreferenzplatz,
- Suchroutine für Umgebung eines verlagerten Gitteratoms (bei der Bestimmung der lokalen Bindungsenergie) und
- Identifizierung von Rekombinationen und Defektpaaren, insbesondere als Oberflächenpaare.

Dieser letzte Punkt gehört in die Thematik von Kapitel 4.4 und wird demzufolge dort ausgeführt. Ganz allgemein ist zur Behandlung dieses und der anderen Punkte eine zweigeteilte Identifizierungsmethode zweckmäßig. Im einen Fall, der Suche nach Targets und der Prüfung auf Quasisimultanität, wird lediglich auf die geometrische Lage hin untersucht, d.h. es wird die  $z$ -Schicht bestimmt und die Position inner- oder außerhalb des Quaders („in/out of the box“). Bei der Registrierung von Defekten hingegen wird zusätzlich die jeweilige Kristallstruktur überprüft. Dann kann festgestellt werden, ob trotz nominell unterschiedlicher Layerzugehörigkeit Leerstelle und Zwischengitteratom in derselben Kristallstruktur liegen.

Im bisherigen Layermodell wurde die Zugehörigkeit eines Atoms zu einem bestimmten Layer nicht exakt bestimmt. Dies konnte dann dazu führen, daß das Atom zwar geometrisch in einem Layer A lag, wegen seines Referenzplatzes aber dem Layer B zugewiesen wurde. Im neuen Modell ist diese Vorgehensweise nicht mehr akzeptabel, da zum einen die Suchalgorithmen auf exakte Positionen angewiesen sind, zum anderen die Identifizierung von Defektpaaren, insbesondere Oberflächenpaare, nachhaltig gestört ist. Deshalb wird beim Stoppen eines Projektils und vor jeder Suche nach simultanen Targets sichergestellt, daß Projektilort und Referenzplatz in derselben Kristallstruktur liegen. Insbesondere wird darauf geachtet, daß der Referenzplatz formell dem richtigen Layer angehört, also ein definierter Gitterpunkt ist. Nur im Falle von Voidlayern muß dieses Schema aufgebrochen werden, da hier explizit der Gitterreferenzplatz vom Projektilort entkoppelt wird.

In der Suchroutine für die Nachbarn eines Projektils erfolgt nach dem Abschluß der Suche im aktuellen Layer ein möglicher lateraler Übergang in einen benachbarten Layer. Anschließend wird dann in vertikaler Richtung unter Beachtung eventueller lateraler Begrenzungen weiter gesucht. Diese Prozedur wird solange wiederholt, bis kein Layerwechsel in der Umgebung des Projektils mehr nötig ist. Im Endeffekt werden mit dieser Methode auch mehrfache Layerwechsel korrekt behandelt, z.B. beim Vordringen in Quaderecken oder bei sehr dünnen Schichten).

Nach dieser einfachen Suche können nun auch Targets registriert worden sein, die zwar formal einem bestimmten Layer zugeordnet sind, tatsächlich aber nach ihrer Lage einem anderen angehören. Deshalb werden in der sich anschließenden Routine, ob ein Targetatom lateral bzw. vertikal außerhalb des liegt, solche Targets eliminiert. In engem Zusammenhang steht auch die Möglichkeit, daß ein Nichtgitteratom (gestopptes Kaskadenatom oder Zwischengitteratom) in Layergrenznähe eventuell mehrfach identifiziert wird. In Analogie zur obigen Prüfung wird auch hier auf die exakte Lage geprüft und nur dieses eine Target in der Auswertung berücksichtigt.

Eine letzte wichtige Änderung betrifft das Bindungsverhalten an der Layergrenze. Wenn dort ein Atom verlagert wird, werden seine Bindungsnachbarn dahingehend überprüft, ob sie tatsächlich im aktuellen Layer liegen. Ist dies nicht der Fall, wird die Bindung gemäß des lokalen Bindungsmodells reduziert. Bindungsverstärkung oder Oberflächenadhäsion wird in diesem Modell also nicht berücksichtigt.

### **4.3 *BCA und die Behandlung quasisimultaner Stöße***

#### **4.3.1 *BCA-Formeln***

Die in MARLOWE und vielen anderen BCA-Codes implementierte Stoßkinematik ist für repulsive Potentiale in der quasielastischen Formulierung ausgelegt. Für die speziellen Anforde-

rungen in dieser Arbeit muß die erste dieser Einschränkungen, repulsive Potentiale kurzer Reichweite, aufgegeben werden, da die ionischen Wechselwirkungen sowohl repulsiver als auch attraktiver Natur sind und wesentlich unendliche Reichweite besitzen. Wie oben (S. 29) erläutert, erfordert dies umfangreiche Änderungen im BCA-Code, wobei an dieser Stelle das Herzstück, die binäre Stoßkinematik, betrachtet werden soll. Desweiteren soll durch die Implementierung verbesserter Stoßintegrale die quasielastische Formulierung durch eine inelastische Stoßkinematik ersetzt und deren potentieller Einfluß auf die Asymptoten der Stoßpartner untersucht werden.

#### 4.3.1.1 Zeitintegral für attraktive Potentiale

Die in Glg. (23) gegebene Definition des Zeitintegrals  $\tau$  setzt voraus, daß der minimale Stoßabstand  $R$  immer größer ist als der jeweilige Stoßparameter  $p$ . Dies ist nur für rein repulsive Potentiale stets erfüllt, da mit  $V(r) > 0$  die Polstelle  $R$  der Funktion

$$g(r)^{-1} = \left( 1 - \frac{V(r)}{E_R} - \frac{p^2}{r^2} \right)^{-1/2} \quad (97)$$

stets größer als  $p$  sein muß.

Für attraktive Potentiale ist jedoch auch der umgekehrte Fall möglich. Dann ist die Vorschrift der Glg. (23) nicht mehr gültig. Setzt man jedoch  $\bar{g}(r) := 1$ , so erhält man für die Schwerpunktsbewegung (s. Glg. (22))

$$v_0 t' = \int_R^{\infty} \left( \frac{1}{g(r)} - 1 \right) dr + L - R + \frac{1}{f} \left( \int_R^{\infty} \left( \frac{1}{g(r)} - 1 \right) dr + r' - R \right), \quad (98)$$

wobei wieder  $L$  der Abstand der Kollisionspartner vor dem Stoß ist,  $r'$  nach dem Stoß, und beide groß gegen den minimalen Stoßabstand  $R$  sind.

Mit der Definition

$$\tau = R + \int_R^{\infty} \left( 1 - \frac{1}{g(r)} \right) dr \quad (99)$$

für das Zeitintegral ergibt sich dann in gewohnter Weise die Asymptotengleichung (25).

Diese Definition eignet sich sowohl für  $R < p$  als auch für  $R > p$  und bietet sich als universale Form in der Simulation an. Für den Fall  $R > p$  kann man zeigen, daß beide Formulierungen

(„alt“ und „neu“) äquivalent sind:

$$\tau^{neu} - \tau^{alt} = R - \sqrt{R^2 - p^2} + \int_R^\infty \left(1 - \frac{1}{\bar{g}(r)}\right) dr \quad (100)$$

Substituiert man nämlich

$$x = \sqrt{\frac{1+p/r}{1-p/r}}; \quad dr = -p \frac{4x}{(x^2-1)^2} dx, \quad (101)$$

so ergibt sich für die Differenz

$$\begin{aligned} \Delta\tau = \tau^{neu} - \tau^{alt} &= R - \sqrt{R^2 - p^2} + \int_{\frac{\sqrt{R+p}}{\sqrt{R-p}}}^1 \left(1 - \frac{1}{\frac{2x}{x^2+1}}\right) (-p) \frac{4x}{(x^2-1)^2} dx \\ &= R - \sqrt{R^2 - p^2} + \int_{\frac{\sqrt{R+p}}{\sqrt{R-p}}}^1 \frac{2p}{(x+1)^2} dx \\ &= R - \sqrt{R^2 - p^2} + 2p \left[ -\frac{1}{x+1} \right]_{\frac{\sqrt{R+p}}{\sqrt{R-p}}}^1, \end{aligned} \quad (102)$$

was sich mit wenig Aufwand als 0 erweist.

Trotz der analytischen Identität wird man für numerische Quadraturen Abweichungen vorfinden. Hat man nämlich eine numerische Approximation der Ordnung  $m$

$$\begin{aligned} \tau^{alt} &= \sqrt{R^2 - p^2} - \sum_{i=1}^m w_i \frac{R}{u_i^2} \left( \frac{1}{g(R/u_i)} - \frac{1}{\bar{g}(R/u_i)} \right) \\ \tau^{neu} &= R - \sum_{i=1}^m w_i \frac{R}{u_i^2} \left( \frac{1}{g(R/u_i)} - 1 \right), \end{aligned} \quad (103)$$

so erhält man als Differenz im allgemeinen Fall

$$\Delta\tau = \sqrt{R^2 - p^2} - R + \sum_{i=1}^m w_i \frac{R}{u_i^2} \left( \frac{1}{\sqrt{1 - p^2 \frac{u_i^2}{R}}} - 1 \right) \quad (104)$$

und speziell für die interessanten Grenzfälle  $R \rightarrow p$  und  $R \gg p$

$$\begin{aligned}
 R \rightarrow p: \quad \Delta\tau &\rightarrow p \left( \sum_{i=1}^m \frac{w_i}{u_i^2} \left( \frac{1}{\sqrt{1-u_i^2}} - 1 \right) - 1 \right) \\
 R \gg p: \quad \Delta\tau &\rightarrow \frac{1}{2} \frac{p^2}{R} \left( \sum_{i=1}^m w_i - 1 \right)
 \end{aligned} \tag{105}$$

Konkret erhält man für eine Gauß-Mehler-Quadratur der Ordnung  $m = 4$  bzw. 32 die Absolutbeträge der Differenzen zu

$$\begin{aligned}
 R \rightarrow p: \quad |\Delta\tau| &\approx 6 \cdot 10^{-3} p \quad \text{bzw. } 1 \cdot 10^{-4} p \\
 R \gg p: \quad |\Delta\tau| &\approx 6 \cdot 10^{-3} \frac{1}{2} \frac{p^2}{R} \quad \text{bzw. } 1 \cdot 10^{-4} \frac{1}{2} \frac{p^2}{R}
 \end{aligned} \tag{106}$$

Dies bedeutet, daß bei Annäherung des minimalen Stoßabstands  $R$  an den Stoßparameter  $p$  (also für große Energien oder große Stoßparameter) mit deutlichen, aber dennoch kleinen Änderungen gerechnet werden muß (z.B. 0,6 % von  $p$  bei  $m = 4$ ). Je größer  $R/p$  wird, um so kleiner werden die Differenzen.

Letztlich findet man aber für höhere Energien doch sehr viel größere Unterschiede. Bei kleinen Energien werden die theoretischen Abweichungen bestätigt, im speziellen der Zuwachs bei steigendem  $p$ . Sind die Energien jedoch so hoch, daß  $V(r)/E_R \ll p^2/r^2$  ist, so tritt eine zusätzliche numerische Unsicherheit hinzu. Denn dann wird der Integrand in der bisherigen Formulierung sehr klein, und es können beträchtliche relative Fehler auftreten. Somit ist die neue Formulierung stabiler und wegen des einfacheren Integranden auch rechnerisch effizienter.

#### 4.3.1.2 Minimaler Stoßabstand für Coulomb-Potentiale

Die Apsis, der minimale Stoßabstand, einer Kollision ergibt sich aus der Nullstelle von

$$g(r) = \sqrt{1 - \frac{V(r)}{E_R} - \frac{p^2}{r^2}}. \tag{107}$$

Da das interatomare Potential  $V(r)$  im allgemeinen eine komplizierte Funktion des Abstands  $r$  ist, kann die Nullstelle nur über numerische Verfahren bestimmt werden. Dazu wird in MARLOWE ein leicht modifiziertes Newton-Verfahren 2. Ordnung für die Funktion  $G(r) = g(r)r^2$  verwendet. Im quadratischen Glied der Taylor-Entwicklung von  $G(r)$  um eine Näherung  $r_n$  für die Apsis  $R$

$$G(r_n) + G'(r_n)(r_{n+1} - r_n) + \frac{1}{2}G''(r_n)(r_{n+1} - r_n)^2 \tag{108}$$

wird für großes  $n$  einmal der Differenzterm ersetzt durch den analogen Ausdruck für das Newton-Verfahren 1. Ordnung  $-G(r_n) / G'(r_n)$ . Dann ergibt sich folgende Iterationsvorschrift:

$$r_{n+1} = r_n - \frac{G(r_n)}{G'(r_n) - \frac{G''(r_n)G(r_n)}{2G'(r_n)}} \tag{109}$$

Die Verwendung von  $G(r)$  anstelle  $g(r)$  liefert wegen der nur schwach variierenden Krümmung schneller eine hinreichend gute Näherung. Doch kann bei kleinen Energien und kleinem Abstand die Krümmung sogar negativ werden, so daß die Iteration in die falsche Richtung laufen kann. Dies kann allerdings durch einen entsprechend gewählten Startwert  $r_1$  vermieden werden.

Ein solcher wird in MARLOWE durch eine Näherung für die Apsis bei zentralem Stoß ( $p = 0$ ) vorgegeben. Diese selbst ist wiederum nur für einfache Potentiale (z.B. Born-Mayer, Coulomb) analytisch zu bestimmen. In allen anderen Fällen muß sie sinnvoll genähert werden. Die geforderte Genauigkeit ist aber nicht besonders hoch, da nur für sehr kleine  $p$  und kleine Energien die Apsis bei zentralem Stoß ein gutes Maß für die gesuchte Apsis darstellt. Da außerdem das Iterationsverfahren selbst bei ungünstiger, aber vernünftiger Wahl des Startwerts nach wenigen Schritten (ca. 2 bis 4) konvergiert (relative Genauigkeit  $< 10^{-3}$ ), sollte die Näherung der Apsis bei zentralem Stoß vorrangig schnell berechnet werden.

Es ist also eine Näherung der Lösung von  $V(r) = E_r$  gesucht. Für das neu implementierte AMLJ-Potential wurde im Rahmen dieser Arbeit eine einfache, aus Teilstücken zusammengesetzte Vorschrift gefunden, die in folgender Abbildung mit der in der neuen Version 14 von MARLOWE eingeführten, deutlich aufwendigeren Lösung verglichen wird:

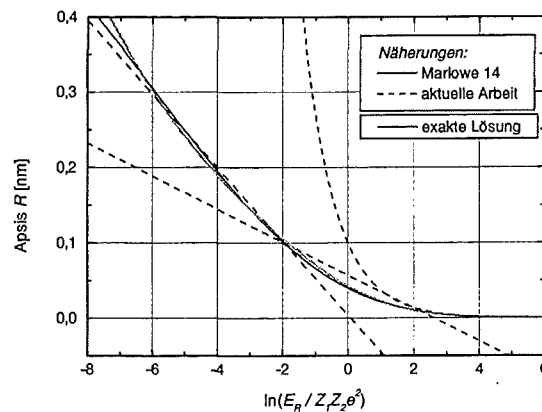


ABB. 4.2: Approximation der Apsis bei zentralem Stoß für das AMLJ-Potential.

Während die Näherung aus MARLOWE 14 durchweg sehr gut die exakte Lösung wiedergibt, ist für die einfache Näherung der Bereich zwischen  $R = 0,1$  bis  $R = 1,0$  überschätzt. Trotzdem ist diese Methode für die Simulation attraktiv, da über weite Bereiche eine einfache lineare Auswertung möglich ist, im Gegensatz zu der exponentiellen Abhängigkeit der Variante aus MARLOWE 14.

Im Falle nicht vollständig abgeschirmter Coulomb-Potentiale müssen diese Näherungen angepaßt werden. Bei hohen Energien spielt die fehlende Abschirmung praktisch keine Rolle, und der Näherungswert für die Apsis  $R$  kann unverändert übernommen werden. Sinkt die Schwerpunktsenergie jedoch unter etwa  $2Z_1^*Z_2^*e^2$ , so soll der minimale Stoßabstand bei zentralem Stoß analytisch aus dem Coulomb-Potential  $V(r) = Z_1^*Z_2^*e^2/r$  bestimmt werden, d.h.  $R = Z_1^*Z_2^*e^2/E_R$ . Dies gilt aber nur, wenn  $Z_1^*Z_2^* > 0$  ist, d.h. für repulsive Coulomb-Potentiale.

Andernfalls erhält man ein negatives  $R$ , was in zwei Schritten vermieden werden kann: zunächst wird die Apsis für ein abgeschirmtes Coulomb-Potential bei  $E_R$  bestimmt, wobei die untere Grenze  $E_R = 2Z_1^*Z_2^*e^2$  ist. Ist das interatomare Potential für diesen Abstand jedoch negativ, so wird sukzessive der Abstand halbiert, bis das Gegenteil vorliegt. Von diesem Näherungswert aus wird dann in der Iteration des Newton-Verfahrens die Apsis bei gegebenem Stoßparameter  $p$  bestimmt. Obwohl der Aufwand, den Startwert für die Iteration zu finden, in attraktiven Coulomb-Potentialen stark anwachsen kann, ist dennoch die Bestimmung der Apsis sichergestellt.

#### 4.3.1.3 Inelastische BCA-Stoßkinematik

Die in MARLOWE verwendeten Formeln der Stoßkinematik beschreiben die quasielastische BCA, d.h. die Stoßintegrale werden für elastische Streuung ausgewertet, ein eventueller inelastischer Verlust  $Q$  ereignet sich genau in der Apsis des Stoßes, die auslaufenden Asymptoten werden entsprechend angepaßt. Eine Verbesserung dieser Näherung erreicht man dadurch, daß  $Q$  in den Berechnungen des Stoßwinkels  $\theta$  und des Zeitintegrals  $\tau$  für den zweiten Teil des Stoßprozesses integriert wird. Damit unterteilt man den Stoß in zwei nicht mehr symmetrische Abschnitte. Nur für exakt elastische Streuung bleibt die Spiegelsymmetrie im SP-System bezüglich der Achse durch die Apsis erhalten.

Im auslaufenden Teil der Stoßintegralberechnungen verwendet man die modifizierte Energie  $E_R - Q$  und den modifizierten Stoßparameter  $p'$ ,

$$p' = p \sqrt{\frac{E_R k^2}{E_R - Q}} \quad (110)$$



$$\text{mit } k^2 = \frac{E_R - V(R) - Q}{E_R - V(R)}.$$

Der Streuwinkel läßt sich dann gemäß

$$\theta = \pi - p \int_R^\infty \frac{dr}{r^2 g(r)} - p' \int_R^\infty \frac{dr}{r^2 g'(r)} \quad (111)$$

berechnen [100], und für das Zeitintegral in den Asymptotengleichungen (s. Glg. (25)) erhält man statt des Ausdrucks  $\tau(1+f)$  nun  $\tau' + f\tau = \tau_m$  mit

$$\tau' = R - \int_R^\infty \left( \frac{1}{g'(r)} - 1 \right) dr. \quad (112)$$

Die Funktion  $g(r)$  ist in bekannter Weise definiert,  $g'(r)$  ist deren Anpassung an den zweiten Abschnitt des Stoßprozesses:

$$g'(r) = \sqrt{1 - \frac{V(r)}{E_R - Q} - \frac{p'^2}{r^2}} \quad (113)$$

Durch die modifizierte Kinematik ändern sich die auslaufenden Asymptoten, und zwar, wie sich zeigen wird, wesentlich in den Schnittpunkten  $x_1$  und  $x_2$ . Diese lauten nun

$$x_1 = -\frac{\tau_m}{f(1+A)} + \frac{1}{2f(1+A)} \left[ (p+p')(1-Af) \tan(\theta/2) + (p-p') \frac{1+Af}{\tan(\theta/2)} \right] \quad (114)$$

$$x_2 = -\frac{\tau_m}{f(1+A)} + \frac{1}{2f(1+A)} \left[ (p+p')(1+f) \tan(\theta/2) + (p-p') \frac{1-f}{\tan(\theta/2)} \right]$$

und damit die Differenzlänge

$$x_2 - x_1 = \frac{1}{2} \left[ (p+p') \tan(\theta/2) - (p-p') \frac{1}{\tan(\theta/2)} \right]. \quad (115)$$

Bereits an dieser Stelle soll angemerkt werden, daß die Implementierung dieser Formeln Rücksicht auf die Pole für  $\theta \rightarrow 0^\circ$  bzw.  $\theta \rightarrow 180^\circ$  nehmen muß.

Will man die verbesserten Stoßintegrale in der BCA-Simulation verwenden, erkaufte man sich dies mit der etwa doppelten Rechenzeit, da nun pro Stoßauswertung vier statt wie bisher zwei

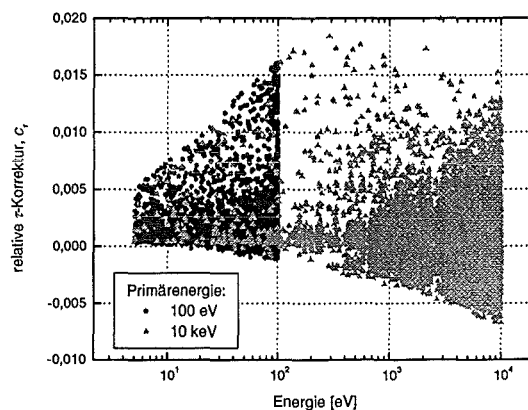
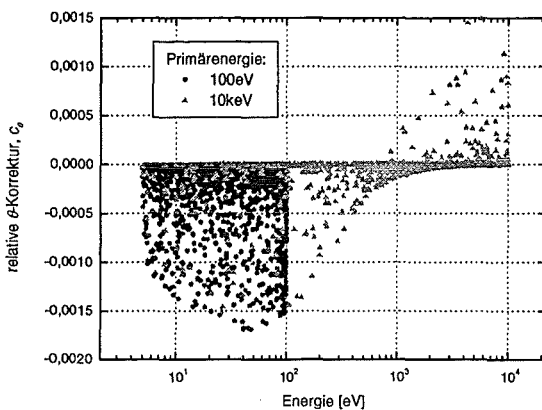
Integrale auszuwerten sind. Andererseits sind nur in wenigen Fällen signifikante Unterschiede zu erwarten. Im folgenden soll deshalb untersucht werden, welche Änderungen im Streuwinkel und Zeitintegral zu erwarten sind und welche kinematischen Größen besonders beeinflusst werden.

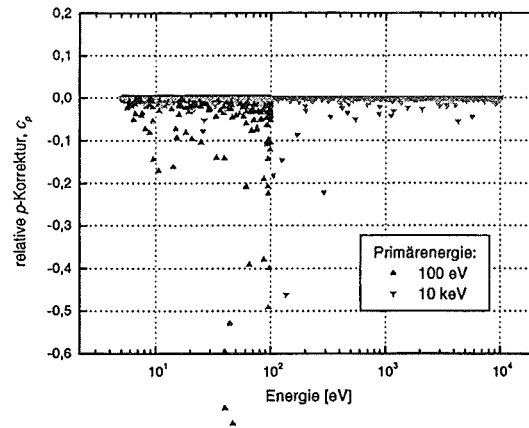
Dazu bezeichne der Index „alt“ die bisherigen Resultate und der Index „neu“ die verbesserten Resultate, so daß man die relativen Änderungen folgendermaßen ansetzen kann.

$$\begin{aligned}\theta^{neu} &= (1 + c_\theta)\theta^{alt} \\ \tau^{neu} &= (1 + c_\tau)\tau^{alt} \\ p' &= (1 + c_p)p\end{aligned}\tag{116}$$

Für die Kombinationen  $\text{He}^4\text{-Be}^9$ ,  $\text{Be}^9\text{-Be}^9$  und  $\text{O}^{16}\text{-Be}^9$  wurden im Rahmen von MARLOWE-Simulationen solche Korrekturfaktoren bestimmt. Dabei decken diese Fälle ein Massenverhältnis von 0,4 ... 1,8 ab, Primärenergien des Projektils waren 100 eV und 10 keV. Zwar hängen die hiermit erzielten Resultate von den gewählten Parametern (z.B. AMLJ-Potential, 32-Punkte Gauß-Mehler-Quadratur) ab, doch können sie veranschaulichen, in welchem Maße Änderungen zu erwarten sind.

Die relative  $\theta$ -Korrektur,  $c_\theta$ , ist stets sehr klein und übersteigt nicht 0,2 %. Dagegen erreicht  $c_\tau$  wenige Prozent (0,5 bis 2 %) mit ganz wenigen Ausnahmen oberhalb etwa 3% und steigt tendentiell bei sinkendem  $p$  an. Wesentlich stärkere Effekte beobachtet man bei  $c_p$ , wo ein größerer Teil der Stoßauswertungen eine Änderung von einigen Prozent (2 bis 4 %) bringt. Selbst sehr große Abweichungen oberhalb 10 % sind möglich, dies jedoch vor allem für sinkende Energien und Stoßparameter. Da  $p'$  gemäß Glg. (110) direkt mit  $k$  korreliert ist, weist ein kleiner  $k$ -Wert auf eine deutliche Änderung  $c_p$  hin.  $k$  selbst weicht besonders stark von 1 ab für kleine  $p$  und relativ großem inelastischem Verlust  $Q$ . Allgemein läßt sich sagen, daß  $c_\theta$  eher vernachlässigbar klein ist und man für  $c_\tau$  bzw.  $c_p$  große Effekte bei kleinem  $p$  und  $k$  erwarten kann.





**ABB. 4.3:** Korrekturen kinematischer Größen durch Verwendung inelastischer BCA-Formeln: Aus Stoßvorgängen in Be-Kaskaden bei 100 eV bzw. 10 keV.

Für eine BCA-Simulation, in der pro Kaskade je nach Primärenergie viele hundert oder tausend Kollisionen ausgeführt werden, ist jedoch der Effekt auf die Asymptoten der Trajektorien und hier besonders auf die Schnittpunkte  $x_1$  und  $x_2$  von entscheidender Bedeutung. Deshalb soll im folgenden untersucht werden, welche Konsequenzen die beobachteten Korrekturfaktoren auf die asymptotischen Bahnen haben.

Zunächst betrachte man die relativen Beiträge zu den bisherigen Formeln für  $x_1$  und  $x_2$ . Dabei sei angenommen, daß  $\theta$  unverändert bleibt, was durch die obigen Ergebnisse gerechtfertigt ist. Dann erhält man relativ zum  $\tau$ -abhängigen Term für beide Schnittpunkte den zusätzlichen Beitrag  $c_p / (1+f)$  und relativ zum  $p$ -abhängigen Term die Werte

$$c_p \frac{Af + \cos\theta}{(1 - Af)(1 - \cos\theta)} \quad \text{für } x_1, \quad (117)$$

$$c_p \frac{f - \cos\theta}{(1 + f)(1 - \cos\theta)} \quad \text{für } x_2.$$

Daraus läßt sich leicht ablesen, daß für  $\theta \rightarrow 0^\circ$  bzw.  $A \approx 1$  (nur für  $x_1$ ) der  $p$ -Beitrag stark zunimmt. Der zusätzliche  $\tau$ -Beitrag bleibt konstant bei etwa  $c_\tau / 2$ , liegt also im allgemeinen weit unter 1 %.

Etwas differenzierter wird das Bild, wenn man die absoluten Änderungen betrachtet. Diese lauten:

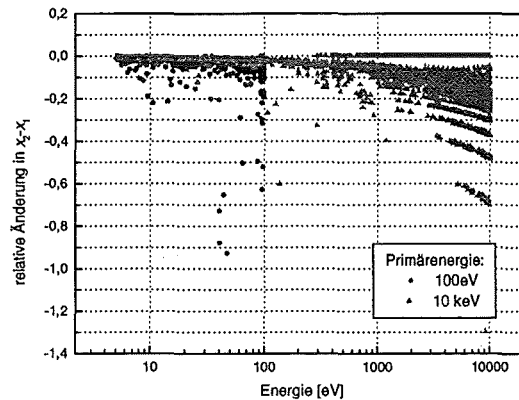
$$x_1^{neu} - x_1^{alt} = p \left[ -c_p \frac{Af + \cos\theta}{f \sin\theta(1 + A)} \right] + \tau \left[ -c_\tau \frac{1}{f(1 + A)} \right] \quad (118)$$

$$x_2^{neu} - x_2^{alt} = p \left[ -c_p \frac{f - \cos\theta}{f \sin\theta(1 + A)} \right] + \tau \left[ -c_\tau \frac{1}{f(1 + A)} \right]$$

und für die Differenz  $\Delta x = x_2 - x_1$ :

$$\Delta x^{neu} - \Delta x^{alt} = \frac{1}{2} c_p p \left( \tan(\theta/2) + \frac{1}{\tan(\theta/2)} \right) \quad (119)$$

Ungeachtet der Werte  $p$ ,  $\tau$  und der Korrekturfaktoren erwartet man große Abweichungen für  $\theta \rightarrow 0^\circ$  (Schnittpunkt  $x_1$ ) bzw.  $\theta \rightarrow 180^\circ$ ,  $A \rightarrow 0$  (Schnittpunkt  $x_2$ ). Doch erst im Zusammenspiel mit großen Werten von Stoßparameter, Zeitintegral und Korrekturfaktoren resultieren eventuell signifikante Differenzen. Diese Bedingungen schließen sich z.T. aber aus; so bedeutet z.B.  $\theta \rightarrow 0^\circ$ , daß  $p$  groß ist und entsprechend  $c_p$  klein. In folgender **ABB. 4.4** werden beispielhaft die Resultate für die relativen Änderungen in  $\Delta x$  gezeigt:



**ABB. 4.4:** Korrektur für Asymptotenabstand bei Verwendung inelastischer BCA-Formeln: Aus Stoßvorgängen in Be-Kaskaden bei 100 eV bzw. 10 keV.

Daraus wird deutlich, daß die Asymptotenschnittpunkte im allgemeinen deutlich (z.T. über 10 %) näher rücken. Entsprechend erwartet man in einer Kaskadensimulation einen kumulativen Effekt dieser Modifizierungen.

Faßt man alle Abhängigkeiten zusammen, so ergibt sich ein relativ klares Bild: Korrekturen zum Stoßwinkel  $\theta$  sind praktisch nicht nötig, die maximal zu erwartenden Abweichungen betragen 0,2 %. Für Stoßparameter  $p$  und Zeitintegral  $\tau$  erwartet man aber größere Differenzen, die dann in den Asymptoten z.T. signifikante Abweichungen verursachen. Dies gilt vorrangig für die Korrektur  $c_p$ , die zudem sehr einfach zu implementieren ist und effektiv die Rechenzeiten in der BCA-Simulation nicht verlängert. Demgegenüber wirkt sich  $c_\tau$  lediglich bei kleinen  $p$  (wenn das Zeitintegral selbst groß gegen  $p$  ist) und kleinen Energien aus, sofern  $A$  nicht zu groß ist. Eine weitere Bedingung ergibt sich dadurch, daß für  $A \approx 1$  der absolute  $p$ -abhängige Teil für  $x_1$  sehr klein wird und in diesem Fall der  $\tau$ -Beitrag beträchtlich werden kann.

Die Auswertung der  $\tau$ -Korrektur erfordert eine zusätzliche Integration, die aber nach dem oben skizzierten in vielen Fällen nicht nötig ist. Ein Kriterium für die Notwendigkeit dieser Korrektur kann wie folgt geschrieben werden:

$$(1 - \cos(\theta/2)) \cdot |1 - A| < \delta \quad (120)$$

Der Parameter  $\delta$  kann per Eingabe gewählt werden. Das Kriterium kombiniert dabei die Streuwinkelabhängigkeiten ( $\theta \rightarrow 0^\circ$ ,  $\theta \rightarrow 180^\circ$ ) und das Massenverhältnis ( $A \rightarrow 1$ ).

Ist  $\delta = 0$  gewählt, so werden keine  $\tau$ -Korrekturen berechnet; ist  $\delta$  nur wenig größer als 0, so wird nur der Streuwinkel überprüft; oberhalb von etwa 0,2 wird für  $A \approx 1$  der Streuwinkel nicht mehr beachtet und die Korrektur in jedem Fall vorgenommen.

Die Implementierung der verbesserten Formeln zur Stoßkinematik ist nur für das Zeitintegral sehr einfach. In diesem Fall reicht eine einfache Substitution

$$\tau := \frac{f\tau + \tau'}{1 + f} \quad (121)$$

in allen Formeln, die das Zeitintegral enthalten. Für  $p'$  müssen jedoch alle abhängigen Größen entsprechend angepaßt werden. Außerdem muß in besonderer Weise auf die eventuellen Singularitäten für  $p \rightarrow 0$  und  $\theta \rightarrow 0^\circ$  geachtet werden, speziell darf  $\Delta x = x_2 - x_1$  nicht 0 gesetzt werden, wenn  $p = 0$  ist, und muß in jedem Fall endlich bleiben.

Ein kritischer Parameter ist  $k$ : für Stoßparameter  $p$  sehr viel kleiner als der minimale Stoßabstand  $R$  ist  $V(R) \approx E_R$  bzw.  $E_R - V(R) \approx 0$ . Dann kann der inelastische Verlust  $Q$  eventuell das Vorzeichen des Wurzelausdruckes (vgl. Glg. (110)) ändern. Tritt dieser Fall ein, so wird  $p' = p$  gesetzt, d.h. die bisherigen Formeln werden verwendet.

Gemäß der Ableitung der Kollisionslänge  $\zeta^*$  (zur Zeitberechnung) aus der Asymptotengleichung lautet diese nun (vgl. Glg. (32))

$$\zeta^* = \zeta + \frac{1}{f}(x_2 - x_1 - (1 + f)\tau) \quad (122)$$

und  $x_2 - x_1$  ist gegeben durch Glg. (115).

### 4.3.2 Quasisimultane Stöße

Das Modell quasisimultaner Stöße, wie es bisher in MARLOWE implementiert ist, hat sich in der vorliegenden Fassung bewährt, um approximativ, aber schlüssig, das Stoßverhalten bei

kleinen Energien bzw. die Symmetrieeigenschaften in der Kristallpropagation zu behandeln. Durch die in dieser Arbeit eingebrachten umfangreichen und weitreichenden Modifikationen ergibt sich jedoch die Notwendigkeit, das Targetmodell anzupassen. Tatsächlich versagt das bisherige Modell in vielen Fällen, wenn nicht in geeigneter Weise Vorkehrungen getroffen werden. Selbst bei erfolgreicher Funktion der Targetroutine steigt der Rechenaufwand enorm an, da im allgemeinen eine Vielzahl zusätzlicher Auswertungen von Gitterplätzen und Targetatomen zu bewerkstelligen ist. Im nachfolgenden soll deshalb diskutiert werden, welche Ursachen für das Versagen des bisherigen Konzepts verantwortlich sind und in welchem Rahmen geeignete Lösungen gefunden werden können.

Wesentliche Auswirkungen auf das quasisimultane Kollisionsmodell sind durch Modifikationen in den folgenden Bereichen zu erwarten:

- Coulomb-Potentiale: Langreichweitigkeit, attraktive Potentiale
- niedrige Energien (nicht nur bei Coulomb-Potentialen)
- Voidgitterplätze und Voidlayer
- lateral begrenzte Layer

Dabei sind gleichermaßen Targetsuche (Phase 1), Stoßauswertung und Prüfung der Quasisimultantität (Phase 2), Projektil- und Targetkonfiguration nach dem Stoß (Phase 3) und Vorkehrungen für folgende Kollisionen (Phase 4) betroffen.

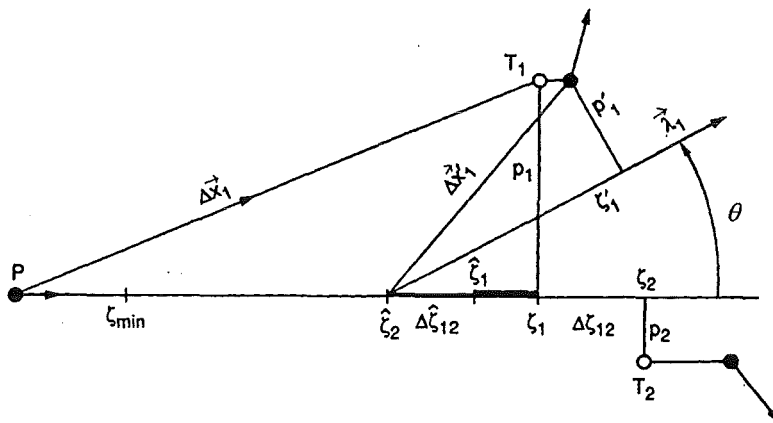


ABB. 4.5: Layout zum Quasisimultan-Modell: Projektil P trifft auf zwei Targets  $T_1$  und  $T_2$  mit Abständen  $\Delta \bar{x}_i$  und Stoßparametern  $p_i$ . Die auf die einlaufende Projektilasymptote projizierten Entfernungen,  $\zeta_i$ , bestimmen zunächst die voraussichtliche Lage der Kollisionen. Jeder Stoß wird getrennt ausgewertet und liefert Kollisionspunkte  $\hat{\zeta}_i$ . Nach der simultanen Behandlung beider Stöße werden Targets und Projektil auf Asymptotenschnittpunkte plziert, das Projektil verläßt die Kollision unter einem Winkel  $\theta$  in Richtung  $\bar{\lambda}_1$ .

### 4.3.2.1 Targetsuche

In Phase 1 muß in besonderer Weise auf die Übergänge zwischen Layern geachtet werden. Wegen der Existenz von Voidlayern bzw. speziell definierter Voidgitterplätze bedarf es einer aufmerksamen Bewertung, wenn Voidplätze beherrschende Targetpositionen einnehmen.

Erstes Prinzip ist das Durchsuchen aller benachbarten Layer und das Ausschließen aller Voidplätze, sofern schon ein besetztes Target gefunden wurde. Diese Bedingung sorgt für eine Reduzierung der Targetliste in der folgenden Stoßauswertung. Andererseits muß dafür gesorgt werden, daß in jedem angrenzenden Layer tatsächlich ein besetztes Target gefunden werden kann. Bis dahin werden dann auch Voidplätze in die Targetliste aufgenommen. So werden möglichst viele Targetpositionen in Layergrenznähe aufgefunden, was eine präzise Zuordnung des nächsten Referenzplatzes ermöglicht.

In der Targetsuche muß auch für den Fall, daß kein adäquates Target gefunden wurde, eine Bereitstellung von Daten für ein Vorrücken des Projektils gewährleistet sein. Konkret ist dies nötig, wenn keine besetzten oder unbesetzten Targets mit dem nötigen Mindestabstand<sup>1</sup>  $\zeta_{\min}$  vorliegen, oder aber ausschließlich Targets, die nicht mehr in der aktuellen Zeitscheibe ange-  
troffen werden. Dazu wird dann der Gitterplatz bzw. das Target mit dem kleinsten Stoßparameter bestimmt innerhalb der Liste aller abgelehnten Targets. Diese umfaßt diejenigen Targetpositionen, die nicht den geforderten Mindestabstand  $\zeta_{\min}$  aufweisen, deren Stoßparameter zu groß ist, die vakant sind oder außerhalb des MARLOWE-Targets liegen. Außerdem müssen alle Positionen im Layer des Targets liegen, was durch die Suchroutine für benachbarte Layer bedingt ist. Zusätzlich eingeschränkt wird die Liste durch die Bedingung, daß jede dieser Positionen weiter vom Projektil entfernt liegen muß als der augenblickliche Projektil-Referenzplatz. Damit wird verhindert, daß nach dem Stoß der Projektil-Referenzplatz nach hinten rückt und eine Propagation des Projektils unmöglich macht.

Schließlich muß wegen der Existenz von Voidlayern geprüft werden, ob das Fehlen von Targets mit einem Abstand größer als  $\zeta_{\min}$  auf das Vorliegen eines solchen hindeutet oder nicht. Im zweiten Fall wird die Suche als erfolglos gewertet, ein neuer Projektil-Referenzplatz definiert und die Suche neu gestartet. Im ungünstigsten Fall kann dieses Projektil nach einer bestimmten Anzahl von erfolglosen Suchvorgängen als fehlerhaft klassifiziert und aus der Kaskade ausgeschlossen werden.<sup>2</sup>

---

<sup>1</sup> Alle Abstände beziehen sich, wenn nicht explizit anders angegeben, auf die Projektion entlang der einlaufenden Projektilasymptoten (vgl. **ABB. 4.5**).

<sup>2</sup> Dies wird aufgrund der neuen Methodik nur äußerst selten beobachtet.

### 4.3.2.2 Stoßauswertung und Prüfung der Quasisimultanität

In der 2. Phase des Modells werden die Stoßintegrale ausgewertet, die Asymptoten bestimmt und die Simultanität aller Targets untersucht. Da zunächst alle Targets der Phase 1 berücksichtigt werden, auch unbesetzte Gitterlagen, sind je nach vorgegebenem Kristallsuchradius eine Vielzahl von Stoßauswertungen für simultane Stöße unnötig. Neben dem Ausschluß eines Teils der vakanten Targetpositionen, wie bisher in MARLOWE, wurde zusätzlich ein Kriterium eingeführt, das alle Targets, die vom ersten besetzten Target in Projektionsrichtung mehr als eine bestimmte Entfernung  $\Delta\zeta_{\max}$  entfernt liegen, eliminiert.<sup>1</sup>

Alle übrig gebliebenen Targets werden nun Stoß für Stoß ausgewertet. Die Resultate können nun aber, insbesondere bei unabgeschirmten Coulomb-Potentialen, beträchtlich differieren. Die grundlegenden Ursachen hierfür sind:

- Unendliche Reichweite: Das Zeitintegral ist nicht definiert, der elastische Streuquerschnitt unendlich, ebenso die Wechselwirkungszeit. Die Asymptoten der Trajektorien werden erst weit vom Streuzentrum erreicht.
- Attraktive Potentiale: Anfänglich kann eine rückwärtige Targetbewegung möglich sein, eventuell kreuzen sich die Trajektorien von Projektil und Target. Der Schnittpunkt der auslaufenden Targetasymptoten kann vor oder hinter dem Streuzentrum liegen, in vielen Fällen sogar weit davon entfernt. Auch negative Streuwinkel sind möglich.
- Niedrige Energien: Selbst bei abgeschirmten Potentialen können extreme Asymptotenpositionen und Kollisionszeiten berechnet werden. Obwohl die BCA für kleine Energien nicht mehr gültig ist, muß doch zur konsistenten Behandlung dieser Fälle ein Formalismus bereitgestellt werden. Die konkreten Probleme für repulsive bzw. attraktive Potentiale können durchaus sehr unterschiedlich sein.

#### Zeitintegral

Für unabgeschirmte Coulomb-Potentiale divergiert das Zeitintegral  $\tau$ . Während also der Streuwinkel im Prinzip beliebig genau berechnet werden kann, liefert die numerische Quadratur je nach Stützstellenzahl nahezu willkürliche Werte für  $\tau$ . Die resultierenden Ablenkungen von Projektil und Target sind also festgelegt, nicht jedoch die Lage ihrer Asymptoten. Andererseits erwartet man, daß für hinreichend große Entfernung vom Streuzentrum keine oder zumindest eine vernachlässigbare Ablenkung auftritt. Insofern können Asymptoten doch definiert werden.

<sup>1</sup> Dieses Kriterium kann per Eingabe gewählt werden, standardmäßig sind 0,075 nm vorgesehen. Tatsächlich erreicht man bei praktisch unverändertem Kaskadenverlauf eine Zeitersparnis von 20 bis 50 %.



In anderen Worten: auf der mikroskopischen Dimension der einzelnen Kollision werden keine asymptotischen Bahnen erreicht. Trotzdem kann man Geraden finden, die in makroskopischen Dimensionen eine angemessene Approximation zu den realen Trajektorien (für einen singulären Stoßvorgang) darstellen. Diese liegen jedoch in einer BCA-Simulation naturgemäß nicht vor, so daß eine Anpassung ohne explizite Berechnung der Trajektorien nicht möglich ist.<sup>1</sup>

Der in dieser Arbeit verfolgte Ansatz beschränkt sich auf die Integrabilität des Zeitintegrals. Dazu wird trotz nominell unendlicher Reichweite ein Potential-Cutoff  $\chi_c$  in der Quadratur von  $\tau$  eingeführt, so daß  $V(r) = 0$  für  $r > \chi_c + R$  ist. Offenbar ist es sinnvoll, keinen festen Cutoff zu verwenden, sondern diesen an die jeweilige minimale Stoßentfernung  $R$  anzupassen.

Die Quadratur des Zeitintegrals hängt wegen des scharfen Abbruchs bei  $r = \chi_c + R$  von der gewählten Stützstellenzahl ab, konvergiert jedoch zu einem Wert, der nur noch von dieser Abbruchkante abhängt. Für hohe Projektilenergien bzw. hinreichend große Stoßparameter wird  $\tau$  sehr klein, und Cutoff bzw. Stützstellenzahl beeinflussen nur wenig das Resultat. Je kleiner jedoch Energien und Stoßparameter sind, um so deutlicher treten Unterschiede auf. Mit großem  $\chi_c$  steigt auch  $\tau$  an und damit die Entfernungen  $x_1$  und  $x_2$  der Asymptotenschnittpunkte. Dies gilt selbst bei großem Stoßparameter, wo für abgeschirmte Potentiale (oder Coulomb-Potential mit kleinem  $\chi_c$ ) beide Schnittpunkte näher zum ursprünglichen Targetort rücken. Die Stützstellenzahl beeinflußt vorrangig die Fälle mit großem  $\chi_c$ , jedoch auch solche mit großem Stoßparameter und kleinem  $\chi_c$ . In diesem zweiten Fall kann  $\tau$  mit sinkender Stützstellenzahl ansteigen und dann wie bei großem  $\chi_c$  nur schwach mit dem Stoßparameter variieren.

Trotz dieser Ungenauigkeiten bei kleinen Energien ist dieser Ansatz in mehrfacher Hinsicht plausibel:

- Der Streuwinkel wird exakt ausgewertet und damit der Energieübertrag auf das Targetatom. Der Kollisionsvorgang wird so ausgewertet, als ob der gesamte Wechselwirkungsbereich überstrichen wurde. Damit wird dem erhöhten Bremsvermögen des Targetmaterials Rechnung getragen.
- Das Zeitintegral wird so berechnet, als ob die Wechselwirkung lokal begrenzt ist. Tatsächlich findet der Stoßvorgang nicht isoliert statt, sondern ist eingebettet in eine Umgebung weiterer Streuzentren, so daß die Bewegung der beiden Stoßpartner zunächst nur in einem kleinen Raumbereich betrachtet werden muß. Das gemäß  $\chi_c$  verkleinerte Zeitintegral rückt die Asymptotenschnittpunkte näher an das Streuzentrum, sie beschreiben deshalb im allgemeinen besser die Trajektorien in der näheren Umgebung des Streuzentrums. Dies gilt

---

<sup>1</sup> Offenbar wäre dies ein Ansatzpunkt für einen BCA-MD-Hybridcode, der bei Bedarf die BCA verläßt, um molekulardynamisch die Bewegung der Stoßpartner zu berechnen.

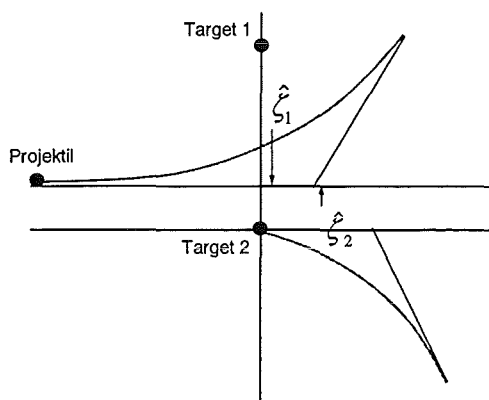
allerdings nur dann, wenn die Apsis nicht deutlich größer ist als die ursprüngliche Projektil-Target-Entfernung. Andernfalls ist die Ausgangslage des Projektils unvereinbar mit einer Stoßauswertung, die minimale Wechselwirkung bei Stoßbeginn voraussetzt. Das Projektil wäre nicht einmal in der Lage, sich dem Targetatom so weit zu nähern.

- Schließlich überlagern sich in der quasisimultanen Behandlung i.a. mehrere Stöße. Der Nettoeffekt ist eine verstärkte Abbremsung des Projektils, das sehr schnell gestoppt werden kann, und eine mehrfache Ablenkung auf engem Raum, so daß die jeweiligen Asymptoten bei weitem nicht erreicht werden können. Deshalb ist es sinnvoll, die Stoßpartner nicht zu weit aus dem Streuzentrum zu rücken, z.B. nicht weiter als der mittlere Atomabstand im Kristallgitter. Dieser Punkt wird weiter unten noch näher erläutert (s. Abschnitt „Niederenergiefall“, S. 79f.).

Ungeachtet der Anpassungen in der Berechnung des Zeitintegrals erwartet man trotzdem deutliche Abweichungen in Bezug auf Richtung und Größe der kinematischen Stoßlängen  $\hat{\zeta}$  (Kollisionslänge, d.i. die korrigierte projizierte Targetentfernung) und  $\zeta^*$  (Entfernung für die Zeitberechnung) bzw.  $x_1$  und  $x_2$ . Diese Effekte spielen selbst im Falle herkömmlicher abgeschirmter repulsiver Potentiale bei niedrigen Energien eine wichtige Rolle in der Bewertung simultaner Stöße.

### Repulsive Potentiale

Für abgeschirmte repulsive Potentiale kann bei höheren Energien und kleinem Stoßparameter der Kollisionspunkt für das Projektil hinter dem ursprünglichen Targetort liegen ( $\hat{\zeta} > \zeta$ ). Dies ist für schwach abgeschirmte Potentiale jedoch meist der Fall, da sich die Projektilablenkung in einem großen Raumbereich vollzieht und die asymptotische Bahn erst weit hinter dem Streuzentrum erreicht wird. Ist nun  $\hat{\zeta} > \zeta$ , so kann im bisherigen MARLOWE-Modell ein Stoßvorgang eventuell überlesen werden (vgl. **ABB. 4.6**).



**ABB. 4.6:** Kinematik mit repulsivem Potential: Projektil streut stark an Target 2, jedoch nur schwach an Target 1. Ist die Differenz der beiden Kollisionslängen  $\hat{\zeta}_i$  zu groß, werden beide Stoßvorgänge getrennt, das Projektil rückt nach  $\hat{\zeta}_1$  vor. Anschließend wird Target 2 überlesen.

Auf der anderen Seite kann bei hoher Abschirmung auch  $\hat{\zeta} < 0$  werden, d.h. der Kollisionsort liegt vor dem aktuellen Projektilort, so daß der Stoß im Prinzip schon abgehandelt sein müßte.

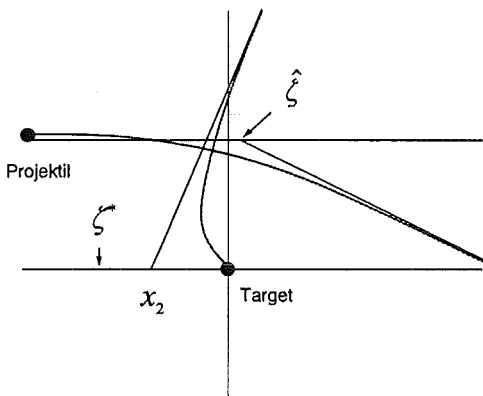
Ist dann die Kollisionszeit aber in der Zukunft, also  $\zeta^* > \zeta$  oder auch nur  $\zeta^* > 0$ , so kann die Kollision doch noch erfolgen, was im bisherigen MARLOWE-Modell nicht möglich war.

Attraktive Potentiale

Bei Vorliegen von attraktiven Potentialen beginnt die Targetbewegung in Richtung des Projektils, so daß die zugehörige Asymptote die Projektilrichtung vor dem ursprünglichen Targetort schneiden kann ( $x_2 < 0$ ). Zusätzlich kann, v.a. bei kleinen Energien und großen Stoßparametern, der Streuwinkel  $\theta$  kleiner 0 sein, d.h. die resultierende Projektilablenkung ist wesentlich durch den attraktiven Teil des Stoßvorganges bestimmt. Diese beiden Fälle,  $x_2 < 0$  und  $\theta < 0$ , müssen nun neu in der Kinematik berücksichtigt werden.

Eine direkte Konsequenz von  $x_2 < 0$  ist  $\zeta^* < \hat{\zeta}$ , d.h. die Kollisionszeit ist kleiner als es der Kollisionslänge entspricht. Dies kommt daher, daß beide Teilchen zunächst aufeinanderzu beschleunigt werden. Wenn dann der repulsive Part des Stoßvorganges nur noch einen kleinen Einfluß auf die Stoßpartner ausüben kann, ist die effektive Bewegung des Projektils bis zum Asymptotenschnittpunkt (Kollisionspunkt) beschleunigt. Es trifft also früher in der Apsis ein als bei gleichförmiger oder abgebremster Bewegung.

Besonders ausgeprägt ist dies bei nahezu beliebiger Energie, wenn der Stoßparameter hinreichend groß ist, damit nur attraktive Potentialbereiche durchflogen werden. In diesem Falle ist es sogar möglich, daß die Targetasymptote vor der Projektilasymptoten zu liegen kommt. Dies bedeutet nach Glg. (115) gerade, daß  $\theta < 0$  ist.

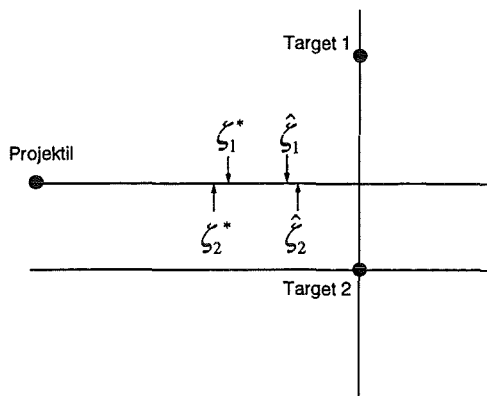


**ABB. 4.7:** Kinematik mit attraktivem Potential: Die anfänglich retrograde Targetbewegung kann zur Überschneidung der Trajektorien führen. Die Targetasymptote liegt in diesem Fall vor der Projektilasymptoten, und der Streuwinkel ist negativ.

Dadurch, daß die gegenseitige Lage von  $\hat{\zeta}$  und  $\zeta^*$  sehr stark variieren kann (d.h. Ort und Zeit in der BCA-Simulation), ergeben sich offensichtlich Probleme in der Beurteilung, wann Kollisionen simultan zu werten sind. Beispielsweise können die beiden Längen so weit getrennt sein, daß der Stoß zwar räumlich in Projektilvorwärtsrichtung liegt, zeitlich aber in der Vergangenheit bezüglich der aktuellen Projektilzeit. Solche Vorgänge werden im bisherigen MARLOWE-Modell komplett abgelehnt. Sofern man das Projektil nur in kleinen Schritten vorrücken läßt, können diese Fälle wenigstens teilweise vermieden werden.

Vergangenheit bezüglich der aktuellen Projekttilzeit. Solche Vorgänge werden im bisherigen MARLOWE-Modell komplett abgelehnt. Sofern man das Projektil nur in kleinen Schritten vorrücken läßt, können diese Fälle wenigstens teilweise vermieden werden.

Auch kann die Reihenfolge von Stoßvorgängen umgedreht werden, wenn Kollisionszeit und -länge für verschiedene Targets unterschiedlich stark differieren.



**ABB. 4.8:** Simultanität bei attraktivem Potential: Räumlich erfolgt Stoß an Target 1 vor Target 2 (vgl.  $\hat{\zeta}_i$ ). Sind beide nicht mehr simultan, wird nach der Kollision an 1 im folgenden Target 2 abgelehnt wegen dessen zu früher Kollisionszeit (vgl.  $\zeta_i^*$ ).

Dann können diese, wie am Beispiel in **ABB. 4.8** das Target 2, in einem späteren Kollisionsvorgang abgelehnt werden.

### Niederenergiefall

Wie bereits oben im Zusammenhang mit der Integrabilität des Zeitintegrals angesprochen, sind Kollisionen mit Schwerpunktsenergien von wenigen eV/amu kritisch für die BCA. Besonders für nicht vollständig abgeschirmte Potentiale treten dann extreme Werte für die beiden Kollisionslängen auf. Selbst wenn die Berechnung von Kollisionen in diesem Energiebereich nur sehr approximativ ist, muß doch ein Schema aufgestellt werden, daß einen geordneten Kaskadenverlauf gewährleistet.

Im repulsiven Fall kann wegen der starken Abbremsung des Projektils die erwartete Kollisionszeit sehr viel größer werden, als es der Kollisionslänge entspricht, die selbst deutlich größer ist als die unkorrigierte Targetentfernung, d.h.  $\zeta^* \gg \hat{\zeta} \gg \zeta$ . Eventuell kann sogar  $\zeta^*$ , das ohne Berücksichtigung des nichtlokalen Verlustes entlang der Projektiltrajektorie berechnet ist, größer sein als die innerhalb der vorgegebenen Zeitscheibe maximal erreichbare Entfernung, die der zusätzlichen Abbremsung durch inelastische Energieverluste Rechnung trägt. Deshalb würde diese Kollision im vorliegenden MARLOWE-Modell in eine spätere Zeitscheibe verschoben, wo die endgültige Auswertung eine zu frühe Kollisionszeit ergibt.<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Speziell kann das Projektil so stark abgebremst werden, daß es die nominelle Apsis gar nicht mehr erreicht, was im Marlowe-Modell zu einem Fehler führt.

Wenn  $\hat{\zeta}$  in die Größenordnung von interatomaren Distanzen im Targetkristall kommt, kann das Projektil nach Auswertung des Stoßvorgangs eine oder mehrere Atomlagen übersprungen haben. Deren Potentialeinfluß, mithin die dadurch verursachte Abbremsung, würde dann in der Propagation des Projektils fehlen, so daß dieses unverhältnismäßig weit im Kristall vorrücken kann. Ein ebensolcher Effekt ist möglich, wenn Targetbegegnungen eine Rückbewegung des Projektils verursachen würden ( $\zeta^*, \hat{\zeta} < 0$ ). Solche Fälle werden im bisherigen MARLOWE-Modell bis auf eine einzige Ausnahme, die erste Kollisionsphase eines neu gestarteten Projektils, abgelehnt. Für nichtabgeschirmte attraktive Potentiale, und in Einzelfällen auch im repulsiven Fall, werden dann bei niedrigen Energien viele Targets abgelehnt, so daß das Projektil nur sehr schwach durch nichtlokale inelastische Verluste abgebremst werden kann. Auch hier muß also Sorge dafür getragen werden, daß die Wechselwirkung mit möglichst allen Targetatomen berücksichtigt wird.

### 4.3.2.3 Schema des neuen Quasisimultan-Modells

Im Zusammenwirken aller bisher beschriebenen Effekte ergeben sich weitere Modifikationen im neukonzipierten Modell quasisimultaner Stöße, das im folgenden in seiner endgültigen Form vorgestellt werden soll.

Die besonderen Anforderungen und Probleme für kleine Schwerpunktsenergien erfordert zunächst eine Methode, um diesen Fall identifizieren zu können. Dazu ist ein einfaches Energiekriterium offenbar wenig geeignet, da es nicht individuelle Konstellationen von Projektil und Targetatomen berücksichtigen kann. Deshalb wurde hier ein kinematisches Kriterium eingeführt, daß die Differenzen  $|\hat{\zeta}_i - \zeta_i|$  für alle Targetatome  $i$  verwendet. Sofern eine dieser Differenzen größer als eine charakteristische Länge der Kristallstruktur ist, wird ein Niederenergiefall registriert. Eine zweckmäßige Länge ist in diesem Zusammenhang der mittlere Atomabstand. Dann greift das Kriterium in dichten Materialien schneller, was für die Behandlung von Mehrkörpereffekten angemessen erscheint.

Nach der Auswertung aller binären Kollisionen werden verschiedene Tests für jede einzelne Targetbegegnung durchgeführt (Phase 2). Zunächst wird eine etwaige rückwärtige Targetbegegnung begrenzt auf den ursprünglichen Projektilort, so daß kein Target nach dem Stoß hinter dem Projektilausgangspunkt landen kann. Wenn die berechnete Kollisionszeit kleiner ist als eine vorgegebene Mindestmarke  $\Delta\zeta_{\min}^*$ , die bis auf gestoppte Kaskadenatome stets 0 ist, so wird in den meisten Fällen dieses Target abgelehnt. Ausnahmen hierzu sind, wie bisher ein Projektil auf seiner ersten Flugphase, und neu im hier definierten Niederenergiefall. Dabei wird lediglich die Kollisionszeit positiv gesetzt (auf  $\Delta\zeta_{\min}^*$ ), nicht jedoch die Kollisionslänge, so daß eine rückwärtige Projektilbewegung mit einem Zuwachs an kinetischer Energie (sofern ein nichtlokaler Energieverlust im Kristall ausgewiesen wird) erlaubt ist. Dies muß jedoch auf der ersten Flugphase eines Projektils vermieden werden.

Unter allen noch verbleibenden Targetatomen wurde im bisherigen MARLOWE-Modell dasjenige bestimmt, das die kleinste Kollisionslänge  $\hat{\zeta}_f$  liefert (als „1. Target“ bzw.  $T_f$  bezeichnet), unabhängig von Kollisionszeit oder Targettyp (Gitteratom, Kaskadenatom, Leerstelle). Im neuen Modell sind jedoch Verfeinerungen nötig. Im Niederenergiefall können beispielsweise mehrere Targets ein  $\hat{\zeta} = 0$  liefern, so daß hier das Target mit kleinster Kollisionszeit als  $T_f$  definiert wird. So können die zeitlich später liegenden Kollisionen doch, wie weiter unten ausgeführt wird, simultan ausgewertet werden. Auch der Targettyp kann eine Rolle spielen, wenn eine Leerstelle vor dem ersten Targetatom liegt. Wenn nämlich für dieses Targetatom der Kollisionsort vor der aktuellen Targetposition liegt (d.h.  $\hat{\zeta} < \zeta$ ) und die Kollisionszeit später als für die Leerstelle, so wird die Leerstelle als  $T_f$  definiert. Dies gewährleistet im Falle, daß beide Vorgänge nicht simultan sind, eine korrekte Auswertung der Targetbegegnung in der folgenden Kollisionsphase. Schließlich muß, da  $\hat{\zeta}$  und  $\zeta^*$  nun in beliebiger Relation stehen können, auch die Kollisionszeit überprüft werden. Wird nun kein besetztes Target in der aktuellen Zeitscheibe getroffen, können eventuell Leerstellen in der anschließenden Simultanitätsprüfung berücksichtigt werden. Dies ist dann der Fall, wenn entweder gar kein besetztes Target vorhanden ist oder das erste unbesetzte Target vor dem ersten besetzten Target liegt. Auch für diese Konstellationen wird so eine erfolgreiche Auswertung in den sich anschließenden Kollisionen sichergestellt.

Die Simultanitätsprüfung untersucht zunächst, ob eine Niederenergiefall vorliegt. Ist dies der Fall, werden alle Targets, deren unkorrigierte Entfernung  $\zeta$  oder der Kollisionslänge  $\hat{\zeta}$  kleiner ist als die maximal erlaubte Distanz  $\hat{\zeta}_f + \Delta\hat{\zeta}_{\max}$ <sup>1</sup>, simultan behandelt. Damit wird verhindert, daß durch weites Vorrücken des Projektils Targets übergangen werden. Wenn jedoch kein Niederenergiefall vorliegt, werden wie bisher nur die Targets mit  $\hat{\zeta}$  im Intervall  $[\hat{\zeta}_f, \hat{\zeta}_f + \Delta\hat{\zeta}_{\max}]$  berücksichtigt und zusätzlich in der neuen Fassung auch solche, deren Kollisionszeit  $\zeta^*$  kleiner ist als die des 1. Targets,  $\zeta_f^*$ . Somit können auch zeitlich früher liegende Kollisionen noch simultan ausgewertet werden.

Unter allen simultanen Targets wird nun dasjenige bestimmt, das die größte Projektilablenkung verursacht hat. Dieses liefert dann als sogenanntes „nächstes Target“,  $T_n$ , die Daten für die auslaufende Projektilasymptote. Im bisherigen MARLOWE-Modell war dies das 1. Target  $T_f$ . Da aber im verbesserten Quasisimultan-Modell durchaus große Unterschiede in den Kollisionslängen der beteiligten Targets auftauchen, ist es sinnvoller und physikalisch plausibler, die Kollision, die am stärksten auf das Projektil wirkt, als die entscheidende zu betrachten.

Die Phase 3 der Quasisimultan-Modells (Bestimmung der Projektil- und Targetdaten nach dem Stoß) bedarf aufgrund der oben erläuterten Modifikationen in Phase 2 einer grundlegenden Neuformulierung. Zunächst sind zwei besondere Fälle, verspätete Kollisionen und Begegnungen mit gestoppten Kaskadenatomen, zu beachten. Im ersten Fall muß nun zusätzlich

<sup>1</sup> Standardmäßig ist  $\Delta\hat{\zeta}_{\max} = 0,25$  nm.

geprüft werden, ob die vorhergesagte Kollisionszeit tatsächlich jenseits der aktuellen Zeitscheibe liegt. Falls nicht, wird eine Auswertung erzwungen, die eine korrekte Kollisionszeit liefert und deren Energieübertrag asymptotisch richtig ist. Im übrigen bleibt auch der nichtlokale inelastische Energieverlust durch diese Auswertung unberührt. Im zweiten Fall wurde eine Sonderbehandlung von Nichtgitteratomen im bisherigen MARLOWE-Modell aufgegeben. Diese sah vor, daß ein Nichtgitteratom als  $T_f$  abgelehnt wird, wenn ein Gitteratom oder eine Leerstelle vor ihm liegt. Im neuformulierten Quasisimultan-Modell gibt es aber keinen plausiblen Grund für solch eine Maßnahme, so daß nun jeder Targettyp gleichwertig ist.

Während die übliche Skalierung der kinetischen Energien und die vektorielle Addition von Projektilimpulsen aus einzelnen Kollisionen beibehalten wird, müssen die Positionen der Asymptotenschnittpunkte beschränkt werden. Für Targetatome wird die maximale Ablenkung aus der jeweiligen Anfangslage auf einen mittleren Atomabstand begrenzt. Dies gilt auch für eine rückwärtige Bewegung des Projektils, bei einer Vorwärtsbewegung jedoch bezogen auf die Position von  $T_n$ . Aufgrund der teilweise erheblichen Unterschiede für die einzelnen Kollisionszeiten wird nun jedem Target eine individuelle Zeit zugeordnet, dem Projektil die Zeit für das Target  $T_n$ . Jede dieser Zeiten berücksichtigt den nichtlokalen Energieverlust des Projektils bis zum jeweiligen Kollisionspunkt. Den entstehenden Leerstellen wird die Zeit des Projektils nach dem Stoß zugeordnet, da angenommen ist, daß in diesem Zeitpunkt alle Targetatome ihre Gitterplätze verlassen haben.

In der abschließenden Phase 4 wird eine neue minimale Stoßentfernung  $\zeta_{\min}$  gesucht. Um bisherige Targets zu vermeiden, ist diese in einer ersten Betrachtung bestimmt durch die maximale Projektil-Target-Entfernung nach dem Stoß (projiziert auf die auslaufende Projektilasymptote). Hierbei muß im neuen Modell für rückwärtige Auslenkungen von Targets, die aber sofort auf ihre Gitterstelle zurückfallen, der Ort vor dem Stoß verwendet werden. Targets, die bei großer Projektilablenkung nach dem Stoß einen verkleinerten Stoßparameter aufweisen, sollen aber in einem folgenden Stoßvorgang nochmals behandelt werden können und müssen deshalb aus der Bestimmung des maximalen Abstands ausgeschlossen werden. Negative Streuwinkel erfordern dazu zusätzliche Abfragen, insbesondere ob das Target bezüglich der neuen Projektilrichtung überhaupt in Vorwärtsrichtung liegt. Schließlich können wegen der extremen Asymptotenschnittpunkte auch alle bisherigen Targets keinen Wert für  $\zeta_{\min}$  liefern, so daß eine zusätzliche Sicherung im neuen Modell eingebaut werden muß, um auch in diesem Fall die Fortführung der Kaskade zu ermöglichen.

## 4.4 Identifizierung von Defekten

### 4.4.1 Rekombination und Stabilität von Punktdefekten

Nach Abschluß der ballistischen Phase der Stoßkaskadenentwicklung sind im Kaskadenvolumen Leerstellen, Zwischengitteratome und Fehlbesetzungen (in polyatomaren Materialien) verteilt. Diese sind nun in ihrer Gesamtheit nicht stabil bzw. immobil, sondern können in sekundären Prozessen (s. S. 5) in gegenseitige Wechselwirkung treten bzw. in Wechselwirkung mit Mikrostrukturen des Targets. Die Beschreibung der relevanten Prozesse kann aber nicht im Rahmen einer BCA-Simulation erfolgen.

Vielmehr sind hier zunächst alle beteiligten Defekte im Gitter fixiert. Die jeden Defekt umgebenden Spannungsfelder können nun zu spontanen Rekombinationen von Atomen mit Leerstellen führen und somit die Defektzahl deutlich reduzieren. Die auf diese Weise bestimmte Punktdefektanzahl- und Verteilung stellt gewissermaßen den primären Defektzustand (PDS) als den Ausgangspunkt aller weiteren Betrachtungen zur Defektentwicklung dar.

Innerhalb des Spannungsfeldes eines Zwischengitteratoms ist also spontane Rekombination mit einer Leerstelle möglich. Tatsächlich gibt es jedoch Einschränkungen; so sind z.B. nicht alle Gitterpunkte innerhalb eines Spannungsfeldes gegebener Auslenkung auch Rekombinationsstellen. Eventuell sprechen auch Stöchiometrie und Atomgrößen gegen eine Rekombination. Dadurch ist die rekombinationsfähige Umgebung eines Defekts im allgemeinen von komplexer, asymmetrischer Form. Molekulardynamische Rechnungen eignen sich, um solche Felder bestimmen zu können (s. beispielsweise [85]). Je komplexer der Kristall und die atomare Zusammensetzung, desto differenzierter sind die jeweiligen lokalen Umgebungen. Eine individuelle Bestimmung aller Rekombinationsfelder ist dann sehr aufwendig, ja oft undurchführbar. Deshalb werden in MARLOWE, wie in anderen Simulationscodes, vereinfacht sphärische Rekombinationsfelder verwendet. Innerhalb eines vorgegebenen Radius kann dann spontane Rekombination erfolgen.

Ist dabei ursprünglich das Atom von der Leerstelle gestartet, handelt es sich um korrelierte Rekombination, andernfalls spricht man von unkorrelierter Rekombination. Ebenso unterscheidet man Rekombinationen mit Leerstellen, deren natürliche Besetzung auch das rekombinierte Atom umfaßt („eigentliche Rekombination“), von denen, die zu einer Fehlbesetzung führen („uneigentliche Rekombination“).

In MARLOWE wird zusätzlich folgende Nomenklatur verwendet: Rekombinationen eines Atoms mit seinem Gitterreferenzplatz werden als „close pairs“ (CP) bezeichnet, sofern dieser leer ist und nicht schon mit einem anderen Zwischengitteratom rekombiniert ist. Rekombinationen in der Nachbarschaft eines Zwischengitteratoms sind dann „near pairs“ (NP). Ihre Zahl hängt stark vom gewählten Rekombinationsradius ab. Insbesondere muß dieser, speziell bei Anwendungen mit langreichweitigen Potentialen (s. Kap. 4.1.3, S. 56ff.), vom maximalen Suchradius für die Nachbarnlisten entkoppelt werden. Alle übrigen Defekte bilden dann



„distant pairs“, also stabile Frenkeldefektpaare, Hierbei wird differenziert, ob ein Defekt an der Oberfläche des gesamten Targets liegt („surface pairs“) oder nicht („bulk pairs“).

Gemäß den durch die Implementierung von statistisch besetzten Gitterpunkten mit Voidanteil (s. Kap. 4.1.2) und lateral begrenzte Layer (s. Kap. 4.2) bedingten weitreichenden Modifikationen im Target- bzw. Kristallitmodell ergeben sich nun zusätzliche Aspekte in der Defektidentifizierung und Registrierung. Durch die abstandsabhängige Rekombination mit Voidanteilen auf benachbarten Gitterplätzen steigt die Zahl der CP und NP deutlich an. Dies wiederum führt zu einer Reduzierung der stabilen Defekte, da einige Zwischengitteratome nicht mehr gepaart werden können. Eine analoge Anzahl von freien Leerstellen bleibt zurück.

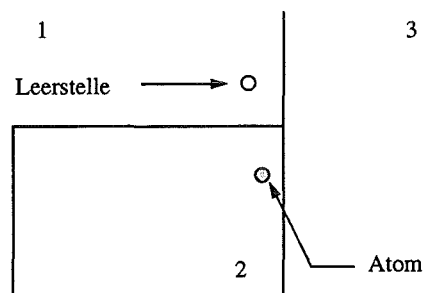
CP mit Partnern in benachbarten Layern werden aufgrund der in Kap. 4.2 vorgenommenen Änderungen nun nicht mehr identifiziert. Dafür können nun NP in Layergrenznähe besser entdeckt und ihre Layerzugehörigkeit eindeutig bestimmt werden. Konsequenterweise werden dann auch Defektpaare mit Belegung unterschiedlicher Layer verlässlicher erkannt.

Die Identifizierung von Rekombinationen von Kaskadenatomen mit nahen Leerstellen muß in Anwesenheit von Layergrenzen völlig neu gestaltet werden. Bisher konnten sogenannte „close surface pairs“ gefunden werden, wenn nämlich der leere Referenzplatz eines Kaskadenatoms in einem benachbarten Layer liegt. „Near surface pairs“ (eine Gitterfehlerstelle im benachbarten Layer ist Mitglied der Nachbarnliste des Projektils) sind zwar in MARLOWE vorgesehen, werden aber in der vorliegenden Fassung nicht korrekt gefunden. Übriggebliebene stabile Defektpaare („distant surface pairs“) werden ausschließlich den äußeren Targetflächen zugeordnet, zudem werden Defektpaare mit Belegung benachbarter Layer eigens registriert.

Effektiv scheint aber die Identifizierungsroutine wenig geeignet zu sein, Defektrekombination in Layergrenznähe verlässlich zu beschreiben. Denn es wird nur die Kristallumgebung im aktuellen Layer des Projektils bei der Suche nach Leerstellen und statistisch besetzten Punktlagen abgesucht (s. Kap. 4.1.2). Für echte Leerstellen stellt dies kein ernstes Problem dar, da diese in der entsprechenden Hashtabelle nur bei präziser Übereinstimmung der Koordinaten gefunden werden. Wesentlich kritischer ist es, wenn jedoch Gitterplätze verwendet werden sollen, die tatsächlich außerhalb ihres Layers liegen und somit dort nur virtuell sind. Weiter ist die Registrierung eines „close surface pairs“ prinzipiell rein zufällig, da sich der Referenzplatz des Atoms aus dessen Vorrücken innerhalb der Kaskade ergibt, nicht jedoch aus geometrischen Erwägungen. Auch ist nicht eindeutig festgelegt, daß dieser Punkt der dem Atom nächstgelegene Gitterpunkt ist, und insofern zeichnet ihn nichts aus gegenüber anderen rekombinationsfähigen Gitterpunkten.

Die neue Defektidentifizierung kann nun keine solchen „close surface pairs“ finden, da die Referenzplätze gestoppter Kaskadenatome stets im selben Layer liegen. Dies wiederum verbessert die Zuordnung von Zwischengitteratomen zu Layern. Andererseits werden solche Paare dann als „near surface pairs“ identifiziert, so daß die Summe aller Rekombinationen (im Layer oder an der Oberfläche) konstant bleibt.

Vor der Suche nach „near pairs“ wird zunächst geprüft, ob innerhalb des Rekombinationsradius ein Layerwechsel nötig ist. Anschließend wird dann zunächst im aktuellen Layer nach einer Leerstelle, vakantem Gitterplatz bzw. Voidgitterplatz gesucht. Gleichzeitig wird auch der nächste Gitterpunkt in einem angrenzenden Layer unterschiedlicher Struktur vermerkt. Wenn nun keine geeignete Leerstelle gefunden wurde (die nämlich näher zum Atom liegt als eine Layergrenze), so wird in dem so vermerkten Layer weitergesucht. Hierin wird die Suche auf Targets begrenzt, die näher liegen als die bisher gefundenen Leerstellen im ersten Layer. Damit ist dann gewährleistet, daß im angrenzenden Layer noch eine Rekombination möglich ist. In ungünstigen Fällen wird eine Rekombination übersehen, wenn sich die betreffende Leerstelle in einem weiter entfernten Layer befindet:



**ABB. 4.9:** Defektrekombination in benachbarten Layern: Hier wird nur Layer 2 und Layer 3 durchsucht, die Leerstelle in Layer 1 wird überlesen.

Solche Konstellationen werden als Defektpaare gezählt. Die „near pairs“ werden je nach Lage von Zwischengitteratom und Leerstelle als Oberflächenpaare auf Frontfläche, Rückfläche oder Seitenfläche klassifiziert. Ist die Leerstelle jedoch ein vakanter statistisch besetzter Gitterplatz, wird nicht näher spezifiziert.

Neben der einfachen Registrierung der verschiedenen Rekombinationstypen und der beteiligten Partner muß geklärt werden, welche dieser Ereignisse zur Materialschädigung beitragen. Diese sind dann Eingangsgrößen für weitere Betrachtungen, wie z.B. in den Korrelationsparametern für Verlagerungsschädigung.

- Eigentliche Rekombinationen verändern nicht die lokale Materialstruktur. Dies trifft auch für Ersetzungsstöße auf passende Gitterplätze (eigentliche Ersetzungsstöße) zu. Diese Ereignisse, zusammen mit dem verlagerungsfreien Transport kinetischer Energie (Fokusernen), werden dementsprechend nicht zur Materialschädigung gezählt.
- Uneigentliche Rekombinationen und Ersetzungsstöße führen zu chemischer Unordnung und je nach Atomgröße zu unterschiedlichen mechanischen Spannungsfeldern. Diese kaskadeninduzierten Fehlbesetzungen werden nach Atomtyp sortiert.
- Die übrigen stabilen Defekte, ob innerhalb des Materials oder an der Oberfläche, stehen als Frenkeldefekte direkt als Schädigungseinheiten zur Verfügung. Obwohl im Prinzip auch hier die Unterscheidung in eigentliche und uneigentliche Defektpaare möglich ist, ist diese Unterteilung doch von untergeordneter Bedeutung. Denn Leerstelle und Zwischengittera-

tom sind so weit von einander entfernt, daß nicht ihre gegenseitige Beziehung im Vordergrund steht, sondern ihre je eigene lokalen Umgebung. In diesem Sinne werden Zwischengitteratome zum Abschluß der Kaskade den definierten Gitterpunkten zugeordnet.

Zusammenfassend werden also folgende Ereignisse als Schädigungseffekte gewertet und in den Kaskadenauswertungen analysiert:

Frenkeldefekte und Oberflächenpaare, die nicht spontan rekombinieren	<i>dpa</i>
ungepaarte Leerstellen und Zwischengitteratome	
Fehlbesetzungen (Fremdatome auf Gitterplätzen)	<i>ddf</i>

Dabei bezeichnen *dpa* (displacements per atom) Verlagerungen pro ursprünglichem Gitteratom und *ddf* (disorder defect fraction) den Anteil von Fehlordnungsdefekten.

Wegen der zentralen Bedeutung der Schädigungsenergie  $E_{dam}$  im Rahmen des NRT-*dpa*-Konzepts wird das Verhalten dieser Größe stets mituntersucht. Sie erlaubt es, unabhängig von Rekombinationsradien oder effektiven Verlagerungsschwellen das Schädigungsverhalten innerhalb einer Kaskade zu beschreiben, da lediglich die Aufteilung der primären Projektilenergie auf die beteiligten Kaskadenatome bestimmt wird. Deren Schicksal wird also nicht explizit verfolgt; insofern sind Vergleiche verschiedener Kaskadensimulationen auf der Basis von  $E_{dam}$  lediglich geeignet, wesentliche Charakteristiken der zugrundegelegten Physik aufzuzeigen. Kristalline und verwandte Eigenschaften können dagegen nur unzureichend gegenseitig bewertet werden.

### 4.4.2 Punkt- und Clusterdefekte

Der primäre Schädigungszustand beschreibt die Defektverteilung am Ende einer Kaskade, wenn alle Atome unterhalb einer atomspezifischen Energieschwelle abgebremst sind. Durch die sich anschließende athermische Annihilation und spätere thermische Diffusion wird zum einen die Defektanzahl reduziert, zum anderen deren Morphologie geändert. Diese Entwicklung ist im Rahmen einer ballistischen Stoßkaskadensimulation (insbesondere in der BCA) nicht zu behandeln. Diese kann aber den Input für alle folgenden Berechnungen oder Simulationen liefern. Deshalb ist es wichtig, nicht nur die Defektausbeute (eventuell näher charakterisiert durch Angabe der beteiligten Leerstellen und Atome) zu kennen, sondern auch ihre räumliche Anordnung und Korrelation. Insbesondere wird man dann Gebiete hoher Konzentration gegensätzlicher Defekte bzw. clusterähnliche Ansammlungen ähnlicher Defekte als potentielle Keimzellen erhöhter Annihilation bzw. Defektagglomeration identifizieren können.

Zu diesem Zweck soll im folgenden ein Schema entworfen werden, wie eine solche Konzeption in MARLOWE integriert werden kann. Dabei müssen im wesentlichen zwei Bereiche un-

terschieden werden, zum einen die Identifizierung und Charakterisierung von Defektansammlungen, zum anderen die räumlichen Dimensionen und Defektkonzentration.

Cluster werden separat definiert für Leerstellen, Zwischengitteratome und Fehlbesetzungen als Ansammlungen von Defekten, die innerhalb der maximalen Clusterlänge  $r_{\max}$  mindestens einen weiteren Defekt als Nachbarn haben. Solchermaßen bestimmte Cluster können ausgesprochen vielfältige Formen bilden, von langgestreckten Ketten bis zu kompakten Körpern. Neben der Größenangabe (Zahl der Defekte in einem Cluster) ist deshalb zusätzlich eine Quantifizierung ihrer Kompaktheit erforderlich.

Man betrachte dazu als Beispiel die folgenden Cluster aus jeweils drei Defekten:

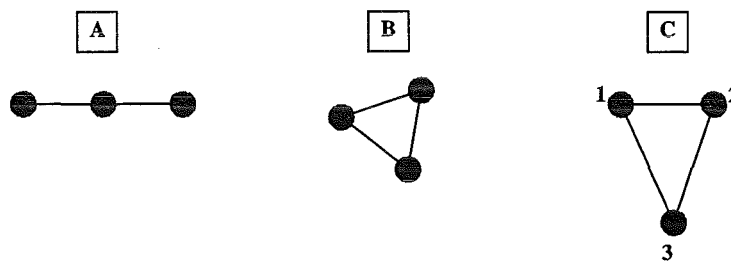


ABB. 4.10: Typische Clusterkonfigurationen dreier Defekte (Tripletts)

Dabei seien die Entfernungen zwischen einzelnen Defekten stets gleich, bis auf den Fall C, wo Defekt 3 von den beiden anderen Defekten einen doppelt so großen Abstand aufweise.

Intuitiv wird man B als kompakt bzw. lokalisiert betrachten, die ausgedehnten Cluster A und C lassen sich dagegen nur schwer differenzieren. Genauere Aussagen erhält man, wenn man die Längen aller beteiligten Verbindungen  $\bar{r}_{ij}$  in geeigneter Weise summiert:

$$C = \sum_{i \neq j} |\bar{r}_{ij}|^x \quad (123)$$

Dabei erreicht man, sofern die Mehrzahl der  $\bar{r}_{ij}$  größer 1 ist in entsprechend gewählten Einheiten, eine sehr deutliche Charakterisierung für Exponenten  $x > 1$ . In den obigen Beispielen hätte man so (wenn der minimale Abstand  $r_{ij}$  gerade 1 beträgt)

x	Cluster A	Cluster B	Cluster C
1	$C = 4$	$C = 3$	$C = 5$
2	$C = 6$	$C = 3$	$C = 9$

So zeigt sich für  $x = 2$  bereits eine deutliche Differenzierung zwischen den Clustern A und C. Für die folgende Diskussion und alle Berechnungen in dieser Arbeit ist deshalb  $x = 2$  angesetzt worden.

Mit diesem Korrelationsparameter  $C$  lassen sich Cluster fester Größe gut miteinander vergleichen. Kompakte, eng lokalisierte Cluster weisen einen kleinen Korrelationsparameter auf, ausgedehnte, schwach lokalisierte dagegen einen sehr großen. Extreme Werte erhält man für langgestreckte, lineare Defektanordnungen; sind dann alle Defekte im Abstand  $r_{\max}$  aufgereiht, so ergibt sich der maximale Korrelationsparameter  $C = r_{\max}^2 \left( (n^4 - n^2) / 12 \right)$ , wenn  $n$  die Clustergröße ist. Da  $r_{\max}$  eine charakteristische Längeneinheit darstellt, bietet es sich an, den Korrelationsparameter auf diese Länge zu normieren.

Um nun auch unterschiedliche Clustergrößen vergleichen zu können, berechnet man den Korrelationsparameter pro Verbindungsstrecke zweier Defekte im Cluster, d.h.

$$\bar{C} = \frac{2}{(n-1)n} \sum_{i \neq j} |\bar{r}_{ij}|^x \quad (124)$$

Zwar erhält man auch dann noch sehr große Parameter für große Cluster, doch gleichen sich die Werte an, vor allem wenn die Cluster kompakt sind.

Für die räumliche Charakterisierung ausgedehnter Stoßkaskaden soll in dieser Arbeit eine einfache, aber effiziente Zellengliederung verwendet werden. Diese ermöglicht in gewissen Grenzen eine Bestimmung des Kaskadenvolumens und lokaler Defektkonzentrationen. Dabei sind die Zellen Würfel einer festgelegten Kantenlänge. Jeder Defekt wird dann der entsprechenden Zelle zugeordnet, und in jeder Zelle werden separat Defektyp und Clusterzugehörigkeit registriert.

Die Verwaltung der Volumenzellen und der Eintrag von Defekten erfolgt über eine Hashroutine, analog der Kaskadenverwaltung in MARLOWE. Sei  $(x_1, x_2, x_3)$  der kartesische Ort des betrachteten Defekts,  $l$  die Kantenlänge einer Volumenzelle und  $n^3$  die maximale Anzahl aller Volumenzellen. Dann berechnet sich die Hashadresse  $m$  des Defekts gemäß

$$m = ([x_1 / l] \bmod n) + n([x_2 / l] \bmod n) + n^2([x_3 / l] \bmod n) \quad (125)$$

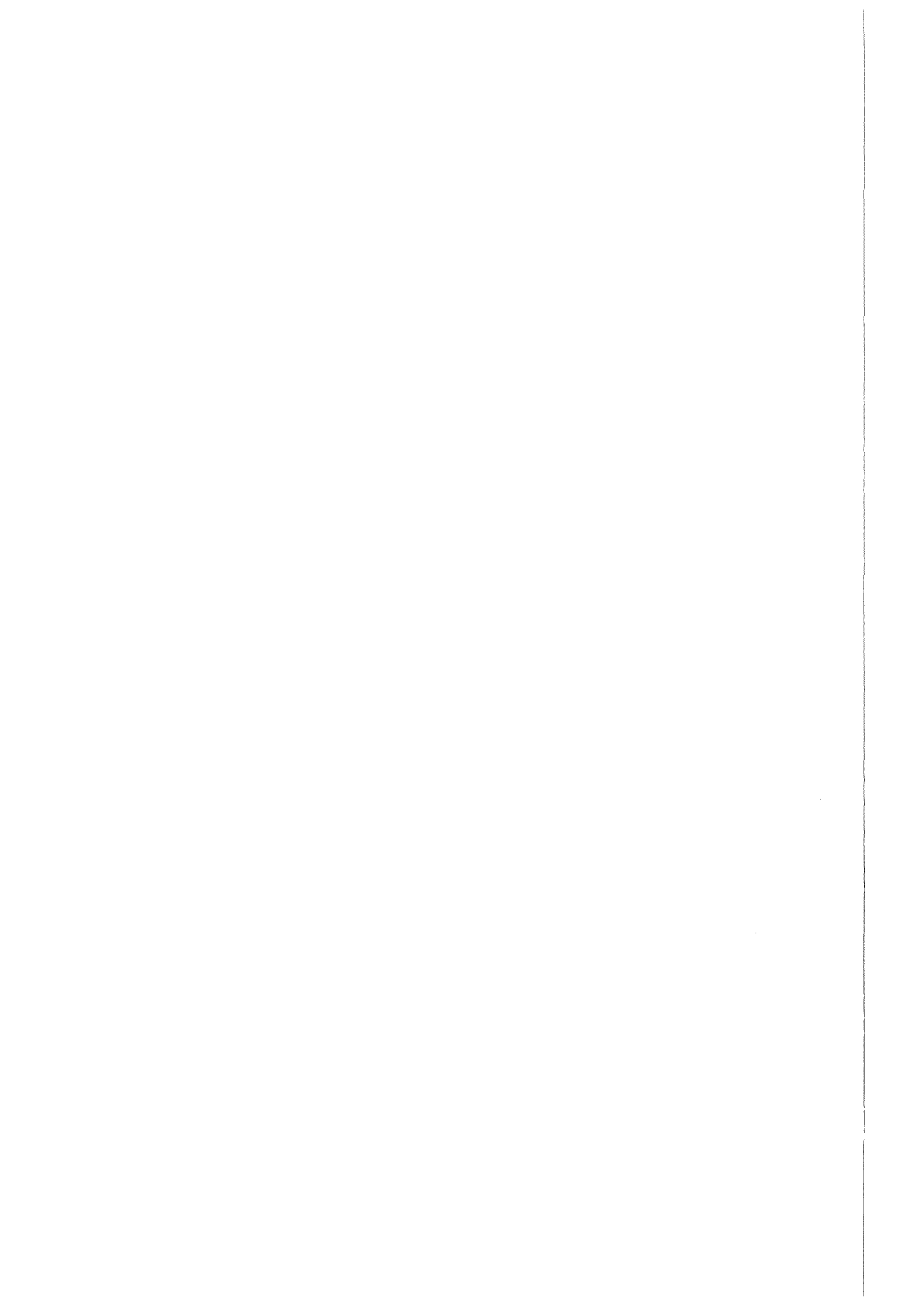
$[x_i / l]$  bezeichnet dabei den ganzzahligen Teil des Quotienten  $x_i / l$ , mod die modulo-Funktion (ganzzahliger Rest).

Ist die Hashadresse schon belegt, so wird geprüft, ob die Koordinaten  $(x_1, x_2, x_3)$  innerhalb der ausgewiesenen Zelle liegen. In diesem Fall wird der Defekt in dieser Zelle vermerkt. Liegt der Defekt jedoch außerhalb, so wiederholt man diesen Test für die in der Hashtabelle folgenden belegten Volumina, bis eventuell eine unbelegte Adresse erreicht wird. Dann wird eine neue Zelle eingerichtet, deren Koordinaten der Zellenmitte gespeichert werden.

Je größer  $n$  gewählt ist, um so seltener werden mehrfache Zuweisungen derselben Hashadresse. Dann ist die Identifizierung einer Zelle praktisch unabhängig von der Belegung der Has-

htabelle. Da die Hasheinträge selbst Zeiger auf Zellendaten sind, können diese einfach und schnell ausgelesen werden. Aus der Anzahl der beteiligten Zellen läßt sich dann ein approximatives Kaskadenvolumen bestimmen. Doch hängt das Resultat entscheidend von der vorgegebenen Kantenlänge  $l$  ab. Insofern beschreiben kleine Zellen besser die lokale Kaskadenmorphologie, große dagegen die Grobstrukturen. Der statistische Fehler ist dann im ersten Fall ein Maß für die Streuung der Defektanzahl, im zweiten Fall für die Ähnlichkeit von Grobstrukturen.

Eine Bemerkung soll abschließend bezüglich der verwendeten Längen gemacht werden, die die Defekt- und Clusteridentifizierung wesentlich bestimmen. Über den Rekombinationsradius wird primär die resultierende Anzahl stabiler Defekte gesteuert. Dieser kann vor einer Identifizierung von Clustern in mäßigen Grenzen variiert werden, wobei berücksichtigt wird, daß eigentliche Rekombinationen zur Defektauflösung, uneigentliche zu Fehlordnungen führen. Die Clusterlänge  $r_{\max}$  bestimmt, was ein Cluster ist oder nicht. Eine große Clusterlänge fördert die Clusterbildung, während eine entsprechend kleine Cluster trennt und vermehrt Einzeldefekte produziert. Maximale Clusterlänge ist der Rekombinationsradius, so daß die Identifizierungsroutine auf bestehende Nachbarnlisten zurückgreifen kann.



## 5 KASKADENSIMULATIONEN

Die in der (d,t)-Fusion erzeugte Energie von 17,6 MeV pro Ionenpaar wird zu etwa 80 % auf Neutronen übertragen, die praktisch ohne Wechselwirkung das Plasma verlassen und in die umgebenden Strukturen innerhalb des Vakuumgefäßes vordringen können. Je nach Auslegung des Tokamaks fällt dem Blanket zwischen der ersten Wand und dem Vakuumgefäß eine entscheidende Funktion zu hinsichtlich der Energiegewinnung und der Abschirmung der außenliegenden Komponenten, insbesondere der supraleitenden Magnete. Zusätzlich muß ein reaktorrelevantes Brutblanket den für das Plasma benötigten Brennstoff Tritium in ausreichendem Maße durch geeignete Kernreaktionen erzeugen, eventuell bis zu einer Selbstversorgung des Tokamaks. Das Brutvermögen eines Blanketkonzepts wird über die Rate der effektiv erzeugten Tritiumatome pro Quellneutron (Tritium Breeding Ratio, TBR) beschrieben. Eine TBR von 1 bedeutet dann eine nominelle Selbstversorgung, sofern 100 % des im Blanket erzeugten Tritiums über Spülung und Extraktion wieder in die Plasmakammer transportiert werden kann. Bevorzugtes Brutelement ist Lithium, dessen Isotope  $Li^6$  und  $Li^7$  gemäß



die Tritiumversorgung übernehmen können. Die erste Reaktion weist dabei einen  $1/\nu$ -Verlauf der Anregungsfunktion auf mit einer Resonanz um 0,25 MeV. Die zweite Reaktion hat zwar nominell den Vorteil, daß ein weiteres Neutron erzeugt wird, das wiederum eine tritiumproduzierende Kernreaktion eingehen kann, andererseits ist die effektive Reaktionsschwelle mit 3,5 MeV sehr hoch. Zum effektiven Brüten des Tritiums ist insofern eine starke Moderation der 14 MeV-Neutronen wünschenswert. Neben dem lithiumhaltigen Brutmaterial wird ein neutronenmultiplizierender Stoff benötigt, der parasitäre Neutronenverluste ausgleichen kann. Weiterhin besteht das Blanket aus Kühlmittel für die Abfuhr der erzeugten Wärme, Strukturmaterialien für die mechanische und thermohydraulische Stabilität, sowie weiteren Abschirmmaterialien.

### 5.1 *Konzeption und Materialkonfiguration des Blankets eines Fusionsreaktors*

Gegenwärtig verfolgte Blanketkonzepte lassen sich prinzipiell in zwei Linien aufgliedern. In Flüssigmetallblankets wird das Brutmaterial (Lithium oder eutektisches Lithium-Blei) in flüssigem Aggregatzustand durch das Blanket gepumpt. In Feststoffblankets liegt Lithium in keramischen Verbindungen vor. Beiden Varianten gemeinsam sind die funktionalen Anforderungen und systembedingten Belastungen. Aufgrund der konzeptionellen Unterschiede weisen beide Entwurfslinien jedoch verschiedene kritische Aspekte auf. Während im Flüssigmetallblanket vor allem die Magneto-Hydrodynamik des elektrisch leitenden umgewälzten Brut-



metalls im Vordergrund steht, muß im Feststoffblanket vorrangig das Problem der Tritiumfreisetzung aus der Brutkeramik behandelt werden. Auch bezüglich der durch Neutronen verursachten Gitterschäden muß, da diese naturgemäß Festkörpereffekte darstellen, zwischen beiden Blanketvarianten differenziert werden. Während im Flüssigmetallblanket lediglich Strukturmaterialien und isolierende Beschichtungen der Brutkanäle betroffen sind, können im Feststoffblanket auch Brutkeramik und Neutronenmultiplifier durch die intensive Gitterschädigung weitreichende Materialveränderungen erfahren.

Mögliche, in Betracht gezogene Brutkeramiken umfassen die Lithiumoxide  $\text{Li}_2\text{O}$ ,  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ ,  $\text{LiAlO}_2$ ,  $\text{LiZrO}_3$  und  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ . Dabei ist das Lithiumorthosilikat  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  als Referenzmaterial für das BOT-Feststoffblanket für DEMO [101] vorgesehen.  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  ist aufgrund seiner hohen Lithiumdichte (ca.  $0,55 \text{ g/cm}^3$ ) und seiner günstigen Tritiumbeweglichkeit attraktiv. Zudem ist seine Schmelztemperatur mit  $1255^\circ\text{C}$  sehr hoch. Als Neutronenmultiplifier können Blei und Beryllium zum Einsatz kommen. Be zeichnet sich dabei aufgrund seiner vorteilhaften mechanischen Eigenschaften (hohe Wärmeleitfähigkeit, hohe Schmelztemperatur von  $1283^\circ\text{C}$ ), seiner chemischen Stabilität und Verträglichkeit und seines überaus guten Multiplikationsvermögens aus. Dieses beruht im wesentlichen auf der niedrigen  $(n,2n)$ -Reaktionsschwelle von effektiv  $1,75 \text{ MeV}$ , dem über weite Energiebereiche beträchtlichen  $(n,2n)$ -Wirkungsquerschnitt von einigen hundert Millibarn und seinem relativ geringen Absorptionsvermögen.

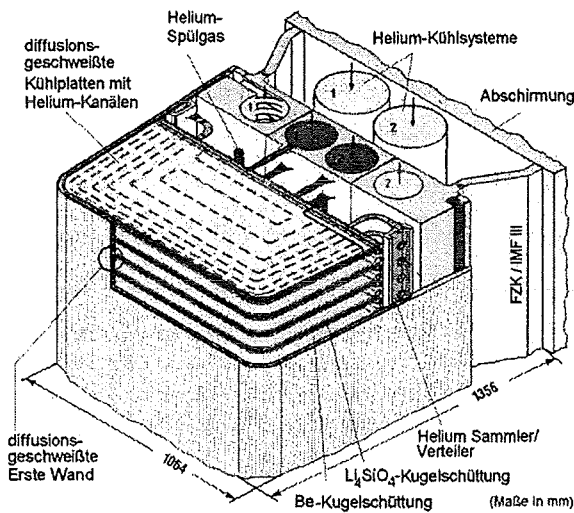


ABB. 5.1: Querschnitt durch das HCPB-DEMO-Blanket

Brutmaterial und Beryllium werden im HCPB-Konzept (Helium Cooled Pebble Bed, [102], ABB. 5.1) als unterschiedlich hohe Kugelschüttungen abwechselnd in das Blanketgefäß eingebracht. Der Durchmesser der  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ -Kügelchen beträgt etwa  $0,3$  bis  $0,6 \text{ mm}$ , die der Be-Kügelchen zwischen  $0,08$  und  $0,18 \text{ mm}$  bzw.  $1,5$  und  $2,3 \text{ mm}$ . Die Kugelschüttungen reduzieren thermische Spannungen, garantieren eine schnelle Tritiumfreisetzung und sorgen zudem für eine optimale Ausnutzung des Blanketvolumens. Zwischen den einzelnen Schüttungen liegen horizontale Kühlplatten mit Kanälen für das unter Hochdruck einströmende Helium.

Eine thermomechanische Analyse (vgl. [101]) zeigt, daß damit die Temperatur im  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  bei ca.  $350^\circ\text{C}$  bis  $907^\circ\text{C}$  liegt, im Be bei maximal  $637^\circ\text{C}$  (bei Betriebsbeginn) bzw.  $515^\circ\text{C}$  (nach einer Standzeit von 20.000 Betriebsstunden, Li-Abbrand 7,25 at%).

## 5.2 Targetmodellierung

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit sollen, wie bereits erläutert, nicht nur Kaskaden in reinen Phasen simuliert werden, sondern auch typische gefügespezifische Konstellationen. Dabei handelt es sich um Korngrenzen, Fremdphaseneinschlüsse, Hohlräume und Gasblasen. Insofern sollten für Realstrukturen der zu untersuchenden Materialien Aussagen über das Schädigungsverhalten, vor allem in Relation zum reinen, idealen Material, getroffen werden.

Die zu diesem Zweck erweiterte Layermodellierung erlaubt es nun, Strukturen und Gefüge in einer quaderförmigen Geometrie zu beschreiben. Deren Dimensionen sind sowohl den beobachteten und vermessenen Gefügebildern anzupassen als auch den relevanten Größenordnungen für eine Stoßkaskadensimulation im Rahmen der BCA. Eine typische Größe ist darin die Reichweite des primären Teilchens (als Maß für die Größe einzelner Kaskaden), bzw. die maximale Reichweite aller zu simulierenden Projektile. Im Falle der hier zu untersuchenden fusionsbedingten Neutronenbestrahlung mit leichten Rückstoßkernen liegt man damit im Bereich einiger Mikrometer. Hohlräume können wegen der dort verschwindenden Abbremsung der Projektile auch deutlich größer sein.

Die modellierten Gefügestrukturen sollen aber nicht allein auf fabrikationsneue, eventuell vorbehandelte Materialien beschränkt bleiben, sondern auch strahlungsinduzierte Mikrostrukturen einschließen. Dies kann den dynamischen Effekt einer Langzeitbestrahlung verdeutlichen, indem die sich zeitlich ändernden Strukturen Einfluß auf die Kaskadenentwicklung im Fortgang der Bestrahlung haben.

### 5.2.1 Beryllium

Das leichte Erdalkalimetall Beryllium ( $Z = 4$ ,  $M = 9$ ) besitzt eine Dichte von  $1,80 \text{ g/cm}^3$  und liegt in einer hcp-Struktur vor (Raumgruppe  $P6_3/mmc$ ). Zwei Atome besetzen die Positionen  $2c$  ( $(\frac{1}{3}, \frac{2}{3}, \frac{1}{4}), (\frac{2}{3}, \frac{1}{3}, \frac{3}{4})$ ) innerhalb der Elementarzelle (EZ), deren Gitterkonstanten sehr gut bestimmt worden sind:

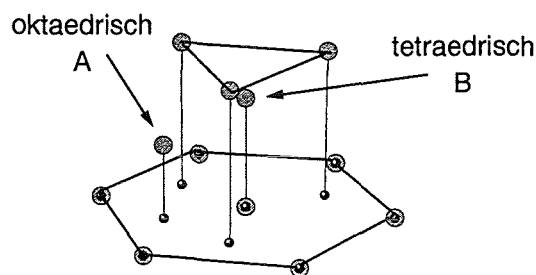
$$a, b = 0,22856 \text{ nm}, c = 0,35832 \text{ nm}, c/a = 1,5677 \text{ [103]}$$

Beryllium weist also von allen hcp-Metallen das kleinste  $c/a$ -Verhältnis auf. Ursache hierfür ist die besondere elektronische Struktur des Berylliums, die zu einem großen Elektronenüberlapp in der Basalebene und einer Ausdünnung in  $c$ -Richtung führt, was durch Ausgleich

der Gitterlängen kompensiert wird. Gleichzeitig hat dies Auswirkungen auf Bindungsstärke und -charakter innerhalb bzw. zwischen Basalebene(n) (s.u.).

Innerhalb einer EZ mit einem Volumen von  $0,0162 \text{ nm}^3$  liegen zwei Be-Atome, deren Abstand  $0,223 \text{ nm}$  beträgt, etwas weniger als zwischen Be-Atomen in der Basalebene ( $0,229 \text{ nm}$ ). Innerhalb des hexagonalen Gitters sind mehrere Positionen für Zwischengitteratome zugänglich. Jedoch sind davon nur zwei energetisch bevorzugt, deren Existenz z.B. in Implantationsversuchen nachgewiesen werden können (vgl. [104, 105]). Es handelt sich dabei zum einen um das Zentrum eines regelmäßigen Oktaeders, das zwischen zwei Basalebene(n) auf einem offenen  $c$ -Kanal sitzt (Punkt A). Der andere beobachtete Zwischengitterplatz liegt tetraedrisch (Punkt B, s. **ABB. 5.2**). Bezüglich den Standardpositionen  $(\frac{1}{3}, \frac{2}{3}, \frac{1}{4}), (\frac{2}{3}, \frac{1}{3}, \frac{3}{4})$  haben diese Gitterplätze die Koordinaten

$$\text{A: } 2a, (0,0,0), (0,0,\frac{1}{2}) \quad \text{B: } 4f, (\frac{1}{3}, \frac{2}{3}, \frac{5}{8}), (\frac{2}{3}, \frac{1}{3}, \frac{1}{8}), (\frac{2}{3}, \frac{1}{3}, \frac{3}{8}), (\frac{1}{3}, \frac{2}{3}, \frac{7}{8})$$



**ABB. 5.2:** hcp-Gitter mit energetisch bevorzugten Zwischengitterpositionen.

Die Gitterkonstanten bei  $637^\circ\text{C}$  (maximale Be-Temperatur im Blanket) wurden durch Interpolation von Literaturdaten ermittelt:

$$a,b=0,2311 \text{ nm}, c=0,3615 \text{ nm}, c/a=1,564 [103]$$

Die EZ hat mit diesen Werten ein Volumen von  $0,01672 \text{ nm}^3$ , d.h.  $3,1 \%$  mehr als bei Raumtemperatur.

In der chemischen Analyse von Be-Kügelchen (etwa  $2 \text{ mm}$  Durchmesser) der Firma Brush-Wellman zeigen sich eine Vielzahl von Verunreinigungselementen mit Massenanteilen bis zu  $0,2 \text{ wt}\%$  [106]. Für eine Kaskadensimulation spielen jedoch Verunreinigungen eine relativ kleine Rolle, sofern ihre Atomdichten nicht signifikant sind, da die Partizipation innerhalb einer Kaskade in etwa proportional der Atomhäufigkeit ist. Aus diesem Grunde wird nur die Hauptverunreinigung O mit einer typischen Konzentration von etwa  $0,2 \text{ wt}\%$  ( $0,11 \text{ at}\%$ ) berücksichtigt.

Beryllium weist naturgemäß metallische Bindungen auf; genauer sind die Bindungen zu den 6 zweitnächsten Nachbarn in der Basalebene rein metallisch, zu den 6 nächsten Nachbarn in

parallelen Ebenen tritt jedoch ein kovalenter Anteil hinzu (etwa 40 %) [103]. Dieser anisotrope Bindungscharakter führt auch zu den markanten Bruch- und Gleiteigenschaften des Berylliums parallel zu Basalebene. Außerdem ist er Ursache des oben erwähnten kleinsten  $c/a$ -Verhältnisses aller hcp-Metalle, wobei die Ladungsverteilung der Leitungsbandelektronen in  $c$ -Richtung räumlich stärker konzentriert ist, also zu einer stärkeren Bindung führt.

Im neuen Bindungsmodell von MARLOWE können nun für die zwei Gitterpositionen der Be-Atome jeweils 12 Bindungen definiert werden, davon die Hälfte mit einem kovalenten Anteil von 40 %. Die Zwischengitterplätze A und B können in einem Nächsten-Nachbarn-Modell integriert werden, d.h. 6 metallische Bindungen für einen ideal oktaedrischen, 4 für einen ideal tetraedrischen Gitterplatz.

Der hohe Schmelzpunkt des Beryllium ist ein klarer Hinweis auf eine beträchtliche kohäsive Energie. Deren experimentelle wie theoretische Werte schwanken in einem Bereich von 3,32 bis 3,99 eV/Atom [103], wobei sich zwei Werte herauskristallisieren: ca. 3,3 eV und ca. 3,6 eV. Dabei soll der erste Wert als Referenz dienen, der zweite wird aber in den Parameteranalysen zu Vergleichszwecken herangezogen. Als Bindungsenergie der beiden in Betracht gezogenen Zwischengitterplätze kann die Aktivierungsenergie für Selbstdiffusion in Be verwendet werden, deren Literaturwerte um 159 kJ/mol (entsprechend 1,7 eV/Atom) liegen [103].

Ergebnisse licht-, elektronen- und röntgenoptischer Analysen zeigen ein sehr differenziertes Gefügebild der Berylliumkugeln. Dabei sind diese, wie zu erwarten, stark abhängig vom Herstellungsprozeß und einer eventuellen Nachbehandlung. Ohne hier in Details zu gehen, können mittlere Korngrößen von etwa 6,6 µm bis 8,4 µm Durchmesser unterschieden werden [107]. Die Porosität kann selbst im unbestrahlten Zustand recht beträchtlich sein und bei unterschiedlicher Porengröße (Hauptteil < 30 µm, bis etwa 300 µm) ca. 2,8 % bis 5 % betragen. Der BeO-Gehalt liegt bei etwa 0,1 bis 0,2 mol%, der  $\text{Be}_{13}\text{Mg}$ -Gehalt bei etwa 0,6 mol%, womit die beiden Hauptfremdphasen genannt sind. Sie sind vorrangig an den Korngrenzen der Be-Kristalle anzutreffen, ihre Durchmesser beträgt in der Regel weniger als 10 µm, jedoch sind auch größere Ausscheidungen anzutreffen (etwa  $15 \times 40 \mu\text{m}^2$  oder  $20 \times 20 \mu\text{m}^2$  im Querschnitt) [106].

### 5.2.2 Lithiumorthosilikat

$\text{Li}_4\text{SiO}_4$  weist bei Raumtemperatur eine Dichte von  $2,39 \text{ g/cm}^3$  auf. Die Elementarzelle ist monoklin mit der Raumgruppe  $P2_1/m$ . Die Kristallstruktur besteht aus isolierten  $[\text{SiO}_4]$ -Tetraedern, die durch Kanten und Ecken mit  $[\text{LiO}_4]$ -,  $[\text{LiO}_5]$ - und  $[\text{LiO}_6]$ -Polyedern verbunden sind. Dabei sind die Lithiumlagen nur partiell besetzt [108]. Die Kristallparameter bei Raumtemperatur sind folgender Tabelle zu entnehmen.

TAB. 5.1: Kristallparameter für  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .

	Völlenkle [108]	Kleykamp [109]	Kleykamp [109] <sup>(1)</sup>
$a$ [nm]	0,514	0,5145	0,5136
$b$ [nm]	0,610	0,6110	0,6094
$c$ [nm]	0,530	0,5296	0,5290
$\gamma$	90,5°	90,27°	90,39°

<sup>(1)</sup> in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  mit 5 wt%  $\text{SiO}_2$  und 2 wt%  $\text{TeO}_2$

Die EZ hat also ein Volumen von ca.  $0,166 \text{ nm}^3$  und eine Atomdichte von 18 Atomen/EZ, entsprechend  $1,08 \cdot 10^{23} \text{ cm}^{-3}$ . Dabei besetzten die verschiedenen Atome folgende Positionen innerhalb der EZ (aus [108]):

TAB. 5.2: Punktlagen und deren Besetzung im  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ -Gitter.

Atom	Position	Besetzungsgrad	x	y	z
Si	2(e)	1	0,6640	0,25	0,3252
O(1)	4(f)	1	0,7737	0,0303	0,1842
O(2)	2(e)	1	0,3526	0,25	0,3178
O(3)	2(e)	1	0,7677	0,25	0,6210
Li(1)	4(f)	2/3	0,165	0,009	0,174
Li(2)	2(e)	1/2	0,398	0,25	0,711
Li(3)	2(e)	1/2	0,164	0,25	0,644
Li(4)	4(f)	1/3	0,398	0,964	0,150
Li(5)	4(f)	1/3	0,048	0,034	0,449
Li(6)	2(e)	1/3	0,057	0,25	0,981

Die Positionen bezeichnen Multiplizität und Wyckoff-Symbol für spezielle und allgemeine Punktlagen, die Koordinatentripel die äquivalenten Punktlagen gemäß den „International Tables for X-Ray Crystallography“ [110]. Aufgrund der fehlenden Zentrierung müssen folglich alle 28 verschiedenen Atompositionen in der Kristallmodellierung verwendet werden.

Als mittlerer Atomabstand Si-O in den  $[\text{SiO}_4]$ -Tetraedern ergibt sich so  $0,1632 \text{ nm}$ , für Li-O je nach Koordination  $0,1975 \text{ nm}$ ,  $0,2099 \text{ nm}$ ,  $0,2247 \text{ nm}$ . Aus röntgenographischen Strukturbestimmungen [108] läßt sich ableiten, daß die Li-Atome außergewöhnlich kurze Abstände aufweisen. Demnach handelt es sich um eine wechselseitige Besetzung von Li-Lagen mit Abständen unter  $0,2 \text{ nm}$ . Dieses Merkmal steht in einer MARLOWE-Simulation nicht zur Verfügung, hier werden stets die Li-Lagen nach ihrer statistischen Besetzung belegt.

Kristallparameter bei höheren Temperaturen können anhand der linearen thermischen Expan-

sion bestimmt werden. Dazu kann im Bereich von  $80^{\circ}\text{C} < T < 900^{\circ}\text{C}$  folgende Formel verwendet werden [111]:

$$LTE(\%) = -4,786 \cdot 10^{-4} + 1,881 \cdot 10^{-3} T + 8,334 \cdot 10^{-7} T^2 \quad (127)$$

Diese Formel beruht auf Messungen mit  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  von 85 % der theoretischen Dichte (TD) mit einer Korngröße von 2  $\mu\text{m}$ .

Tatsächlich tritt bei etwa  $665^{\circ}\text{C}$  eine Modifikation der  $\alpha$ -Phase auf. Die Hochtemperaturphase wurde als reine Verzerrung der bisherigen Struktur identifiziert mit einer effektiven Reduzierung des  $c$ -Parameters bei gleichzeitiger Zunahme von  $a$  und  $c$  [112]. Diese anisotrope thermische Expansion beträgt bei  $900^{\circ}\text{C}$  für  $a$  etwa 2,1 %, für  $b$  3,2 % und für  $c$  1,4%. Im Vergleich dazu erhält man eine  $LTE$  von 2,4 %.

In der chemischen Zusammensetzung von Lithiumorthosilikat findet man neben den Hauptbestandteilen Lithium Li, Sauerstoff O und Silizium Si je nach Fabrikationsprozeß und Analyseverfahren zusätzliche Fremddanteile. Nach den Ausführungen bei Beryllium haben Verunreinigungen geringer Konzentration im Prinzip keinen größeren Einfluß auf die Kaskadenentwicklung. Insofern wird in dieser Arbeit lediglich Kohlenstoff C berücksichtigt, daß in unterschiedlicher Konzentration um etwa 0,1 wt% vorliegt [113].

Die Isotopenzusammensetzung der einzelnen Elemente kann über eine entsprechende mittlere Masse integriert werden. In diesem Zusammenhang muß beachtet werden, daß zum Erreichen einer genügend hohen Tritiumbrutrate  $\text{Li}^6$  gegenüber dem natürlichen Gehalt von 7,5 at% angereichert werden muß. Im aktuellen Blanketkonzept sind 25 at% vorgesehen, so daß die mittlere Masse für  $\text{Li}^6$ - $\text{Li}^7$  6,77 amu beträgt.

Zur Verbesserung der mechanischen Eigenschaften der im BOT-Konzept vorgesehenen  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ -Kügelchen sind Zugaben von  $\text{SiO}_2$  bzw.  $\text{TeO}_2$  vorgesehen. Im einen Fall hat man eine Zusammensetzung von  $\text{Li}_4\text{SiO}_4 + 2 \text{ wt}\% \text{ SiO}_2$ , im anderen Fall  $\text{Li}_4\text{SiO}_4 + 5 \text{ wt}\% \text{ SiO}_2 + 2 \text{ wt}\% \text{ TeO}_2$ . Das System  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ - $\text{SiO}_2$  steht nun aber thermodynamisch nicht im Gleichgewicht, sondern bildet gemäß dem  $\text{Li}_2\text{O}$ - $\text{SiO}_2$ -Phasendiagramm eine Gleichgewichtsphase  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ , Lithiummetasilikat, nach einer Wärmebehandlung bei mindestens  $600^{\circ}\text{C}$ . Beide Komponenten bilden dann ein zweiphasiges Gefüge, wobei das Metasilikat je nach Wärmebehandlung an den Korngrenzen des Orthosilikats oder als intragranulare Ausscheidungen vorliegt [109].

Die Charge mit Zugaben von 5 wt%  $\text{SiO}_2$  und 2 wt%  $\text{TeO}_2$  bildet entsprechend ein Dreiphasengefüge:  $\text{Li}_4(\text{Te})\text{SiO}_4$  mit 1,8 wt%  $\text{TeO}_2$ ,  $\text{Li}_2(\text{Te})\text{SiO}_3$  mit 3,2 wt%  $\text{TeO}_2$  und eine mögliche dritte Phase  $\text{Li}_2\text{TeO}_3$  (monoklin, Schmelzpunkt ca.  $725^{\circ}\text{C}$ ). Der Anteil dieser dritten Phase liegt jedoch bei nur 0,3 wt% und wird im folgenden nicht weiter beachtet. Es ist anzunehmen, daß ein  $\text{Te}^{4+}$ -Ion jeweils 4  $\text{Li}^+$ -Ionen in den Lithiumsilikaten ersetzt und die  $\text{C}^{4+}$ -Verunreinigungen auf Si-Lagen sitzen [109].

Das mit dem Orthosilikat im Gleichgewicht stehende Metasilikat weist eine orthorhombische Struktur der Raumgruppe  $CmC_2$ , auf. Seine Dichte bei Raumtemperatur ist ähnlich der des Orthosilikats und beträgt  $2,53 \text{ g/cm}^3$ . Die Atome bilden  $[\text{SiO}_4]$ -Tetraeder, die in  $[001]$ -Richtung eckenverbundene lange Ketten bilden. Die Li-Atome verbinden solche Ketten und liegen in tetraedrischer Koordination vor  $[114]$ . Die Gitterkonstanten bei Raumtemperatur findet man bei verschiedenen Autoren, einige Werte sind in folgender Tabelle aufgeführt:

**TAB. 5.3:** Kristallparameter für  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ .

	Hesse [114]	Donnay [115]	Kleykamp [109]	Kleykamp [109] <sup>(1)</sup>
$a$ [nm]	0,9392	0,941	0,9396	0,9337
$b$ [nm]	0,5397	0,543	0,5405	0,5429
$c$ [nm]	0,466	0,466	0,4661	0,4643

<sup>(1)</sup> in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  mit 5 wt%  $\text{SiO}_2$  und 2 wt%  $\text{TeO}_2$

Die EZ umfaßt 4 Formeleinheiten bei einem Volumen von ca.  $0,237 \text{ nm}^3$ , dies entspricht einer Atomdichte von  $1,01 \cdot 10^{23} \text{ cm}^{-3}$ . Die Atome sind dabei wie folgt positioniert [114]:

**TAB. 5.4:** Punktlagen und deren Besetzung im  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ -Gitter.

Atom	Position	x	y	z
Li	8(b)	0,1737	0,3449	-0,0024
Si	4(a)	0	0,1703	0,4912
O(1)	8(b)	0,1446	0,3077	0,4108
O(2)	4(a)	0	0,1143	0,8461

Wegen der  $C$ -Zentrierung des Gitters erlaubt die Angabe von 12 Punktlagen die vollständige Definition der EZ im MARLOWE-Targetmodell. Innerhalb der  $[\text{SiO}_4]$ - bzw.  $[\text{LiO}_4]$ -Tetraeder erhält man mittlere Abstände des Zentralatoms zu den Sauerstoffecken von  $0,164 \text{ nm}$  bzw.  $0,200 \text{ nm}$ .

Anders als im Falle von  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  tritt bis zum Schmelzpunkt des  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  bei  $1201^\circ\text{C}$  keine Phasenumwandlung auf. Die thermische Ausdehnung bis  $700^\circ\text{C}$  wurde vermessen und kann gemäß [111]

$$LTE(\%) = -1,124 \cdot 10^{-2} + 1,129 \cdot 10^{-3} T \quad (128)$$

bestimmt werden. Da die thermische Ausdehnung insgesamt sehr klein ist, wurde die Kurve bis zur maximalen Blankettemperatur von ca. 900°C extrapoliert. Dort beträgt *LTE* gerade mal 1,0 %.

Gegenüber reinem  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  findet man also in den mit Siliziumdioxid und Tellurdioxid beaufschlagten Chargen weitere Phasen vor. Gemäß den zitierten Spezifikationen erhält man signifikante Anteile der Metasilikatphase (vgl. TAB. 5.5).

TAB. 5.5: Phasenzusammensetzung von  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  mit Zusätzen von  $\text{SiO}_2$  und  $\text{TeO}_2$ .

Charge	$\text{Li}_4\text{SiO}_4$ bzw. $\text{Li}_4(\text{Te})\text{SiO}_4$		$\text{Li}_2\text{SiO}_3$ bzw. $\text{Li}_2(\text{Te})\text{SiO}_3$		$\text{Li}_2\text{TeO}_3$	
	mol %	wt %	mol %	wt %	mol %	wt %
$\text{Li}_4\text{SiO}_4+2 \text{ wt}\% \text{ SiO}_2$	92,2	94	7,8	6,0	-	-
$\text{Li}_4\text{SiO}_4+5 \text{ wt}\% \text{ SiO}_2+2 \text{ wt}\% \text{ TeO}_2$	84,54	87,80	15,28	11,90	0,18	0,3

Die atomare Zusammensetzung der einzelnen Phasen ist in TAB. 5.6 angegeben. Dabei ist angenommen, daß ein Tellur-Ion jeweils 4 Li-Ionen substituiert und Kohlenstoff je ein Silizium.

TAB. 5.6: Atomare Zusammensetzung wichtiger Li-Silikatphasen [at%].

Phase	Li	Si	O	Te	C
$\text{Li}_4\text{SiO}_4$	44,41	11,10	44,41	-	0,072
$\text{Li}_2\text{SiO}_3$	33,31	16,65	49,96	-	0,072
$\text{Li}_4(\text{Te})\text{SiO}_4$	44,01	11,16	44,62	0,152	0,071
$\text{Li}_2(\text{Te})\text{SiO}_3$	32,39	16,80	50,42	0,307	0,072

Beiden Lithiumsilikaten sind die fast exakten  $[\text{SiO}_4]^{4-}$ -Tetraeder gemeinsam. Sie sind überwiegend kovalent gebunden mit einem ionischen Anteil (gemäß Pauling) von 0,45 an der Si-O-Bindung ( $x_{\text{Si}}=1,90$ ;  $x_{\text{O}}=3,44$ , vgl. Glg. (85)). Die Ladung des Silikatanions ist auf die Sauerstoffecken verteilt. Lithium geht dagegen praktisch nur ionische Verbindungen ein, für die Lithiumsilikate also mit den Sauerstoffionen in den jeweiligen  $[\text{LiO}_x]$ -Polyedern. Der kovalente Bindungsanteil beträgt 0,22 ( $x_{\text{Li}}=0,98$ ).

Im Rahmen des verbesserten Bindungsmodells wurden für die Ionen im Orthosilikat folgende Bindungsstärken und -anteile festgelegt: Si bindet sich kovalent-ionisch an die vier O des Tetraeders mit etwa gleicher Stärke. Kleine Differenzen, bedingt durch leicht unterschiedliche Bindungslängen, werden wegen ihres geringen Effektes von weniger als 10 % nicht beachtet. O bindet sich mit dem zentralen Si in analoger Weise. Die ionischen Brücken zu den  $\text{Li}^+$ -Kationen werden dagegen nur halb so stark gewichtet und ein schwach repulsiver Beitrag (je



5 %) von anderen  $O^{2-}$  in den  $[LiO_x]$ -Polyedern berücksichtigt. Das bedeutet, daß der Verlust einer O-Si-Bindung einem Gesamtbindungsverlust von ca. 60 % entspricht. Statistisch besetzte Gitterlagen werden im lokalen Bindungsmodell nicht herangezogen, damit spielt es auch keine Rolle, wie die Li-Lagen in der Umgebung eines O-Atoms tatsächlich besetzt sind.

Im Falle der Li-Lagen wurden lediglich die ionisch-kovalenten Bindungen innerhalb der  $[LiO_x]$ -Polyeder in äquivalenten Anteilen berücksichtigt. Die benachbarten Li-Gitterplätze haben ebenfalls keinen Einfluß auf die Li-Bindung im Orthosilikatgitter.

Im Metasilikat bilden die Ketten der eckenverbundenen  $[SiO_4]$ -Tetraeder praktisch sehr langgestreckte Anionen, die schwach über  $Li^+$ -Kationen aneinander gebunden sind. Innerhalb der Ketten hat man sehr starke, v.a. kovalente Bindung vorliegen. Die Bindungslängen des Si zu den gemeinsamen O-Atomen ist mit 0,168 nm deutlich länger als zu den brückenbildenden (0,159 nm). Im Vergleich mit herkömmliche Si-O-Einfachbindungen (0,177 nm) bzw. Si=O-Doppelbindungen (0,153 nm) zeigt sich, daß die vorliegenden Bindungen jeweils mehr einfach- bzw. doppelbindenden Charakter haben. Sie werden im MARLOWE-Modell mit 1,3 bzw. 1,8 gewichtet.

Die je zwei Tetraedern gemeinsamen O-Atome weisen kovalent-ionische Bindungen zu den beiden Zentralatomen und je zwei Li-Lagen auf. Wie beim Orthosilikat wird dem schwach repulsiven Einfluß umliegender O-Atome Rechnung getragen, auch für die brückenbildenden O-Atome. Diese weisen eine Bindung zu Si und drei, beinahe gleichlange zu Li auf.

Den Li-Atomen in den  $[LiO_4]$ -Tetraedern wird wegen dessen Regelmäßigkeit jeweils gleichstarke Bindungen zu O zugeordnet. Zusätzlich wird noch ein kleiner Beitrag durch ein weiteres O-Atom im benachbarten Tetraeder integriert.

Wesentlich schwieriger als die Spezifikation der Bindungen und ihrer Beiträge ist die Angabe einer absoluten Bindungsenergie. Nach Kenntnis des Autors liegen dazu keine verlässlichen Angaben vor. Aufgrund des hohen Schmelzpunktes beider Silikate, sowie der äußerst stabilen Silikat-Tetraeder mit nominaler Si-O-Bindungsenergie von 88,2 kcal (3,83 eV) läßt sich zumindest eine halbquantitative Tendenz ablesen. Von allen Konstituenten ist Si am stärksten über die Tetraeder gebunden, O etwa gemäß der Si-O-Bindung abzüglich eines kleinen repulsiven Beitrags benachbarter O-Atome, Li relativ schwach wegen der vergleichsweise großen Li-O-Abstände (um 0,2 nm).

Die folgenden Bindungsenergien wurden als Referenzwerte in den MARLOWE-Simulationen verwendet. Nach den obigen Ausführungen sind diese Werte nur eingeschränkt gültig, doch soll in den Parameteranalysen der Einfluß der Bindungsenergien auf die Resultate der BCA-Simulation untersucht werden.

TAB. 5.7: Bindungsenergien der Konstituenten in Li-Silikaten (für Marlowe-Simulationen).

Si	O	Li
7 eV	2 eV	1,5 eV

Für die Orthosilikat-Kügelchen, die im BOT-Konzept des FZK vorgesehen sind, liegen umfassende Analysen sowohl des Anlieferungszustandes als auch bestrahlter Proben vor. Wesentliche Aussagen über die Materialstruktur lassen sich bereits aus lichtoptischen Gefügebildern ableiten, eventuell in Verbindung mit sekundärelektronischen Bildern oder röntgenspektroskopischen Mikroanalysen. Insbesondere kann man abhängig von der Vorbehandlung der Kügelchen durchaus deutlich unterschiedliche Gefügebilder ausmachen.

Gemeinsam ist in allen Fällen die Korngröße, deren mittlerer Durchmesser bei etwa 10  $\mu\text{m}$  bis 30  $\mu\text{m}$  liegt und teilweise langgestreckte Querschnitte aufweisen (typisch  $5 \times 15 \mu\text{m}^2$ ). Die theoretische Dichte beträgt etwa 97 bis 98 %.

In den bei 300°C wärmebehandelten Kügelchen findet man die Metasilikatausscheidungen an den Korngrenzen der Orthosilikatkörner. Ihre Ausdehnung liegt bei etwa 1  $\mu\text{m}$  bis 5  $\mu\text{m}$  Dicke, z.T. in langen Bändern entlang der Korngrenzen. Wärmebehandlung bei 900°C bringt demgegenüber eine über die Kügelchen inhomogene Feinverteilung (etwa  $1 \times 5 \mu\text{m}^2$  im Querschnitt) der Metasilikatphase. Die tellurreiche Phase, wahrscheinlich  $\text{Li}_2\text{TeO}_3$ , liegt, wie bereits oben erläutert, in sehr kleiner Gesamtkonzentration vor und bildet kleine kompakte, intragranulare Ausscheidungen von ca. 1  $\mu\text{m}$  Durchmesser.

Neben den Fremdphasen findet man noch verschiedene Formen und Größen von Poren bzw. Lunkern. Charakteristisch sind z.B. Mikrolunker mit Durchmessern unter 3  $\mu\text{m}$  oder längliche Mikrohohlräume (Breite < 1  $\mu\text{m}$ , Länge typisch 20 bis 40  $\mu\text{m}$ ).

### 5.2.3 Primäre Rückstoßkerne

Für die Berechnung der neutroneninduzierten Verlagerungsschädigung in (d,t)-Fusionsreaktorblankets müssen wenigstens im Prinzip alle primär erzeugten Kerne (PKA, primary knock-on atom) herangezogen werden. Im Energiebereich bis 14 MeV Neutronenenergie treten nun nicht nur elastische Streuung, sondern auch eine Vielzahl unelastischer Kernreaktionen auf. Deren Reaktionsprodukte sind z.T. sehr unterschiedliche Isotope, die gerade bei der Bestrahlung leichter Materialien von großer Bedeutung sein können.

Wie in Kap. 6.2 näher ausgeführt wird, ergeben sich die in TAB. 5.8 aufgelisteten PKA's in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  und  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ . Die Energiegrenzen sind durch die vorgegebene Gruppenstruktur der PKA-Spektren entsprechend gerundet. Rückstoßkerne aus den angegebenen Verunreinigungen werden in den Schädigungsrechnungen im allgemeinen jedoch nicht benötigt, bis auf Tellur, das wegen seiner großen Masse (etwa 128 amu) bei Energien bis ca. 500 keV einen

überproportionalen Einfluß auf das Gesamtergebn hat. Im Beryllium findet man entsprechende Angaben für Atome bzw. PKA's in TAB. 5.9.

**TAB. 5.8:** Primary knock-on atoms (PKA's) in Li-Silikaten: Matrixatome, Transmutationsprodukte und Verunreinigungen.

Atom	Masse [amu]	Kernladung	Energiegrenzen
Li <sup>6</sup>	6,015	3	0 ... 7,4 MeV
Li <sup>7</sup>	7,016	3	0 ... 6,7 MeV
He <sup>4</sup>	4,0026	2	1,4 ... 15 MeV
O <sup>16</sup>	15,999	8	0 ... 3,7 MeV
Si <sup>28</sup>	28,086	14	0 ... 2,3 MeV
Al <sup>28</sup>	27,982	13	9,2 keV ... 1,8 MeV
Mg <sup>25</sup>	24,986	12	30 eV ... 4,1 MeV
Te <sup>128</sup>	127,6	52	0 ... 500 keV
C <sup>12</sup>	12,011	6	-

**TAB. 5.9:** Primary knock-on atoms (PKA's) in Beryllium: vgl. TAB. 5.8

Atom	Masse [amu]	Kernladung	Energiegrenzen
Be <sup>9</sup>	9,012	4	0 ... 5,5 MeV
He <sup>4</sup>	4,0026	2	170 eV ... 13 MeV
He <sup>6</sup>	6,019	4	21 eV ... 11 MeV
O <sup>16</sup>	15,999	8	-

Die im weiteren angegebenen Daten für die in den MARLOWE-Simulationen verwendeten Atome stellen Referenzdaten dar, d.h. sie entsprechen den verfügbaren Literaturdaten in Verbindung mit optimal gewählten Modellparametern. Bei Bedarf, und um die Sensitivität der Ergebnisse zu untersuchen, können diese jedoch modifiziert werden. Solche Änderungen sind in den folgenden Kapiteln klar bezeichnet.

Verwendet wird für alle Atom-Target-Kombinationen im hochenergetisch, repulsiven Teil des interatomaren Potentials das AMLJ-Potential mit den Parametern für den homonuklearen Fall. Heteronukleare Potentiale werden nach den Kombinationsregel abgeleitet.

**TAB. 5.10:** Physikalische Parameter für Atome in Be und Li-Silikaten: homonukleare Parameter des AMLJ-Potentials  $A$ ,  $B$  und  $C$ ; Niederenergiekorrektur  $c_k$  und Ionisierungspotential  $I$ .

Atom	$A$ [ $\text{\AA}^{-1}$ ]	$B$ [ $\text{\AA}^{-3/2}$ ]	$C$ [ $\text{\AA}^{-2}$ ]	$c_k$	$I$ [eV]
Li	3,529	2,382	0,7308	0,67	47
O	4,501	3,286	0,9656	0,97	99

Atom	$A [\text{\AA}^{-1}]$	$B [\text{\AA}^{-3/2}]$	$C [\text{\AA}^{-2}]$	$c_k$	$I [\text{eV}]$
Si	4,474	2,485	0,5445	1,38	159
Mg	4,067	1,995	0,4076	1,29	149
Te	5,974	3,426	0,7081	2,03	419,3
C	4,096	2,924	0,8602	1,30	79
Be	3,165	1,624	0,4159	0,97	63
He	3,091	2,312	0,8656	0,67	42

Die Parameter für den inelastischen Energieverlust werden gemäß Oen-Robinson und Bethe-Bloch berechnet. Als materialabhängige Daten gehen der Niederenergiekorrekturfaktor  $c_k$  und das mittlere Ionisierungspotential  $I$  ein.

Die beteiligten Phasen weisen einen nichtlokalen Energieverlust gemäß der modifizierten Bragg-Regel auf. In folgender Tabelle sind unkorrigierte Bragg-Ionisierungspotentiale, Compound-Werte nach der modifizierten Bragg-Regel und Korrekturparameter für die wichtigsten Ionen in der semiempirischen Anpassung aufgeführt.

**TAB. 5.11:** Compound-Parameter und Korrekturen des elektronischen Energieverlustes für wichtige PKA's im Feststoffblanket.

Phase	$I_{\text{Bragg}} [\text{eV}]$	$I_{\text{Compound}} [\text{eV}]$	Ion	$f_a [\text{amu/eV}]$	$f_b$	$f_c [\text{eV/nm}]$	$f_d$
$\text{Li}_4\text{SiO}_4$	95,14	104,36	Li	$1,7 \cdot 10^{-7}$	0,89	-24,3	0,79
			Si	$2,0 \cdot 10^{-7}$	0,89	-85,8	0,74
			O	$1,9 \cdot 10^{-7}$	0,89	-57,3	0,76
$\text{Li}_4(\text{Te})\text{SiO}_4$	96,89	106,31	Li	$1,7 \cdot 10^{-7}$	0,89	-24,4	0,79
			Si	$2,0 \cdot 10^{-7}$	0,89	-86,5	0,74
			O	$1,9 \cdot 10^{-7}$	0,89	-57,6	0,76
$\text{Li}_2\text{SiO}_3$	103,99	114,10	Li	$1,7 \cdot 10^{-7}$	0,89	-25,7	0,79
			Si	$1,9 \cdot 10^{-7}$	0,89	-92,9	0,74
			O	$1,9 \cdot 10^{-7}$	0,89	-61,3	0,76
$\text{Li}_2(\text{Te})\text{SiO}_3$	104,25	114,37	Li	$1,7 \cdot 10^{-7}$	0,89	-26,0	0,79
			Si	$2,0 \cdot 10^{-7}$	0,89	-94,3	0,74
			O	$1,9 \cdot 10^{-7}$	0,89	-62,1	0,75
BeO	89,79	92,83	Be	$6,4 \cdot 10^{-8}$	0,96	-14,4	0,92
			O	$8,2 \cdot 10^{-8}$	0,96	-30,4	0,90

### 5.3 Parameteranalyse: physikalische Eingangsgrößen

Die in das neue MARLOWE-Modell eingebrachten Modifikationen und Verbesserungen haben sowohl separat betrachtet als auch im Verbund wesentlichen Einfluß auf die Simulationsergebnisse. Bevor deshalb die für die Schädigungsrechnungen relevanten Referenzdaten in den Simulationen verwendet werden, sollen zunächst die Sensitivität der BCA-Ergebnisse auf Variationen der Eingabeparameter untersucht werden. Dabei werden für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Materialien Be und  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  teilweise sehr ähnliche Analysen nötig sein, aber auch jeweils spezifische Fragestellungen. Das Hauptaugenmerk in der Bewertung der Parameteranalysen liegt auf den schädigungsrelevanten Größen Schädigungsenergie  $E_{dam}$ , Anzahl der Zwischengitterdefekte  $N_d$  und der Gitterfehlordnungen  $N_p$ , wobei die Ursachen eventueller Differenzen aufgezeigt werden sollen.<sup>1</sup>

In einem ersten Abschnitt werden Simulationen mit verschiedenen physikalischen Modellen und variierenden Parametern verglichen. Zunächst interessieren die durch das AMLJ-Potential und seine Parametrisierung bedingten Änderungen (für Be) und der Einfluß abgeschirmter Coulomb-Potentiale mit unterschiedlicher Stärke (für  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ ). Für den inelastischen Energieverlust soll der Einfluß des Hochenergieanteils, die Aufteilung in lokale und nichtlokale Beiträge, der Effekt der Niederenergiekorrektur ( $Z_2$ -Oszillationen) und schließlich der modifizierten Bragg-Regel begutachtet werden. Verschiedene Spezifikationen innerhalb des lokalen Bindungsmodells werden getestet, ebenso wie unterschiedliche Bindungsenergien.

Der zweite Block von Parameteranalysen widmet sich zwei wesentlichen Eingriffen in das Kinematikmodell: zum einen die inelastischen Stoßintegrale (mit dem modifizierten Zeitintegral) und zum anderen der Cutoff des Coulomb-Potentials bei der Berechnung des Zeitintegrals.

Die im abschließenden dritten Block untersuchten Parameter sind modellspezifisch, d.h. sie sind typisch für die BCA im allgemeinen und ihre Implementierung in MARLOWE im speziellen. Dabei geht es aber nicht um eine vollständige und umfassende Analyse der BCA, da dies die Variation einer großen Palette an sehr vielschichtigen Modellparametern erfordern würde. Vielmehr konzentriert sich die unternommene Analyse auf einige charakteristische Größen, die im Zusammenhang mit den Erweiterungen und Korrekturen zum Kristallitmodell und der Implementierung langreichweitiger Coulomb-Potentiale von Bedeutung sind. Demzufolge liegt das Augenmerk auf Variationen im maximalen Stoßparameter, im Kristallsuchradius und im Energie-Cutoff.

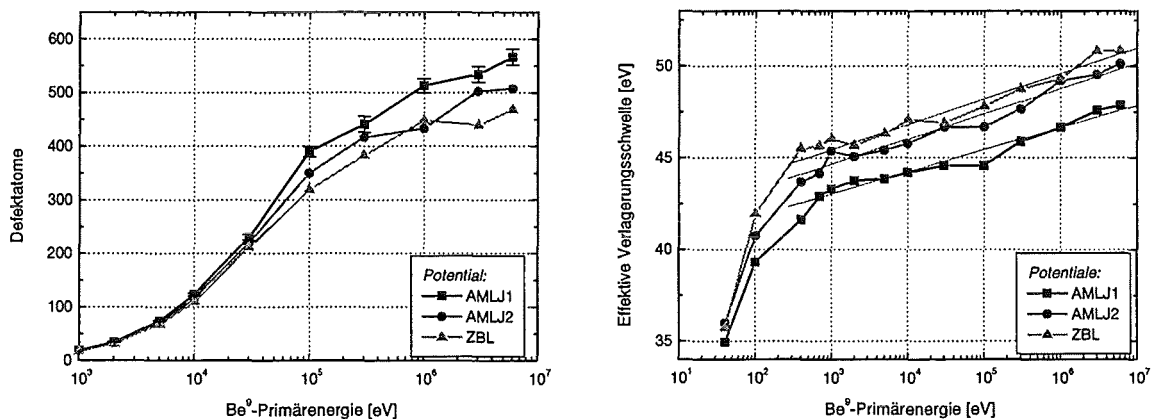
---

<sup>1</sup> Einige beispielhafte Kaskadenstrukturen (für die Referenzsimulationen aus 5.6) findet man im Anhang (Kapitel 8).

### 5.3.1 Potentiale: Beryllium

Für Beryllium wurden für drei verschiedene interatomare Potentiale Kaskaden über alle relevanten Energien simuliert. Diese Potentiale sind das AMLJ-Potential mit homonuklearen Parametern (AMLJ1) und zum Vergleich mit gemittelten Parametern (AMLJ2) und das ZBL-Potential. Gegenüber dem Referenzmodell ist hier eine feste Bindungsenergie von 3,3 eV verwendet.

Zunächst sollen die Ergebnisse für  $\text{Be}^9$ -Projektile diskutiert werden. Dabei zeigt sich, daß über den gesamten Primärenergiebereich für AMLJ1 deutlich mehr Defekte erzielt werden als für AMLJ2 und ZBL (s. **ABB. 5.3**, links). Die relativen Änderungen bezüglich ZBL variieren relativ stark mit der Energie und betragen für AMLJ1 etwa 7 % bis 22 % und für AMLJ2 etwa 5 % bis 10 %, wobei die Differenz mit der Energie anwächst.



**ABB. 5.3:** Defekterzeugung durch  $\text{Be}^9$ -PKA's in Beryllium für verschiedene abgeschirmte Potentiale: Defektatome (links), typische statistische Fehler sind für AMLJ1 angegeben; effektive Verlagerungsschwelle (rechts), Geraden zeigen Trend oberhalb 1 keV.

Im NRT-Modell sind Defektanzahl und Schädigungsenergie proportional, mit einem relativen Faktor, der direkt mit der Schwellenenergie  $E_d$  verknüpft ist ( $N_d = (k / 2E_d) \cdot E_{dam}$ , vgl. S. 6). Bildet man also das Verhältnis  $Q = E_{dam} / N_d$  (effektive Schwelle), so erhält man im NRT-Modell eine Konstante unabhängig von der Projektilenergie. Im Gegensatz dazu zeigen die Simulationsresultate eine merkliche, wenn auch relativ schwache Energieabhängigkeit von  $Q$ , die unabhängig ist von den vorgegebenen Potentialen (vgl. **ABB. 5.3**, rechts).  $Q$  steigt zunächst stark an unterhalb etwa 1 keV, um dann über den gesamten Energiebereich schwach mit etwa 1,2 eV/Dekade anzuwachsen. Absolut verhält sich  $Q$  entgegengesetzt zu der Defektzahl, d.h. für AMLJ1 ist  $Q$  am kleinsten. Im Mittel beträgt die Differenz zu ZBL -5,7 % für AMLJ1 und -1,8 % für AMLJ2, die absoluten Werte (gemittelt oberhalb 1 keV) betragen 45,5 eV, 47,4 eV bzw. 48,2 eV für AMLJ1, AMLJ2 bzw. ZBL.

In Analogie zum NRT-Modell wurde eine Korrelation zwischen Defektanzahl  $N_d$  und Schädigungsenergie  $E_{dam}$  gemäß

$$N_d = a \cdot E_{dam}^b \quad (129)$$

an die Simulationsresultate gefittet ( $E_{dam}$  in eV). Da die effektive Schwelle  $Q$  leicht mit der Energie ansteigt, erwartet man einen Exponenten  $b$ , der kleiner ist als 1 (NRT-Modell). Tatsächlich findet man bei einer ausgesprochen guten Korrelation ( $\chi^2 \approx 0,08$ ) folgende Parameter für die untersuchten Potentiale:

**TAB. 5.12:** Fitparameter für Korrelation zwischen Defektzahl  $N_d$  und Schädigungsenergie  $E_{dam}$  ( $\text{Be}^9$  in  $\text{Be}^9$ ): Typische Fehler sind für AMLJ1 angegeben.

Potential	$a$	$b$
AMLJ1	$0,0306 \pm 0,002$	$0,965 \pm 0,008$
AMLJ2	0,0302	0,961
ZBL	0,0292	0,963

Obwohl die Absolutwerte von Schädigungsenergie und Defektanzahl deutlich verschieden sind, findet man für alle Potentiale recht ähnliche und vergleichbare Kaskadenresultate. Dies trifft z.B. auch für die Kenngrößen der Primärteilchen, nämlich mittlere radiale Reichweite und mittlere Abbremszeit, zu. Die Differenzen zwischen den interatomaren Potentialen spiegeln sich auch in den Parametern für den lokalen inelastischen Energieverlust wieder. Die Abschirmlänge des Potentials, angepaßt an den maximalen Stoßparameter, bestimmt die exponentielle Abhängigkeit des Energieverlustes mit dem minimalen Stoßabstand. Wegen des konvexen Verlaufs von AMLJ1 (und weniger stark auch für AMLJ2) nimmt der lokale Energieverlust relativ schnell ab mit steigendem Abstand. Entsprechend steht mehr Energie für die Rückstoßkerne zur Verfügung, so daß die Schädigungsenergie größer ist als für ZBL. Diese verteilt sich auf mehr Atome, so daß im wesentlichen die Anzahl der Atome in der Kaskade ein Maß für die unterschiedliche Defektausbeute darstellt. Die folgende **ABB. 5.4** zeigt Darstellungen der Anzahl der Kaskadenatome in Abhängigkeit von der Zeit seit Start des primären Rückstoßkernes.

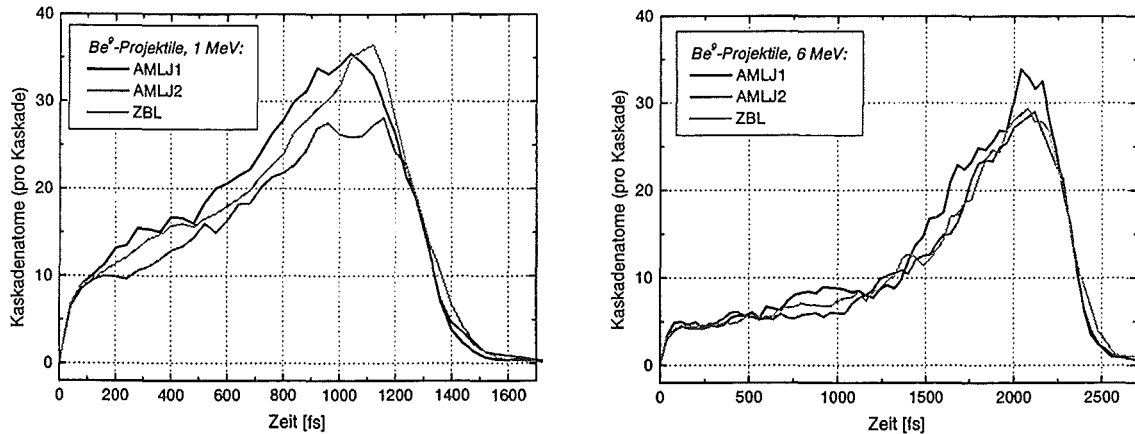


ABB. 5.4: Kaskadenprofile für Be-initiierte Kaskaden mit verschiedenen abgeschirmten Potentialen: 1 MeV (links) und 6 MeV (rechts).

Bei 1 MeV Primärenergie erkennt man deutlich, daß für AMLJ1 schon recht früh in der Kaskadenentwicklung mehr Atome freigesetzt werden und auch das Maximum der Verteilung (etwa 35 Atome) früher erreicht wird. Im Falle von AMLJ2 erhält man ein deutlich flacheres Profil mit einem um etwa 20 % abgesenktem Maximum, während ZBL dazwischen liegt, aber ebenfalls ein Maximum um 36 Atome erreicht. Das Auslaufen der Kaskade vollzieht sich in allen Fällen innerhalb einer relativ kurzen Zeitspanne (etwa 500 fs vom Maximum bis unter 1 Atom/Kaskade), wobei für ZBL der Abfall etwas gleichförmiger ist als für die AMLJ-Varianten. Ein ähnliches Bild zeigt sich auch bei 6 MeV, obgleich die Differenz zwischen AMLJ2 und ZBL weniger stark ins Gewicht fällt. Insgesamt ist das Profil deutlich langgestreckter als für 1 MeV. Innerhalb etwa 100 fs werden wenige Atome aus dem Gitter geschlagen. Anschließend halten sich die Produktion neuer Rückstoßkerne und der Verlust durch Abbremsen unter die Energieschwelle in etwa das Gleichgewicht. Erst wenn das Projektil deutlich abgebremst ist, ergibt sich ein Nettogewinn an Kaskadenatomen, die dann bei etwa 2100 fs ein Maximum erreichen. Dieses selbst erreicht nicht mehr den Wert bei 1 MeV, d.h. die Kaskade ist weniger dicht. Das anschließende Verlöschen geschieht auch bei 6 MeV relativ schnell innerhalb von 600 bis 700 fs.

Auch für die in  $(n,2n)$ - und  $(n,\alpha)$ -Reaktionen erzeugten leichten Rückstoßkerne  $\text{He}^4$  und  $\text{He}^6$ , die in einer Schädigungsrechnung für Beryllium eine signifikante Rolle spielen, wurden Kaskaden mit den drei beteiligten Potentialen simuliert. Für diese Projektile ergibt sich dabei im wesentlichen dasselbe Resultat, die Defektanzahl für AMLJ1 ist gegenüber AMLJ2 und ZBL wesentlich erhöht (vgl. ABB. 5.5). Dabei ist die Differenz weniger eindeutig in der Energieabhängigkeit, aber es treten ähnliche große Schwankungen auf: für  $\text{He}^4$  liegt AMLJ1 etwa 5 bis 17 % oberhalb von ZBL, AMLJ2 meist 2 bis 8 % mit starken Ausreißern zwischen 1 und 7 MeV (-5 bis -10 % gegenüber ZBL). Die Differenzen für  $\text{He}^6$  liegen bei etwa +5 bis +18 % (AMLJ1) und ca. +4 bis +12 % (AMLJ2).



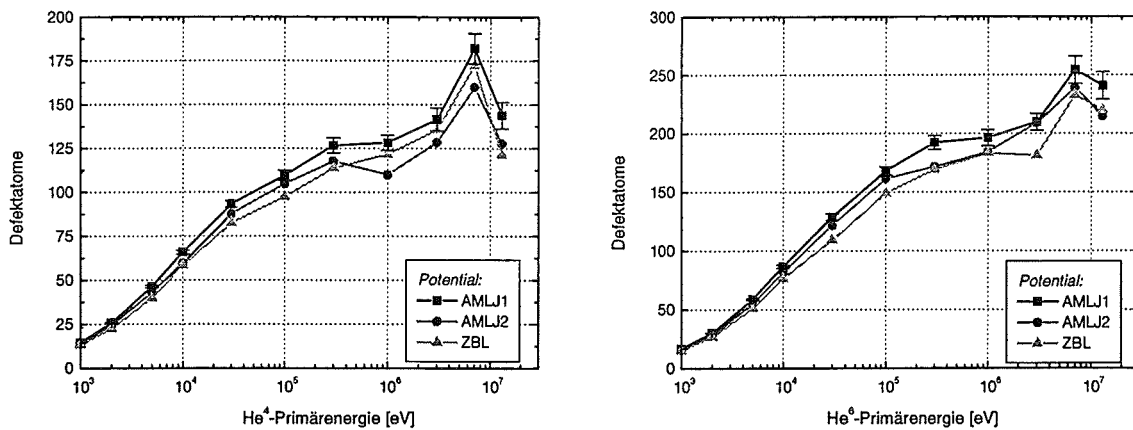


ABB. 5.5: Defekterzeugung für He-PKA's mit verschiedenen abgeschirmten Potentialen: He<sup>4</sup> (links), He<sup>6</sup> (rechts)

Auffällig im Energieverlauf von Defektanzahl bzw. Schädigungsenergie ist der abrupte Abfall bei 13 bzw. 11 MeV. Während die Schädigungsenergie bis dahin recht glatt verläuft, zeigen die Defektausbeuten ein deutliches Maximum bei 7 MeV. Die Erläuterung dieses Effekts soll weiter unten ausgeführt werden.

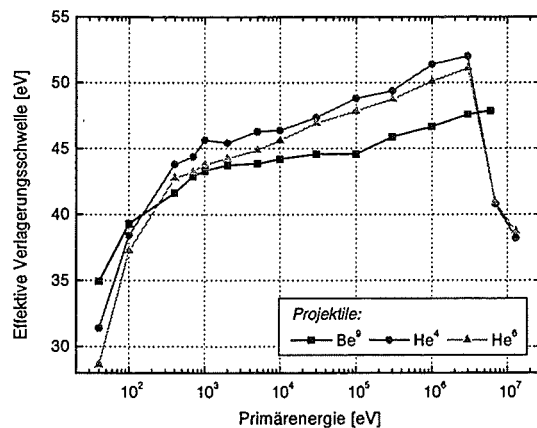


ABB. 5.6: Effektive Verlagerungsschwelle für verschiedene PKA's: Potential ist AMLJ1

Betrachtet man das Verhältnis der effektiven Schwellen  $Q$ , so zeigt sich auch hier ein vom interatomaren Potential unabhängiges Verhalten, jedoch auf unterschiedlichem Niveau. Im Mittel beträgt die Differenz zu ZBL für beide Isotope -5,8 % (AMLJ1) bzw. 1,6 % (AMLJ2), was sehr gut mit den Werten für Be<sup>9</sup> übereinstimmt (s.o.). Im Energiebereich zwischen etwa 1 keV und 3 MeV weist  $Q$  wieder einen schwachen Anstieg auf, der jedoch in diesem Fall 1,8 bis 1,9 eV/Dekade beträgt (vgl. ABB. 5.6 für AMLJ1). Unterhalb von 1 keV sinkt die Schwelle analog wie für Be<sup>9</sup> scharf ab. Beiden He-Projektilen gemeinsam sind die eklatant niedrigen Werte oberhalb von 3 MeV (z.B. für AMLJ1: um 40 eV gegenüber etwa 52 eV bei 3 MeV). Betrachtet man lediglich die Werte bis einschließlich 3 MeV Primärenergie, so lassen sich auch hier  $N_d - E_{dam}$  - Korrelationen wie bei Be<sup>9</sup> ableiten ( $\chi^2 \approx 0,04$  bis 0,08).

TAB. 5.13: Fitparameter für Korrelation zwischen Defektzahl  $N_d$  und Schädigungsenergie  $E_{dam}$  (in Be°): Typische Fehler sind für AMLJ1 angegeben.

Potential	He <sup>4</sup>		He <sup>6</sup>	
	<i>a</i>	<i>b</i>	<i>a</i>	<i>b</i>
AMLJ1	0,0293±0,003	0,956±0,012	0,0316±0,002	0,952±0,010
AMLJ2	0,0279	0,957	0,0291	0,956
ZBL	0,0256	0,966	0,0274	0,961

Zur Erläuterung des irregulären Verhaltens oberhalb 3 MeV beachte man zunächst in der  $N_d - E_{dam}$ -Kurve, daß die beiden Punkte für 7 MeV und 11(13) MeV offensichtlich auf einer Parallelen oberhalb der bisherigen Kurve liegen.

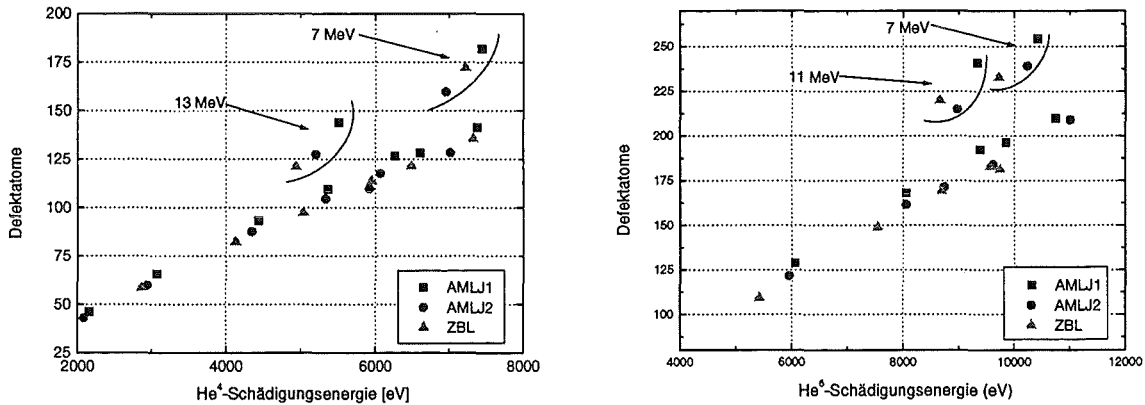


ABB. 5.7:  $N_d - E_{dam}$ -Verhalten bei hohen Energien von He-PKA's: Punkte für gleiche Primärenergien sind durch Bögen gekennzeichnet.

Tatsächlich stellt man fest, daß bei 7 MeV die Zahl der verlagerten Beryllium-Atome nicht mehr ansteigt. Dafür nehmen korrelierte und unkorrelierte Rekombinationen ab, so daß ein Nettozugewinn von Defekten resultiert. Für 11(13) MeV sinkt nun auch die Zahl der Verlagerungen stark ab. Bedingt durch drastisch reduzierte Ersetzungsstöße verringert sich die Zahl von unkorrelierten Rekombinationen noch einmal gegenüber dem Wert bei 7 MeV. Demgegenüber bleiben die korrelierten Annihilationen praktisch unverändert. In der Bilanz ergibt sich so eine wesentliche Defektreduzierung.

Vergleicht man das Kaskadenverhalten im Bereich 3 bis 11(13) MeV, so stellt man zunächst fest, daß die normierten Rückstoßspektren im wesentlichen unverändert geblieben sind. Dies deutet darauf hin, daß in diesem Energiebereich die Winkelverteilung der elastischen Streuung keine durchgreifenden Änderungen erfährt. Bedingt durch die starke Vorwärtsausrichtung nehmen aber die Energietransfers unterhalb der Schwelle stark zu. Dabei treten aber vorrangig Stoßvorgänge auf, die praktisch keinen Übertrag an kinetischer Energie verursachen, sondern ausschließlich zu lokalen inelastischen Verlusten führen. Zusammen mit dem extrem

kleinen Kernbremsquerschnitt bei hohen Energien führt diese zu einer zusätzlichen Reduzierung des kinetischen Energieübertrags unterhalb der Schwelle. Deshalb verlagert ein  $\text{He}^4$ -Projektil mit 7 MeV etwa 92 Be-Atome, eines mit 13 MeV jedoch nur 70.

Im zeitlichen Kaskadenprofil wird dieser Sachverhalt verdeutlicht (s. ABB. 5.8). Während für 3 und 7 MeV noch ein beträchtlicher Anteil an Verlagerungen vor dem Peak auftauchen, ereignen sich solche bei 13 MeV nur in den ersten wenigen 100 fs und nicht in jedem Fall. Nachdem solche Atome sehr schnell zur Ruhe gekommen sind, durchquert das  $\text{He}^4$ -Projektil das Be-Gitter ohne nennenswerte Energieüberträge an Be-Atome; es wird praktisch nicht abgelenkt und verliert Energie nur aufgrund des inelastischen Energieverlusts. Zu Beginn der Trajektorie ist dieser relativ gering, erreicht sein Maximum erst bei einigen hundert keV, so daß extrem große radiale Reichweiten erreicht werden können. Dieses betragen etwa 12,6  $\mu\text{m}$ , 43  $\mu\text{m}$  bzw. 118  $\mu\text{m}$  für 3 MeV, 7 MeV bzw. 13 MeV. Erst kurz vor Ende dieser Strecke nehmen dann die Energietransfers auf Be-Atome zu, es entsteht wie bei kleineren Energien ein Verlagerungspeak.

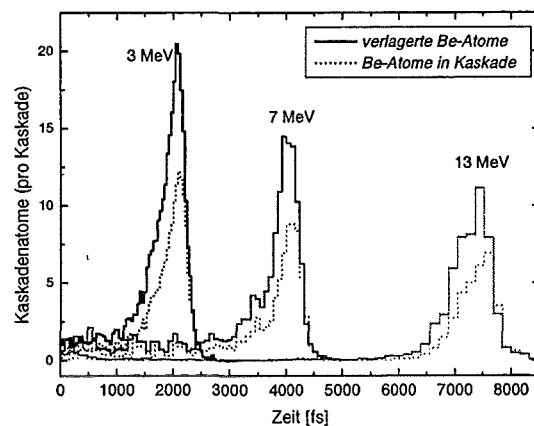


ABB. 5.8: Kaskadenprofile für hochenergetische  $\text{He}^4$ -PKA's.

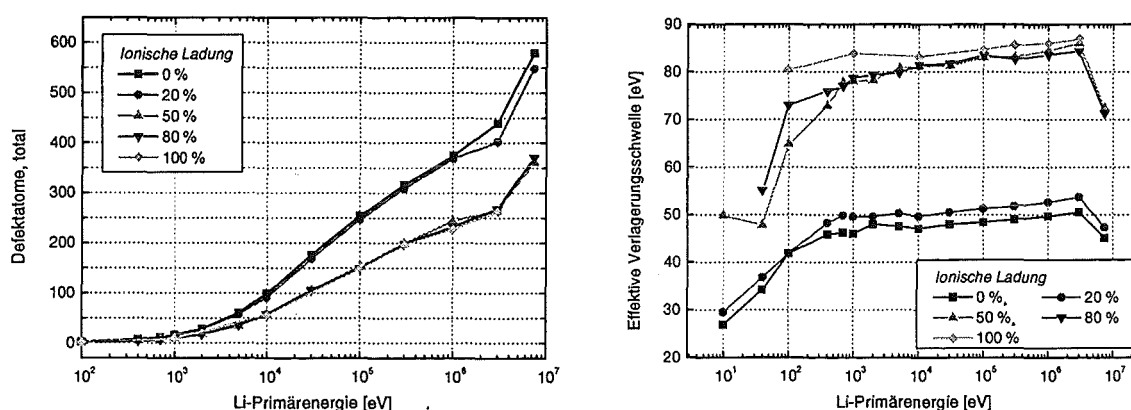
### 5.3.2 Potentiale: $\text{Li}_4\text{SiO}_4$

In  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  wurde am Beispiel von Li-Projektilen der Einfluß des Coulomb-Potentials untersucht. Dazu wurden die ionischen Ladungen über einen Bereich von 0 bis 100 % der Nominalwerte ( $\text{Li}^{+1}$ ,  $\text{Si}^{+4}$ ,  $\text{O}^{-2}$ ) variiert. Diese Modifikation wirkt sich sowohl auf die Tiefe des Potentialminimums für heteropolare Kombinationen, als auch auf den asymptotischen Wert der Abschirmfunktion für große Abstände aus. Gegenüber den Referenzdaten wurden für diese Simulationen keine expliziten Bindungsenergien verwendet.

Mit steigenden ionischen Ladungen findet man je nach Defektspezies unterschiedliche, z.T. gegenläufige Entwicklungen. Li-Defekte verändern sich bis 50 % ionischer Ladung nicht, danach nehmen sie durchgehend ab. O-Defekte verringern sich bis 50 % ionischer Ladung, da-

nach steigen sie wieder leicht an. Si zeigt dagegen ein sehr verändertes Bild: bis 50 % zeigt sich die Defektentwicklung uneinheitlich, bei 80 % findet man ein starkes Ansteigen der Defektanzahl, das sich bei 100 % kaum noch ändert. Betrachtet man die Summe der Defekte (s. **ABB. 5.9**, links), so erkennt man, daß bei schwachem Coulomb-Potential keine wesentliche Änderung gegenüber abgeschirmten Potentials erkennbar ist. Andererseits sind ab 50 % die Defektsummen nahezu konstant (etwa 40 bis 50 % unterhalb der jeweiligen Werte bei 0 %), lediglich die Zusammensetzung nach Atomspezies variiert mit der Stärke des Potentials. Bei völliger Abschirmung des Potentials (0 %) liegt die Verteilung zwischen Li, O und Si bei durchschnittlich 56:40:4, bei halber nomineller ionischer Ladung bei 63:30:7 und schließlich bei vollständiger ionischer Ladung bei 49:39:12.

Auch Fehlordnungsdefekte nehmen in der Summe bei steigender ionischer Ladung stark ab und sind bei 100 % ionischer Ladung um ca. 25 % reduziert. Ihre Zusammensetzung variiert von 25:63:12 über 21:60:19 bis zu 25:57:18 (für 0 %, 50 % und 100 %).



**ABB. 5.9:** Defekterzeugung und effektive Verlagerungsschwelle von Li-PKA's in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  für verschiedene Grade ionischer Ladung.

Ein analoges Verhalten erkennt man auch in der effektiven Verlagerungsschwelle  $Q$  (s. **ABB. 5.9**, rechts). Diese steigt erst bei 50 % ionischer Ladung stark an (von etwa 50 eV auf 83 eV), bleibt dann aber ebenfalls fast konstant. Damit ist die gesamte Schädigungsenergie, die in einer Kaskade übertragen wird, relativ unabhängig von der Stärke des Coulomb-Potentials. Lediglich für Energien ab etwa 10 keV ist ein leichter Zuwachs zu verzeichnen. Doch treten im Rückstoßenergiespektrum der verlagerten Atome deutliche Änderungen zutage, deren Konsequenz die erschwerte Defektbildung darstellt.

Betrachtet man die Atome, die in einer Kaskade verlagert werden (s. **ABB. 5.10**), so findet man mit steigender ionischer Ladung immer weniger Lithium und Sauerstoff, jedoch vermehrt Si. Zudem ist das starke Coulomb-Potential Ursache für massiv geänderte Rückstoßspektren. Im Rückstoßspektrum (bei 3 MeV Primärenergie) zeigt sich, daß der Verlust an Li-Ionen vorrangig niederenergetische betrifft (etwa unterhalb 50 eV, besonders stark unterhalb 10 eV). O-

Ionen bei Energien knapp oberhalb der Schwelle tauchen mit steigender ionischer Ladung verstärkt auf, auf Kosten derjenigen im Bereich von 9 bis etwa 30 eV. Schließlich erhöht sich der Anteil der Si-Ionen vor allem im Energiebereich von etwa 7 bis 20 eV. Tatsächlich findet man für starke Coulomb-Potentiale praktisch keine Si-Ionen in Bewegung, da diese wegen der extremen Wechselwirkung vor allem mit O-Ionen sehr schnell gebremst werden. So bilden sich vermehrt Si-Fokuserionen, also Si-Ionen, die ihre Energie an ein oder mehrere benachbarte O-Ionen abgeben und auf ihren Gitterplatz zurückfallen. Ebenso sind, wenn wie hier Bindungsenergien nicht berücksichtigt sind, Ersetzungsstöße von Si auf O-Ionen möglich, d.h. das Si-Zentralion schlägt ein O-Ion aus der Tetraederecke und bildet dort eine Gitterfehlbesetzung.

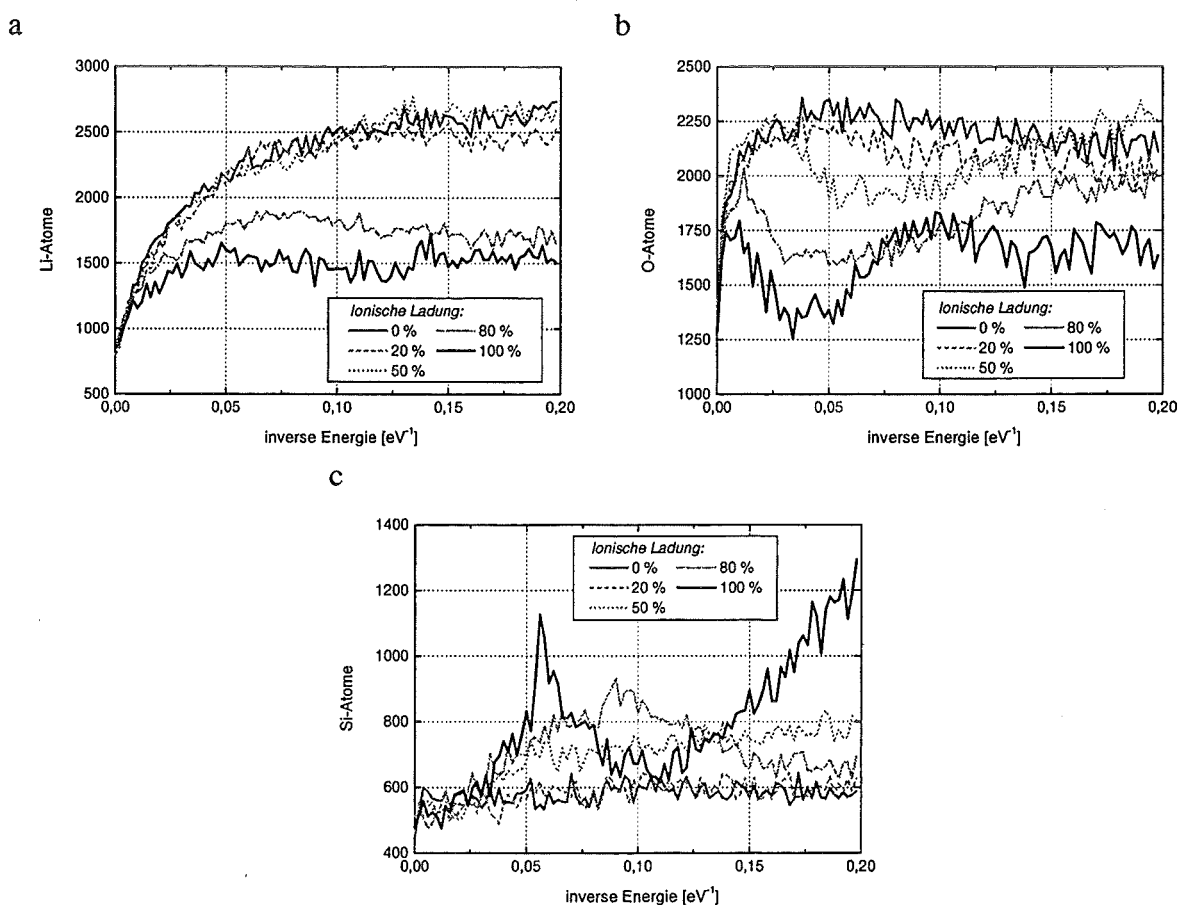


ABB. 5.10: Rückstoßspektren einzelner Konstituenten in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .

Der Einfluß des nur teilweise abgeschirmten Coulomb-Potentials wirkt sich nicht nur auf die atomare Zusammensetzung der Rückstoßspektren und demzufolge auch der Defektatome aus, sondern ebenso auf die Defektcharakteristik. Zunächst stellt man unabhängig vom Grad der ionischen Ladungen eine bis auf niedrige und sehr hohe Energien nur schwach energieabhängige Charakterisierung fest. Dies betrifft Defektdichten in der Kaskade, Anteile geclusterter Defekte und die radiale Korrelation solcher Cluster. Bis etwa 10 keV (Li-PKA's) ist die Leerstellendichte und die Dichte der Fehlordnungsdefekte relativ klein. Dabei treten aber verstärkt

einzelne, nicht geclusterte Leerstellen auf, während der Anteil von Fehlordnungscluster praktisch unverändert ist. Offenbar werden bei diesen Primärenergien weit separierte Leerstellen erzeugt und relativ dazu weniger Fehlordnungsdefekte. Schließlich sinkt bei 7,4 MeV die Konzentration von Defektatomen und Fehlordnungen wieder, ein Indiz für das Channelling dieses leichten PKA's, das zu einer gestörten Defektproduktion aufgrund zunehmender korrelierter Annihilationen entlang der Trajektorie führt. Insbesondere steigt die Zahl der Fehlordnungen nur noch marginal an. Demgegenüber weist die Leerstellendichte innerhalb des Kaskadenvolumens eine deutliche Erhöhung auf. Dies liegt daran, daß neben mehr korrelierten Annihilationen die Defektseparation zwischen Leerstellen und Zwischengitteratomen ganz allgemein kleiner geworden ist. Demzufolge bilden sich weniger stabile Defektpaare aus, was trotz etwa gleich hoher Produktion von Leerstellen und Defektatomen zu einer Bevorzugung freier Gitterplätze führt, deren Konzentration also erhöht ist.

Vergleicht man die Defektcharakteristiken bezüglich 0 % ionischer Ladung, so führt eine schwache ionische Beimischung (20 %) zunächst nur zu Modifikationen bei Fehlordnungsdefekten. Deren Dichte sinkt deutlich ab, ebenso die Clusterbildung. Bei 50 % Beimischung erhält man eine drastische erhöhte Leerstellendichte (+13 %) und eine noch deutlicher reduzierte Defektatomdichte (-25 %). Insbesondere die Leerstellen bilden nun vermehrt Einzeldefekte, so daß der Anteil der Leerstellen in Cluster von etwa 47 % auf 31 % sinkt. Bei 80 % ionischer Ladung erreicht die Fehlordnungsdichte ihren höchsten Stand ebenso der Anteil in Cluster, während die Konzentration von Leerstellen bis zum Nominalwert (100 %) stetig abnimmt, die der Defektatome umgekehrt zunimmt.

Zusammenfassend kann man im Vergleich der Defektergebnisse aus Kaskaden mit vollständig abgeschirmten repulsiven Potentialen zu denen mit voller ionischer Ladung die im folgenden aufgeführten Punkte festhalten. Dabei sind die konkreten Zahlenangaben nur gültig für die hier vorgegebenen Bedingungen, nämlich Li-PKA's in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  ohne explizite Bindungsenergien. Wie man später sehen wird (in Kapitel 5.6.2, S. 150ff.), sind diese Resultate aber repräsentativ und zeigen den generellen Trend auf.

- Die Anzahl von Defektatomen ist um etwa 40 % kleiner geworden, die der Fehlordnungsatome dagegen um nur 25 %. Deshalb beträgt die relative Fehlordnungsrate (Fehlordnungen pro Leerstelle) nun etwa 55 % (statt bisher 44 %).
- Die Konzentrationen von Leerstellen und Fehlordnungsdefekten sind nur mäßig verändert, die der Gitterdefekte ist um mehr als 20 % kleiner geworden.
- Der Anteil geclusterter Leerstellen sinkt auf nunmehr ca. 27 % (gegenüber 47 %), für Gitter- und Fehlordnungsdefekte steigt er auf 3 % (statt 1 %) bzw. 27 % (statt 17 %).
- Die radiale Korrelation geclusterter Defekte gleicht sich an und liegt für alle drei Defektspesies bei etwa 0,5 bis 0,6. Im vollständigen abgeschirmten Coulomb-Potential sind Defektatome und Fehlordnungen deutlich schwächer korreliert (0,7 bis 0,8), Leerstellen dafür etwas ausgeprägter (0,49 statt 0,55).

### 5.3.3 Inelastischer Energieverlust: Beryllium

Im Falle des monoatomaren Beryllium sollen der Einfluß des Hochenergieansatzes (Bethe-Bloch), der Niederenergiekorrektur ( $Z_2$ -Oszillationen) und die Aufteilung zwischen nichtlokalem und lokalem Energieverlust untersucht werden. Primäres Projektil ist in allen Fällen  $\text{Be}^9$ .

Wie zu erwarten macht sich der Einfluß des Hochenergieverlustes erst ab etwa 100 keV bemerkbar, führt dann aber zu einer deutlichen Defektsteigerung (z.B. +15 % bei 6 MeV). Diese ist bei beliebiger Verteilung von lokalem und nichtlokalem Energieverlust beobachtbar. Auffällig ist, daß für Gleichverteilung der Effekt am größten ist. Erhöht man andererseits den Anteil des nichtlokalen Energieverlustes, so bewirkt dies eine leichte Defektreduzierung oberhalb etwa 100 keV, unabhängig davon, ob der Hochenergieansatz berücksichtigt ist oder nicht. Dies deutet darauf hin, daß in Beryllium der kontinuierliche Energieverlust entlang der Projektilbahn gegenüber dem diskreten in jeder Kollision den wesentlichen Beitrag zum Gesamtenergieverlust leistet. Effektiv führt ein höherer Anteil des nichtlokalen Verlustes zu einer verstärkten Abbremsung, was sich auch in verkürzten radialen Reichweiten der primären Projektile ausdrückt (etwa -2 bis -3 %).

Modifikationen der Größe des Niederenergiequerschnitt (in Kombination mit dem Hochenergieansatz) beeinflussen die Defektausbeute schon bei relativ kleinen Energien. Eine Reduzierung um 3 % (entsprechend dem Referenzwert  $c_k=0,97$ ) macht sich zunächst noch erst bei höheren Energien (etwa 100 keV) bemerkbar, führt dort aber zu einer erhöhten Defektausbildung um etwa 5 bis 8 %, also deutlich mehr als der statistische Fehler von etwa 2,5 % in den Simulationsresultaten. Verringert man den Niederenergiequerschnitt jedoch um 20 % ( $c_k=0,80$ ), so erhält man einen Zuwachs, der von etwa 4 % (1 keV) bis 23 % (6 MeV) ansteigt. Da praktisch alle Kaskadenatome (bis auf den primären Rückstoßkern) im Bereich des geschwindigkeitsproportionalen Energieverlusts liegen, führt deren starke Zunahme bei hohen Primärenergien zu dem oben beschriebenen Effekt.

Im Gegensatz zu den Schwankungen in der Defektzahl bleibt die effektive Schwelle in allen Kombinationen praktisch unverändert. Der absolute Wert steigt mit der Primärenergie von 39 eV (bei 100 eV) bis etwa 48 eV (bei 6 MeV). Die maximale Differenz (zwischen dem Fall eines ausschließlich lokalen LSS-Energieverlusts und dem eines gänzlich nichtlokalen kombinierten Energieverlusts) liegt bei 2,5 %. Somit ist der inelastische Energieverlust zwar für die absolute Defektausbeute in einem gewissen Rahmen verantwortlich, nicht jedoch für den eigentlichen Defekterzeugungsmechanismus. Dieser leitet sich vorrangig aus dem interatomaren Potential und, wie weiter unten zu sehen sein wird, dem effektiven Energie-Cutoff (Energieschwelle und Bindungsenergie) ab.

### 5.3.4 Inelastischer Energieverlust: $\text{Li}_4\text{SiO}_4$

Für das komplexe  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  spielt zusätzlich das über die atomare Zusammensetzung gemittelte Ionisierungspotential eine wichtige Rolle für die Größe des nichtlokalen Energieverlustes. Im folgenden sollen dazu Simulationen mit Compound-Ionisierungspotentialen  $I_{\text{Compound}}$ , die vom Bragg-Wert  $I_{\text{Bragg}}$  bis zu einer Erhöhung um 15 % reichen, verglichen werden. Dabei wird das von Thwaites vorgeschlagene Interpolationsschema zur Bestimmung des Energieverlust oberhalb 1 keV/amu angewendet. Als Projektile werden Li- und Si-Ionen eingesetzt, gegenüber den Referenzdaten sind keine Bindungsenergien vorgegeben.

Allen Simulationen gemeinsam ist der mit steigendem  $I_{\text{Compound}}$  einhergehende leichte Defektzuwachs ab etwa 10 keV (Li-Projektile), sowohl der Summe als auch einzelner Atomspezies. Dabei sind die Zuwächse gegenüber den Resultaten für  $I_{\text{Bragg}}$  sehr uneinheitlich, stabilisieren sich aber für hohe Energien (Resultate der Summendefekte in TAB. 5.14, vgl. auch ABB. 5.11).

TAB. 5.14: Änderung der Defektausbeute gegenüber Bragg-Ionisierungspotential.

	Bragg + 5 %	Bragg + 10 % <sup>(1)</sup>	Bragg + 15 %
Spannbreite	+1 .. 4 %	+3 .. 10 %	+4 .. 16 %
gemittelt	+3 %	+7 %	+15 %

<sup>(1)</sup> Referenzwert

Für Si-Projektile sind die Effekte bei gleichen Energien deutlich kleiner, da die semiempirische Korrektur erst oberhalb 1 keV/amu greift. Insofern erwartet man erst oberhalb 30 keV einen ähnlichen Zuwachs, der allerdings wegen des kleineren Korrekturfaktors für Si in diesem Energiebereich relativ stark ausfällt. Die Folge davon ist, daß zwischen den Werten von  $I_{\text{Bragg}}$  und  $1,15 \cdot I_{\text{Bragg}}$  die Defektausbeute bei 100 keV um etwa 8 % anwächst, bei 1 MeV sogar um 14 %. Letztlich führt also die größere Anpassung für schwerere Ionen zu einem ähnlich starken Zuwachs wie für leichte Ionen, wobei dies aber erst für vergleichsweise hohe Primärenergien gilt.



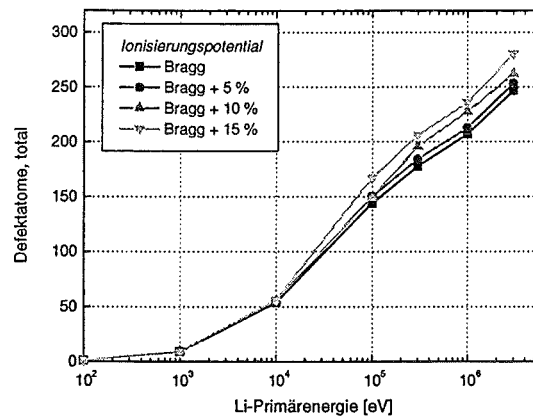


ABB. 5.11: Defekterzeugung für verschiedene Ionisierungspotentiale: Li-PKA in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$

Wie bei Beryllium zeigt die effektive Schwelle  $Q$  praktisch kaum einen Einfluß der unterschiedlichen  $I_{\text{Compound}}$ -Werte. Die maximale Differenz beträgt für die Summe aller Defekte gerade 1 %.

### 5.3.5 Kristallbindung: Beryllium

In einer Folge von Simulationen wird der Einfluß der Bindungsparameter auf die Defektausbeute in Beryllium untersucht. Verglichen werden Fälle mit unterschiedlichen festen Bindungsenergien (1,5 bis 3,6 eV), ebenso wie unterschiedliche Spezifikationen im lokalen Bindungsmodell (minimale Bindungsenergie, Anzahl der Bindungsnachbarn, Bindungscharakter). Getestet wurden folgende Spezifikationen für das Bindungsmodell:

TAB. 5.15: Bindungsspezifikationen in Be.

Fall	Bindungsenergie [eV]		Charakter	Nachbarn
	minimal	maximal		
1	0,0	3,3	metallisch/kovalent	12
2	1,5	3,3	metallisch/kovalent	12
3	0,0	3,3	metallisch	12
4	0,0	3,3	metallisch/kovalent	6
5	3,3	3,3	metallisch/kovalent	12
6	1,5	1,5	metallisch/kovalent	12
7	3,6	3,6	metallisch/kovalent	12

#### 5.3.5.1 Rückstoßdichte mit Bindungsenergien

Neben der Auswertung der schädigungsrelevanten Daten soll hier auch das Energiespektrum der Rückstoßatome in der Kaskade mit analytischen Aussagen verglichen werden. In einer

linearen Stoßkaskadentheorie ist nämlich die Rückstoßdichte  $n(T, E_0)$ , d.h. die mittlere Zahl von Rückstoßatomen im Energieintervall  $(T, T + \Delta T)$ , umgekehrt proportional zu  $T^2$ , sofern die Rückstoßenergie  $T$  klein gegen die Primärenergie  $E_0$  ist (s. beispielsweise [5, 116, 117]). Für einfache Potenz-Potentiale ( $V \sim r^{-1/m}$ ) lautet die Rückstoßdichte genauer [117]:

$$n(T, E_0) = \frac{m}{\Gamma(1) - \Gamma(1-m)} \frac{E_0}{T^2}; \quad (0 < m < 1) \quad (130)$$

mit der Gammafunktion  $\Gamma$ .

Der Vorfaktor, im folgenden mit  $C_m$  abgekürzt, ist über den Parameter  $m$  nur schwach abhängig vom interatomaren Potential. Für allgemeine Potentiale, d.h. variables  $m$ , kann er aber zusätzlich energieabhängig sein.

Eine Bindungsenergie  $U$  kann nun in der Weise berücksichtigt werden, daß ein Targetatom die Energie  $E = T - U$  übernimmt und das Projektil mit verringerter Energie  $E_0 - T$  weiterfliegt. Die Bindungsenergie wird also gänzlich dem Targetatom zugeordnet, was wegen der starken Vorwärtsausrichtung des Streuquerschnitts bei nicht zu kleinen Primärenergien gerechtfertigt ist. In diesem Modell lautet die Rückstoßdichte näherungsweise [117]

$$n(E, E_0) = C_m \frac{E_0}{(E+U)^{1+m} (E+2U)^{1-m}}; \quad (E = T - U) \quad (131)$$

sofern  $U \ll E \ll E_0$  ist.

Gemäß diesen Verteilungen (mit oder ohne  $U$ ) sind also bevorzugt niederenergetische Rückstoßatome zu erwarten. Praktischerweise trägt man deshalb  $n(T, E_0)$  als Histogramm über der reziproken Rückstoßenergie auf. Für verschwindende Bindungsenergie ergibt sich dann bei konstanter Histogrammbreite wegen

$$\int_{A/(n+1)}^{A/n} \frac{dE}{E^2} = \frac{1}{A}; \quad n = 0, 1, 2, \dots \quad (132)$$

eine uniforme Verteilung.

Der allgemeine Fall mit  $U > 0$  läßt sich nicht analytisch geschlossen darstellen. Lediglich für den interessanten Grenzfall  $m \rightarrow 0$ , da für abgeschirmte Coulomb-Potentiale  $m$  i.a. klein ist, z.B. für ZBL  $m = 0,19$ , kann man aus (131) folgende Beziehung ableiten:

$$\int_{A/(n+1)}^{A/n} n(E, E_0) = C_0 \frac{E_0}{U} \ln \left( 1 + \frac{AU (n(n+1))^{-1}}{A^2 (n(n+1))^{-1} + AU (n(n+1))^{-1} (3n+1) + 2U^2} \right) \quad (133)$$

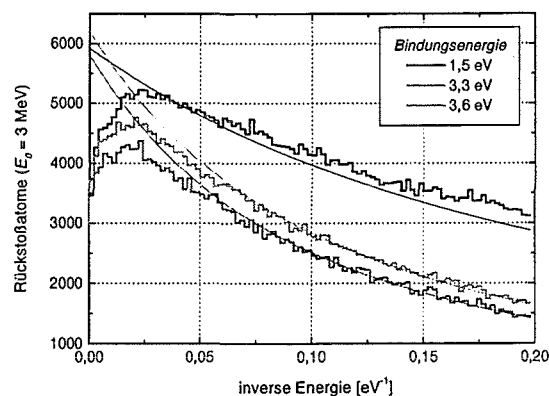
mit  $C_0 \approx 1,73$ .

Ist  $E \gg U$ , so erhält man eine Verteilung, die umgekehrt proportional zum Index  $n$  ist. Die Bindungsenergie führt also zu einer deutlichen Reduzierung der Rückstoßdichte bei kleinen Energien, die in der Auftragung über  $E^{-1}$  besonders markant ist.

### 5.3.5.2 Auswertung der Simulationen

Prinzipiell sind Modifikationen im Bindungsmodell von untergeordneter Bedeutung. In allen Fällen (vgl. TAB. 5.15) ergeben sich nämlich nur marginale Abweichungen ( $<1\%$ ), die aber eindeutig mit dem mittleren Bindungsverlust pro verlagertem Atom korreliert sind. So führt z.B. Fall 2 zu einem steigenden mittleren Bindungsverlust, die Anzahl der beteiligten Kaskadenatome sinkt entsprechend und ebenso die Defektzahl. Vergleicht man Fall 1 (lokale Bindungsenergie) mit Fall 5 (feste Bindungsenergie), so ergibt sich hier die größte Differenz, da der mittlere Bindungsverlust für Fall 1 mit 3,24 eV am kleinsten ist.

Gänzlich anders verhält es sich bei der Variation der Bindungsenergien (Fall 6 mit 1,5 eV; Fall 7 mit 3,6 eV). Eine Erhöhung der Bindungsenergie (Fall 7) gegenüber dem Referenzfall (3,3 eV) erniedrigt die Defektzahl mit Mittel um 4 %, wobei die Differenzen oberhalb 1 MeV bis auf fast 10 % steigen. Fall 6 führt zu einem deutlichen Defektzuwachs, der im Mittel bei etwa 27 % liegt. Auch hier weichen die Werte ab 300 keV deutlich von diesem Mittelwert ab.



**ABB. 5.12:** Rückstoßdichte in Be für unterschiedliche Bindungsenergien: Primärenergie der  $\text{Be}^9$ -PKA's ist 3 MeV. Die glatten Kurven geben die analytischen Vorhersagen gemäß Glg. (133) wieder.

Im Energieprofil der Rückstoßkerne (ABB. 5.12) zeigt sich, wie aus den analytischen Abschätzungen zu erwarten ist, ein Abfall bei kleinen Rückstoßenergien. Dieser bestätigt sehr gut die

Vorhersagen für die Fälle 5 und 7 (3,3 eV und 3,6 eV), ist aber für die kleine Bindungsenergie (1,5 eV) merklich schwächer.

Auf der Basis der gemittelten Bindungsenergie läßt sich auch gut das Verhalten der effektiven Schwelle  $Q$  beschreiben. Für die verschiedenen Konstellationen des lokalen Bindungsmodells ergeben sich sehr kleine Differenzen in  $Q$ , die für größere Bindungsenergien positiv sind. In allen Fällen erhält man die schon bekannte Energieabhängigkeit mit einem Gradienten von 1,2 bis 1,3 eV/Dekade.

Die Simulationsergebnisse in diesem Abschnitt lassen eine überraschend klare Skalierung bezüglich des effektiven Energiecutoffs erkennen. Dieser ist die Summe aus vorgegebener Cutoff-Schwelle  $E_c$  (im hier verwendeten Referenzfall 5 eV) und mittlerer Bindungsenergie  $E_b$ . Bildet man beispielsweise den Quotienten  $Q / (E_c + E_b)$ , so erhält man eine von der jeweiligen Bindungsenergie nahezu unabhängige Größe. Die relativen Abweichungen bezüglich Fall 5 (feste Bindungsenergie von 3,3 eV) zeigen (ABB. 5.13), daß selbst für die Fälle 6 und 7 (1,5 bzw. 3,6 eV) nur Abweichungen von maximal 1 bis 2 % auftauchen. Weniger gut, aber dennoch in vernünftiger Korrelation, ist das Produkt aus Defektanzahl  $N_d$  und  $(E_c + E_b)$ . Hier ergeben sich mittlere Abweichungen um etwa 2,5 % mit maximalen Werten von +4 % bzw. -7 %.

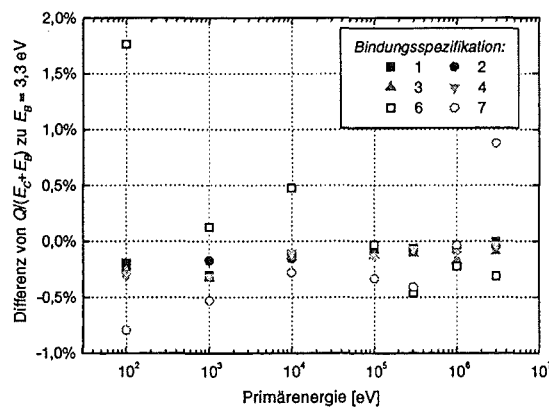


ABB. 5.13: Korrelation von effektiver Schwelle mit effektivem Energiecutoff: Relative Abweichung von  $Q/(E_c + E_b)$  gegenüber Fall 5 (3,3 eV); Bindungsspezifikationen s. TAB. 5.15.

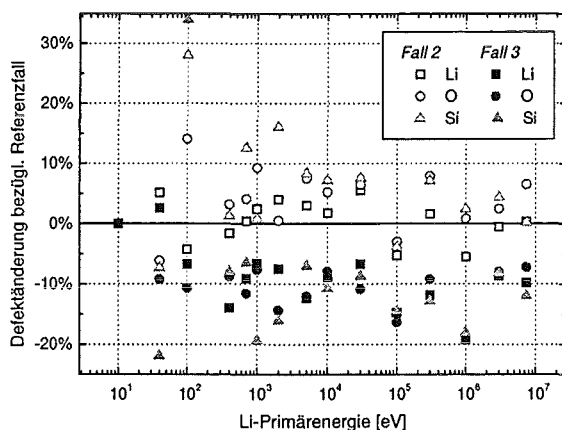
### 5.3.6 Kristallbindung: $\text{Li}_4\text{SiO}_4$

In  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  ergeben sich aufgrund der spezifischen Bindungen der einzelnen Konstituenten neue Aspekte, die in den folgenden Analysen begutachtet werden sollen. Ausgehend vom Referenzfall (Bindungsenergien für Li 1,5 eV, für Si 7 eV, für O 2 eV) werden sowohl kleinere (1/5/1,5 eV) als auch größere (2/10/3 eV) Bindungsenergien im lokalen Bindungsmodell verwendet. Diese Konstellationen werden im folgenden als Fälle 1 bis 3 bezeichnet. Um von den

Auswirkungen der Rekombination mit vakanten Li-Lagen unabhängig zu sein, werden in der Auswertung der Ergebnisse solche Defektverluste vermieden. Die Defektanzahl entspricht dann der Anzahl von Leerstellen auf dem entsprechenden Subgitter. Darüber hinaus sind gegenüber den Referenzdaten die Cutoff-Energien etwas abgesenkt. Insofern können die im folgenden erzielten Resultate nicht direkt mit den später durchgeführten Referenzrechnungen verglichen werden. Andererseits sollen hier lediglich die Differenzen bedingt durch die Wahl der Bindungsparameter untersucht werden, was in jedem Fall gewährleistet ist.

Zunächst bewirkt auch im Orthosilikat das lokale Bindungsmodell einen verringerten mittleren Bindungsverlust pro verlagertem Atom im Gitter. Wegen der stark polaren Bindung im Silikat-Tetraeder kann dort bereits bei Verlust einer einzigen O-Si-Bindung eine erhebliche Bindungsreduzierung beobachtet werden. Deshalb beträgt der mittlere Bindungsverlust für den Referenzfall 1 im Falle der Li-Verlagerungen 1,45 eV, O-Verlagerungen 1,92 eV und Si-Verlagerungen 6,80 eV.

Betrachtet man die Defektanzahl der einzelnen Spezies, so findet man im wesentlichen eine der Bindungsänderung parallelen Entwicklung; d.h. die Defektausbeute ist am kleinsten für Fall 3 und am größten für Fall 2 (s. **ABB. 5.14**). Mit Ausnahme der extremen Abweichungen bei Si-Defekten, bedingt durch deren kleine Zahl, ergeben sich relativ zum Referenzfall für jede Defektspezies, zumindest oberhalb 1 keV, eindeutige Trends. So führt Fall 2 zu effektiv keiner Änderung in den Li-Defekten, wohl aber zu Zuwächsen bei O und Si um 4 bzw. 5,5 % (alle Angaben sind gemittelte Werte oberhalb 1 keV). Dies entspricht in der Tendenz den Reduzierungen der einzelnen Bindungsenergien, die für Si am größten ist (-2 eV). Im Falle der höheren Bindungsenergien ergeben sich Defektreduzierungen um 9,5 % (Li), 11 % (Si) und 12 % (O). Auch hier läßt sich dieses Verhalten zumindest qualitativ an der entsprechenden Bindungsänderung ablesen. In der Summe der Defekte lauten die Differenzen +2 % (Fall 2) und -10 % (Fall 3).



**ABB. 5.14:** Relative Defektänderung bei unterschiedlichen Bindungsspezifikationen: Referenz ist 1.5/7/2 eV für Li/Si/O. Fall 2: 1/5/1.5 eV, Fall 3: 2/10/3 eV.

Auch die effektiven Schwellen  $Q$  zeigen ein analoges Verhalten. Oberhalb etwa 1 keV (mit Ausnahme von Si) zeigen sie eine schwach energieabhängige relative Differenz, die aber je nach Defektspezies unterschiedlich hoch ausfällt. Für den Fall 3 fällt dies noch kaum ins Gewicht (Li: +11 %, O: +11 %, Si: +14 %), dafür signifikant bei Fall 2 (Li: -2 %, O: -6 %, Si: -10 %). Betrachtet man die effektive Schwelle für die Summe aller Defekte, so liegen hier die Werte bei +11,5 % (Fall 3) bzw. -3,5 % (Fall 2), wobei in beiden Fällen die Differenzkurve nahezu konstant über der Primärenergie ist.

Eine quantitative Analyse der Resultate, die wie bei Beryllium zu einer Skalierungsregel für die effektive Schwelle  $Q$  bzw. für die Defektzahl  $N_d$  führt, läßt sich in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  weniger gut durchführen. Insbesondere muß die jeweilige Relation einer einzelnen Bindungsenergie und denen der anderen Konstituenten berücksichtigt werden. Ein Ansatz, der eine akzeptable Korrelation liefert, verwendet eine modifizierte Bindungsenergie gemäß

$$E_B^{(i)} + (1 - a^{(i)}) \bar{E}_B \quad (134)$$

wobei  $E_B^{(i)}$  die Bindungsenergie der Atomspezies  $i$ ,  $a^{(i)}$  deren atomare Häufigkeit und  $\bar{E}_B$  die über die Zusammensetzung gemittelte Bindungsenergie bezeichnet. Wenn nicht, wie in diesen Simulationen, effektive mittlere Bindungsenergien einzelner Konstituenten aus dem lokalen Bindungsmodell ermittelt werden können, kann man, ohne wesentlich an Genauigkeit zu verlieren, die vorgegebenen maximalen Bindungsenergien für die Bestimmung von  $\bar{E}_B$  verwenden. Bildet man nun den Quotienten

$$Q_{red} = \frac{Q}{(E_C^{(i)} + a^{(i)}(E_B^{(i)} + (1 - a^{(i)})\bar{E}_B)} \quad (135)$$

( $E_C^{(i)}$  = Cutoff für Atomspezies  $i$ ), so ergeben sich für Li, O und Si die in TAB. 5.16 aufgeführten relativen Abweichungen zum Referenzfall 2 in Abhängigkeit von der Energie der primären Li-Projektile. Trotz der z.T. noch großen Diskrepanzen (für Si wegen der kleinen Zahl der Defekte) sind die Abweichungen in  $Q_{red}$  gegenüber denen in  $Q$  deutlich reduziert (mittlere Werte oberhalb 1 keV).

TAB. 5.16: Mittlere Abweichungen von  $Q_{red}$  bezüglich Bindungsreferenzfall 1.

Defektspezies	Fall 2	Fall 3
Li	-1,4 %	+3 %
O	0 %	-1 %
Si	-6 %	+6 %

Verallgemeinert man obige Skalierungsregel für die Summe aller Defekte, indem man den Normierungsfaktor über die atomare Zusammensetzung mittelt, also

$$\sum_i a^{(i)} (E_C^{(i)} + a^{(i)} (E_B^{(i)} + (1 - a^{(i)}) \bar{E}_B) \quad (136)$$

bildet, so erhält man eine reduzierte effektive Schwelle  $Q_{red}$ , die für alle untersuchten Bindungskonstellationen nur um max. 0,5 % (oberhalb 1 keV) abweicht.

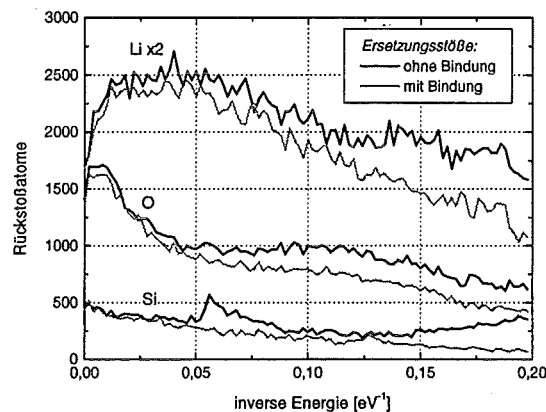


ABB. 5.15: Rückstoßdichten der Konstituenten in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ ; Li-Werte sind zur besseren Darstellung verdoppelt.

Den bedeutenden Beitrag von Ersetzungsstößen im ionischen  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  dokumentiert der Vergleich zweier Bindungsmodelle, die im einen Fall Bindungsenergien für Ersetzungsstöße definiert, im anderen Fall nicht. Dann erhöht sich die Defektzahl nur mäßig um maximal 8 %, jedoch zeigen die Rückstoßspektren (ABB. 5.15) signifikante Unterschiede. Während für Li- und O-Ionen der Anteil niederenergetischer Ionen leicht ansteigt, wenn man keine Bindung für Ersetzungsstöße betrachtet, ist dies bei Si besonders ausgeprägt mit Zuwächsen bis über 400 %. Außerdem ist der Bereich um etwa 17 eV stark erhöht, ein Anzeichen dafür, daß diese Ionen über Ersetzungsstöße freigeschlagen werden können.

## 5.4 Parameteranalyse: BCA-Modell und quasisimultane Stöße

### 5.4.1 Verbesserte Stoßintegrale: Beryllium

Ein wesentlicher Eingriff in das BCA-Modell, so wie es in MARLOWE vorliegt ist, stellt die Implementierung der inelastischen Stoßkinematik dar. Deren Effekt auf die Simulationsergebnisse kann sukzessive durch die Wahl des Parameters  $\delta$  (s. in Kap. 4.3.1.3, S. 72) gesteuert werden. Deshalb werden im folgenden die Fälle  $\delta = 0$ ,  $\delta = 10^{-4}$  und  $\delta = 0,2$  verglichen, wobei im ersten Fall die bisherigen, quasielastischen Formeln verwendet werden, im zweiten Fall

lediglich Änderungen durch den modifizierten Stoßparameter und im dritten Fall auch das inelastische Zeitintegral.

In der Defektausbeute findet man zwischen  $\delta = 10^{-4}$  und  $\delta = 0,2$  praktisch keinen Unterschied; jedoch führt ein  $\delta > 0$  zu einem deutlichen Zuwachs oberhalb etwa 300 keV. Dieser beträgt etwa 5 % und ist damit signifikant größer als der statistische Fehler der Kaskadensimulation von etwa 2 % in diesem Energiebereich (bei 200 bis 300 Kaskaden). Dabei sinkt die effektive Schwelle aber nur um wenige zehntel Prozent.

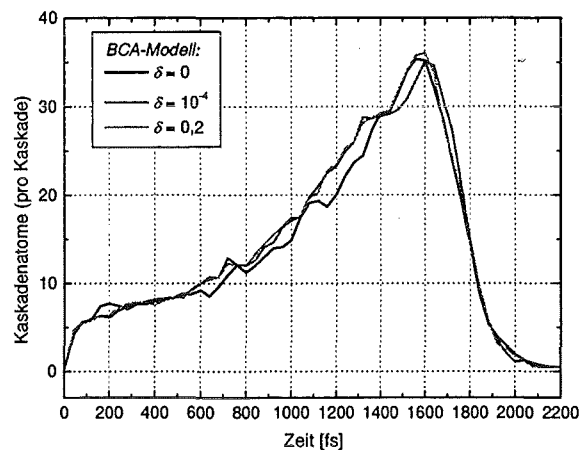


ABB. 5.16: Kaskadenprofile für Be mit 1 MeV.

Auch die Rückstoßspektren unterscheiden sich nur sehr schwach. Die Form des Spektrums bleibt unverändert, lediglich die absolute Höhe steigt für höheres  $\delta$  um etwa 5 %. Im zeitlichen Kaskadenprofil für 1 MeV (ABB. 5.16) erkennt man, daß unter Verwendung der verbesserten Formeln ( $\delta > 0$ ) der Anstieg etwas früher erfolgt, so daß bei Zeiten von etwa 600 fs bis zum Peak der Kaskade bei 1600 fs stets etwas mehr Atome in der Kaskade partizipieren. Entsprechende Verteilungen erhält man auch für die gestoppten Atome, so daß aus diesem stärkeren Anstieg die Defekterhöhung resultiert.

#### 5.4.2 Potential-Cutoff: $\text{Li}_4\text{SiO}_4$

Für un abgeschirmte Coulomb-Potentiale divergiert das Zeitintegral. Doch müssen in einer BCA-Simulation stets die Asymptoten der Teilchentrajektorien definiert sein, um so sukzessive binäre Stöße zu rechnen. Deshalb wird in der Quadratur des Zeitintegrals ein künstlicher Cutoff für das Potential eingeführt, der in jedem Fall eine Konvergenz erzwingt (s. S. 75ff.). Im folgenden wurden Simulationen für Li- und Si-Projektile in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  durchgeführt (ohne explizite Bindungsenergien), wobei der Cutoff  $\chi_c$  die Werte 0,5 nm (Referenzwert), 0,7 nm, 0,9 nm und 1,2 nm annimmt.



Die Defektanzahl variiert allgemein zwischen 0,5 nm und 0,7 nm am stärksten, während sie für größere Cutoffs kaum noch Änderungen zeigt. Das Vorzeichen der Änderung ist aber nicht für alle Defektspezies gleich: für Li und Si erniedrigt sich die Defektzahl für steigendes  $\chi_c$ , für O trifft das Gegenteil zu mit einem besonders starken Zuwachs bei 0,7 nm (im Mittel um 32 %). In der Summe bewirkt dies eine minimale totale Defektzahl bei 0,5 nm, wobei die Variation bei größeren Cutoffs kaum außerhalb der statistischen Fehlerbalken liegt. Lediglich bei 100 keV beträgt die Differenz etwas mehr als 10 %, ansonsten um 5 %.

Etwas differenzierter ist das Verhalten der Schädigungsenergie, die in Li und O nur moderat variiert (Zuwachs um max. 11 bzw. 17 %). Für Si sinkt sie stetig ab und weist bei  $\chi_c=1,2$  nm einen Abfall um über 40 % gegenüber dem Wert bei 0,5 nm auf. Konsequenz dieser Entwicklung ist ein kontinuierlicher Anstieg der effektiven Schwelle für Li von etwa 77 eV ( $\chi_c=0,5$  nm) bis 91 eV ( $\chi_c=1,2$  nm), ein Abfall der Schwelle für O bei  $\chi_c=0,7$  nm (von 77 eV auf 59 eV) und anschließender Anstieg bis auf 66 eV und ein drastischer Abfall für Si (von etwa 144 eV auf 94 eV). Die angeführten Werte der effektiven Schwelle beziehen sich dabei auf Li-Projektile in einem mittleren Energiebereich. Für Si-Projektile erhält man etwas niedrigere absolute Werte, wobei die Differenz für Li- und O-Defekte sehr gering ausfällt (größtenteils kleiner 2 %), nicht jedoch für Si-Defekte, wo die Reduzierung einige Prozent (bis zu 6 %) beträgt. Betrachtet man auch hier die Summe aus allen Defektspezies, so erhält man bei schwach variierender Schädigungsenergie eine effektive Schwelle, die lediglich bei 0,7 nm absinkt (von ca. 85 eV auf 79,5 eV), dann aber konstant bleibt.

Bezüglich der Anteile von einzelnen Atomtypen innerhalb der Kollisionskaskaden, wenn man den Cutoff von 0,5 nm auf 0,7 nm erhöht, erkennt man, daß etwa 20 % weniger Li- und Si-Atome verlagert werden. Während Li-Atome noch weniger unkorrelierte Rekombinationen eingehen, ist deren Anteil für Si-Atome relativ gesehen erhöht. Daraus resultiert dann die etwas stärkere Defektreduzierung von Si gegenüber der von Li. Der Anteil von O-Atomen in der Kaskade sinkt demgegenüber nur um 3 %. Zusätzlich treten weniger korrelierte Annihilationen auf (-10 %), die den Hauptbeitrag zur Rekombination von Defektpaaren leistet, so daß ein erheblicher Nettozugewinn an Defekten (+30 %) resultiert.

In den Rückstoßspektren (s. **ABB. 5.17**) erkennt man den Abfall bei Li-Atomen unterhalb etwa 100 eV. Dieser ist ab 20 eV bis hinunter zur Schwelle annähernd uniform. Ganz anders bei Si, wo der Bereich um 17 eV und knapp oberhalb des Energie-Cutoffs von 5 eV stark unterdrückt wird. Für O bleibt die Form der Spektrens im ganzen erhalten, wobei das Minimum um 25 eV und das Maximum um 13 eV noch prägnanter hervortreten. Dies ist ein Hinweis darauf, daß bei höheren Cutoffs für das Coulomb-Potential der Beitrag von Ersetzungsstößen und unkorrelierten Rekombinationen auf Si-Gitterplätze stark beeinträchtigt ist, während umgekehrt dieser für O-Gitterplätze erhöht ist (vgl. dazu die Parameteranalysen zu verschiedenen Bindungsenergien, Kapitel 5.3.6).

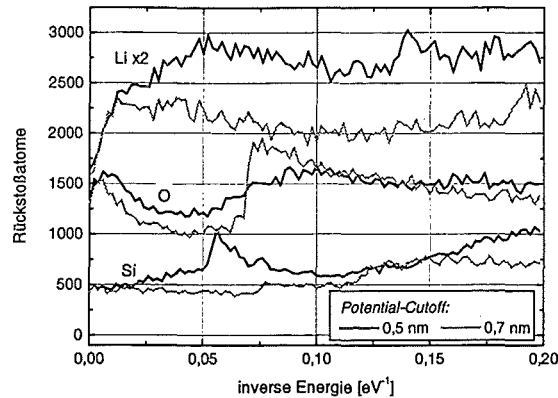


ABB. 5.17: Rückstoßdichten einzelner Konstituenten in  $\text{Li}_2\text{SiO}_4$ : Li-Kurve ist verdoppelt

## 5.5 Parameteranalyse: Modellparameter

### 5.5.1 Cutoff-Energie: Be

Ein wichtiger Parameter im MARLOWE-Modell ist die Energieschwelle, unterhalb derer ein Teilchen gestoppt und aus der Kaskade eliminiert wird. Diese ist nötig, weil für sehr kleine Energien die BCA versagt. Auch vergrößert eine zu kleine Cutoff-Energie die Simulationszeiten beträchtlich, ohne daß in diesem Energiebereich eine hinreichend verlässliche Auswertung gegeben ist.

Die Wahl einer festen Cutoff-Schwelle orientiert sich sowohl an der Bindungsenergie der jeweiligen Atome im Gitter, als auch an der spezifischen Fragestellung der Simulation. Für Schädigungsberechnungen sollte sie nicht zu hoch angesetzt werden, insbesondere ist die Praxis, sie gleich der aus analytischen oder molekulardynamischen Rechnungen ermittelten Verlagerungsschwelle zu setzen, nicht in jedem Fall angemessen. Dies wird anhand der hier vorgestellten Ergebnisse verdeutlicht.

Für Be (mit einer festen Bindungsenergie von 3,3 eV) wurden Simulationen durchgeführt, deren Cutoff zwischen 3,3 eV und 15 eV variiert. Ein höherer Cutoff führt demnach zu deutlich weniger Defekten. Konkret sinkt deren Anzahl nahezu unabhängig von der Primärenergie gegenüber dem Wert bei 3,3 eV um 11,3 % (5 eV), 22,8 % (7 eV), 35,8 % (10 eV) und 49,5 % (15 eV). Da die Schädigungsenergie praktisch konstant bleibt (lediglich die vergrößerte kinetische Energie der gestoppten Atome führt zu einer sehr schwachen Erhöhung) steigt die effektive Verlagerungsschwelle stark an.

In Kollisionskaskaden werden, wie bereits in einigen Abbildungen dokumentiert, vorrangig niederenergetische Rückstoßkerne erzeugt. So beträgt der Anteil der Atome mit Energien unterhalb 20 eV bei einem Cutoff von 3,3 eV immerhin 70 %. Ein höherer Cutoff reduziert folglich die Zahl der innerhalb einer Kaskade verlagerten Atome drastisch, was die eigentliche Ursache für die Defektreduzierung ist. Insofern kann der Verlust an Rekombinationen bei

höheren Cutoffs kompensiert werden. Die Defektreduzierung betrifft vorrangig Defektpaare mit kleiner Separation: während die gesamte Defektanzahl um etwa 51 % zwischen Cutoff 3,3 eV und 15 eV sinkt, verringert sich der Anteil von Defekten mit einer Separation von mehr als 0,8 nm um nur noch 33 %.

Eine einfache Korrelation der effektiven Schwelle  $Q$  auf Basis des effektiven Energiecutoffs (Cutoff-Energie  $E_c$  + Bindungsenergie  $E_b$ ) lassen die vorliegenden Ergebnisse im Gegensatz zu denen für verschiedene Bindungsenergien nicht erkennen. Jedoch zeigt der Vergleich der beiden Parameteranalysen, daß möglicherweise eine lineare Abhängigkeit zwischen  $Q$  und den beiden unabhängigen Größen  $E_c$  und  $E_b$  besteht. Aus den zur Verfügung stehenden Resultaten konnte eine lineare Korrelation mit  $E_c^{mod} = \frac{2}{3} E_c + E_b$  abgeleitet werden, d.h.

$$Q = A_Q + B_Q \cdot E_c^{mod} \tag{137}$$

Die Parameter  $A_Q$  und  $B_Q$  variieren leicht mit der Primärenergie ( $A_Q$  sinkt,  $B_Q$  steigt), liegen aber oberhalb etwa 10 keV bei etwa  $A_Q = 9,6 \text{ eV} (\pm 0,3)$  und  $B_Q = 5,5 (\pm 0,35)$ .

Auch mit der Anzahl der Defekte  $N_d$  kann eine sehr gute Korrelation mit  $E_c^{mod}$  gefunden werden, in diesem Fall jedoch mit  $\log(N_d)$ :

$$\log(N_d) = A_N(E) + B_N \cdot E_c^{mod} \tag{138}$$

Während  $A_N$  stark energieabhängig ist, bleibt  $B_N$  relativ konstant bei etwa  $-0,0398 (\pm 0,0010)$ .

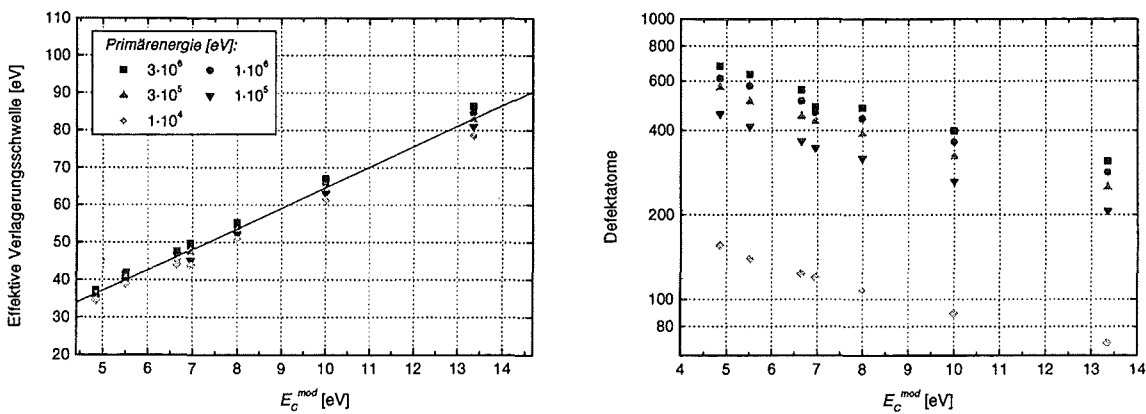


ABB. 5.18: Korrelationen für effektive Verlagerungsschwelle und Defektanzahl: Die Gerade ist gemäß Glg. (137) bestimmt, d.h.  $Q = 9,6 \text{ eV} + 5,5 \cdot E_c^{mod}$ .

### 5.5.2 Cutoff-Energie: $\text{Li}_4\text{SiO}_4$

In  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  wurden durch Li-Projektile initiierte Kaskaden simuliert, um den Einfluß des Energiecutoffs zu untersuchen. Gegenüber dem Referenzmodell wurde hier mit einer für jede Atomsorte festen Bindungsenergie (2 eV für Li, 10 eV für Si, 3 eV für O) operiert. Im Gegensatz zu Beryllium spielen, wie bei der Wahl der Bindungsenergie, wechselseitige Beeinflussungen eine wichtige Rolle. Deshalb werden im folgenden insgesamt sechs verschiedene Konstellationen der Cutoff-Energie betrachtet:

**TAB. 5.17:** Energiecutoff-Spezifikationen in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .

Fall	Cutoff-Energie [eV]		
	Li	Si	O
1	5	5	5
2	7	7	7
3	7	28	16
4	10,5	42	24
5	4	20	6
6	6	30	9

Die Fälle 1 und 2 behandeln den Cutoff auf einer gemeinsamen Energiebasis, die Fälle 3 und 4 auf einer Geschwindigkeitsbasis (1 eV/amu bzw. 1,5 eV/amu). In den Fällen 5 und 6 orientiert sich der jeweilige Cutoff an den Bindungsenergien (doppelter bzw. dreifacher Wert).

Bedingt durch die großen Bandbreiten in obigen Konstellationen erhält man z.T. drastische Abweichungen in den Defektzahlen. Maximale Differenzen betragen für Li-Defekte 65 % (zwischen Fall 4 und Fall 5), für O-Defekte 230 % (zwischen 4 und 1) und für Si-Defekte 270 % (zwischen 4 und 1). In der Summe bedeutet dies eine Abweichung von maximal 90 % (zwischen 4 und 1). Tendentiell führt also eine hohe Cutoff-Energie zu weniger Defekten. Die gegenseitige Beeinflussung wird aber deutlich z.B. zwischen den Fällen 1 und 5. Während die Defektsummen nahezu unverändert sind, steigt sie bei Li um etwa 15 %, fällt bei O um etwa 20 % und bei Si um mehr als 50 %. Betrachtet man die Entwicklung der Li-Defekte in den untersuchten Fällen, so zeigt sich, daß diese nur relativ schwach von den Bindungsenergien für O und Si abhängt. Im Vergleich von Fall 2 und Fall 3 ist dies besonders auffällig, da für Fall 3 die Bindungsenergien der anderen Atome um ein vielfaches höher liegen als für Fall 2, trotzdem praktisch unverändert viele Li-Defekte erzeugt werden.

Eine Skalierung der Ergebnisse ist, wie schon bei den Analysen verschiedener Bindungsenergien, relativ schwer zu erreichen. In Analogie zum Ansatz für Beryllium wurde für  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  eine lineare Korrelation mit einem modifizierten Cutoff ( $E_C^{mod} = \frac{2}{3} E_C + E_B$ ) gefittet. Dies ist für die effektive Schwelle  $Q$  wenig erfolgreich, jedoch für die Anzahl der Defekte mit einer

akzeptablen Genauigkeit. Wie bei Beryllium hängt also  $\log(N_d)$  linear von  $E_C^{mod}$  ab, mit einer Proportionalitätskonstanten von etwa  $-0,0274 (\pm 1,4 \cdot 10^{-3})$ .

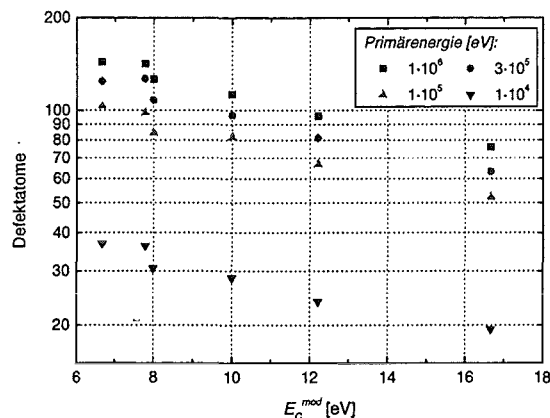


ABB. 5.19: Korrelation für Defektanzahl.

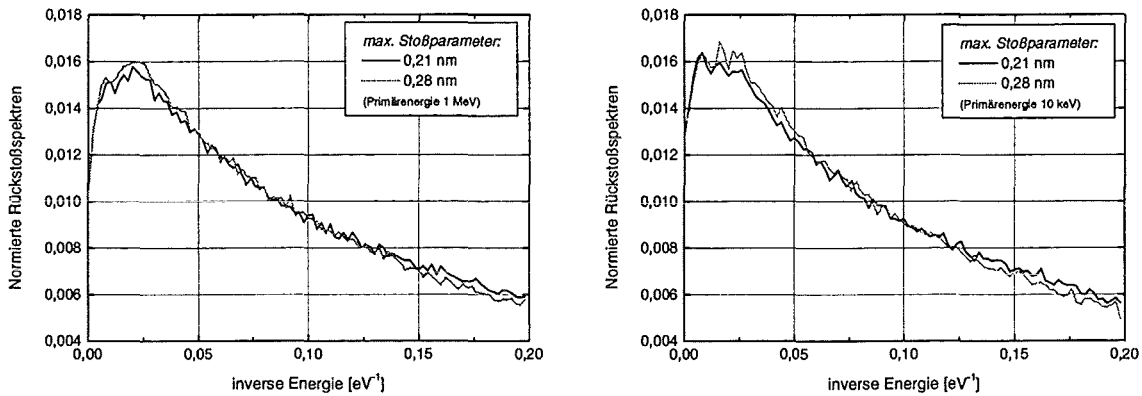
### 5.5.3 Stoßparameter: Be

In Targets mit stark abgeschirmten repulsiven Potentialen wird gewöhnlich der maximale Stoßparameter  $p_{max}$  auf etwa den Abstand nächster Nachbarn begrenzt. Dies basiert auf der Tatsache, daß das Potential im wesentlichen eine Nächste-Nachbarn-Wechselwirkung beschreibt, bzw. dessen effektive Reichweite in eben einem solchen Abstand endet. Andererseits führt eine Verkleinerung von  $p_{max}$  zur Unterdrückung vieler Kollisionen, insbesondere dann, wenn das Projektil in einem offenen Kanal fokussiert ist.

In Beryllium, in dessen hcp-Gitter der minimale Atomabstand 0,223 nm beträgt, wurden Simulationen mit vorgegebenem maximalen Stoßparameter von 0,21 nm bis 0,28 nm gerechnet. Zwischen diesen beiden Extremfällen erhöht sich die Anzahl der Kollisionen innerhalb einer Kaskade um etwa 14 %. In der Defektausbeute ergeben sich nahezu unveränderte Werte, wenn  $p_{max}$  im Bereich von 0,21 nm bis 0,25 nm liegt. Erst bei 0,28 nm tritt ein deutlicher Effekt auf, der sich oberhalb 1 keV in einer Reduzierung um etwa 6 % äußert. Bei diesem stark erhöhten Stoßparameter steigt die mittlere Zahl von simultanen Kollisionspartnern von etwa 1,44 (bei 1 MeV) auf 1,59 (d.h. +10 %). Demzufolge verteilt sich der Energieübertrag auf mehr Atome innerhalb der Kaskade. Insbesondere steigt der lokale inelastische Verlust deutlich an. Kinetische Energieüberträge unterhalb des Cutoffs nehmen leicht ab, sind also nicht, wie der erhöhte inelastische Verlust, verantwortlich für die Defektreduzierung bei 0,28 nm. Dies äußert sich auch in der relativen Zunahme von Ersetzungsstößen, die bei 0,21 nm wegen des kleineren Energieverlustes pro Kollision in diesem Maße nicht auftreten.

Die normierten Rückstoßspektren (s. ABB. 5.20) zeigen, daß der Anteil verlagertener Atome mit wenigen eV Rückstoßenergie bei  $p_{max} = 0,28$  nm absinkt. Ursache hierfür ist, daß bei kleinen

Projektilenergien durch die vermehrte Anzahl von Kollisionen mit mehr als einem Stoßpartner die Energieüberträge (elastisch und inelastisch) gesplittet werden, so daß ein einzelnes Atom im Durchschnitt etwas weniger Rückstoßenergie übernimmt. Man beachte aber, daß die absoluten Spektren in jedem Energiebereich sinken.



**ABB. 5.20:** Rückstoßdichten bei verschiedenen maximalen Stoßparametern: Primäres Be<sup>9</sup> mit 1 MeV (links) bzw. 10 keV (rechts)

Offensichtlich ist der maximale Stoßparameter bei Potentialen mit begrenzter Reichweite wenig kritisch für die Simulationsergebnisse. Das Potential sinkt so schnell mit dem Abstand ab, daß die Auswirkung entfernter Targets praktisch keine Rolle auf die Trajektorien der Kaskadenatome spielen. Eine Nächste-Nachbarn-Behandlung innerhalb der BCA-Simulation ist angemessen und reduziert signifikant die Rechenzeiten.

#### 5.5.4 Stoßparameter: $Li_2SiO_4$

Im Orthosilikat müssen zwischen den ionischen Konstituenten nun partiell abgeschirmte Coulomb-Potentiale berücksichtigt werden, deren Reichweite prinzipiell nicht beschränkt ist. Effektiv muß man aus praktischen Gründen (Rechenzeit und Speicherplatz) einen maximalen Stoßparameter vorgeben. Im folgenden werden Stoßparameter im Bereich von 0,23 nm bis 0,33 nm getestet. Dabei definiert die untere Grenze eine Nächste-Nachbarn-Wechselwirkung, während die obere Grenze einen Bereich von etwa 20 Gitterlagen umfaßt. In allen Fällen wird ein fester Kristallsuchradius von 0,35 nm verwendet, sowie keine expliziten Bindungsenergien.

Gegenüber dem Referenzfall mit 0,33 nm führt eine Erniedrigung von  $p_{max}$  zu vermehrter Defektproduktion. Vergleicht man die beiden Grenzfälle, so gilt hier wie bei Beryllium, daß mit kleinem maximalen Stoßparameter die Anzahl der Kollisionen drastisch reduziert ist (-20 %) und ebenso, aber schwächer, die mittlere Targetzahl pro Kollision (-10 %). Wegen der Anpassung der Abschirmlänge des lokalen Energieverlusts an den maximalen Stoßparameter bedeutet dies zusätzlich eine engere Lokalisierung des inelastischen Verlusts in jeder Kollision.

Dann führen entfernte Stöße (d.h. kleine Projektilenergien) zu verringerten inelastischen Energieverlusten, nahe Stöße (bei großen Projektilenergien) jedoch zu einem Zuwachs. Insofern gleichen sich dann der Effekt von weniger Kollisionen mit dem eines höheren Energieverlustes bei hohen Projektilenergien aus. Während also auch die Schädigungsenergie bei Primärenergien kleiner etwa 100 keV mit sinkendem  $p_{\max}$  sehr schwach abnimmt, steigt sie ab 300 keV wieder an und weist bei 1 MeV einen Zuwachs von etwa 8 % auf.

Betrachtet man die einzelnen Konstituenten in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ , so stellt man für Li und Si ein paralleles Verhalten fest, während für O die Defektzahl bei sinkendem  $p_{\max}$  abnimmt. Dies liegt daran, daß zwar auch für Li-Atome die Anzahl der in der Kaskade beteiligten Atome etwa linear mit  $\log(E)$  ansteigt (oberhalb  $10^4$  eV) und in etwa auf dem gleichen Niveau wie die der O-Atome liegt, die Zahl der Kollisionen aber sehr viel stärker als bei O ansteigt. Insofern zeigt sich hier, daß die neu verlagerten Li-Ionen relativ weit im Kristallgitter propagieren können und so einen hinreichend großen Abstand zur gerade erzeugten Leerstelle gewinnen. Dann ist die Wahrscheinlichkeit, daß keine Rekombination eintritt, größer als bei O-Ionen, die sehr schnell abgebremst werden. Die gegenläufigen Defektentwicklungen für Si und O korrigieren sich gegenseitig, so daß der Nettoeffekt im wesentlichen aus den Änderungen im Li-Subgitter resultiert.

Exemplarisch für Li-Projektile mit 1 MeV kinetischer Energie sollen die Änderungen in den jeweiligen Rückstoßspektren diskutiert werden (s. **ABB. 5.21**). Für Li führt die Erhöhung von  $p_{\max}$  zu einer deutlichen Reduzierung unterhalb etwa 50 eV Rückstoßenergie. Oberhalb davon werden sogar mehr Li-Atome freigesetzt. Im Falle der O-Atome ist die Reduktion im gesamten relativ schwach, jedoch prägnant zwischen etwa 50 eV und 14 eV. Unterhalb von etwa 10 eV steigt das Profil ebenso stark an wie oberhalb etwa 250 eV. Diesen Zuwachs für hohe Rückstoßenergien findet man auch bei Si (hier ab etwa 70 eV), doch noch prägnanter ist die Zunahme im Bereich zwischen etwa 15 eV und 18 eV auf Kosten der niederenergetischen Rückstoßkerne unterhalb etwa 12 eV. Dies führt dazu, daß Ersetzungsstöße mit den O-Atomen im Silikat-Tetraeder nicht abnehmen, obwohl die Zahl der Si-Atome in der Kaskade um ca. 8 % ansteigt. Da außerdem aufgrund des stark vergrößerten Wechselwirkungsbereichs etwa 50 % mehr Si-Gitterplätze Energien unterhalb des Cutoffs erhalten, steigt die Schädigungsenergie für Si-Ionen stark an (um etwa 30 %). Die Si-Ionen werden also bei großem maximalem Stoßparameter schnell gestoppt, was auch an der Lage der Si-Zwischengitterpositionen abzulesen ist. Deren Anzahl verringert sich vorrangig in der Nähe der Li-Lagen, weniger stark im Bereich des Silikat-Tetraeders. Für die aus den Tetraederecken verlagerten O-Ionen führt die verstärkte Wechselwirkung zu stabilen Zwischengitterpositionen in der Nähe von O-Gitterlagen, so daß solche Ionen nicht mehr unkorreliert rekombinieren. Die Defektanzahl steigt folglich proportional der Zunahme von O-Ionen an O-Zwischengitterpositionen.

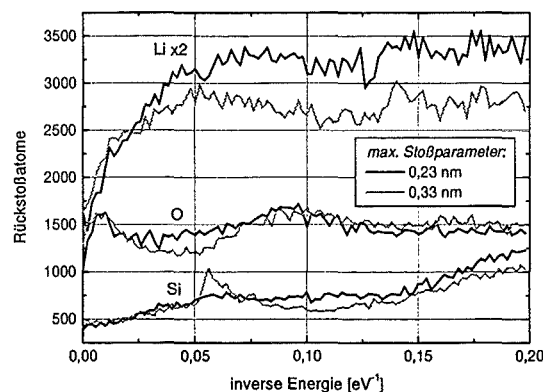


ABB. 5.21: Rückstoßdichten einzelner Konstituenten in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  bei verschiedenen maximalen Stoßparametern: Li-Kurve ist verdoppelt.

### 5.5.5 Kristallsuchradius: $\text{Li}_4\text{SiO}_4$

In enger Verbindung mit dem vorgegebenem maximalen Stoßparameter  $p_{\max}$  steht der Kristallsuchradius  $d_{\max}$ , der die Nachbarn eines jeden Gitterplatzes bestimmt. Ist  $d_{\max}$  kleiner als  $p_{\max}$ , so wird effektiv nicht der ganze erlaubte Bereich an Stoßparametern überstrichen. Wie bereits in Kap. 4.1.3 erläutert, muß  $d_{\max}$  sogar merklich größer sein, um Randeffekte in der Kristallsuche auszuschließen. Andererseits führt ein sehr großer Kristallsuchradius zu einem überproportionalen Anwachsen von Stoßauswertungen, so daß Simulationsrechnungen, vor allem für die in dieser Arbeit bedeutenden leichten Ionen mit Energien im MeV-Bereich, enorme CPU-Zeiten benötigen. Deshalb wurden für Li-Projektile in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  (ohne Bindungsenergien) Tests für verschiedene Kristallsuchradien (von 0,35 nm bis 0,41 nm) durchgeführt. Als maximaler Stoßparameter wird, wie in den anschließenden Referenzrechnungen, der Wert 0,33 nm angesetzt.

Die Defektentwicklung ist mit wachsendem  $d_{\max}$  uneinheitlich, sowohl in den einzelnen Atomspesies als auch in der Summe. Diese selbst ändert sich nur schwach, maximal um -7 % bei 1 MeV. Stärker nehmen Li-Defekte ab (-13 %), während O- und Si-Defekte über den gesamten Primärenergiebereich sowohl positive als auch negative Abweichungen aufweisen. Allgemein findet man, wenn man die Beteiligung der einzelnen Konstituenten in der Kaskade betrachtet, ein Verhalten vor wie beim maximalen Stoßparameter, d.h. ein größerer Kristallsuchradius führt zu einem starken Anwachsen der durch Li-Kaskadenatome verursachten Kollisionen, wobei auch hierbei die Anzahl der verlagerten Atome drastisch reduziert ist.

Anders als bei der Variation des maximalen Stoßparameters ändert sich in den Tests für  $d_{\max}$  die Form des Rückstoßspektrums für alle Atome praktisch nicht. Dies deutet darauf hin, daß durch die zusätzlichen entfernten Targets zwar Energie aus der Kaskade gezogen wird, die verlagerten Atome aber über eine unveränderte Kinematik freigesetzt werden.



Eine Vergrößerung des Kristallsuchradius beeinflusst also die Kaskadenresultate nur in einem relativ kleinen Rahmen. Besonderes Augenmerk muß lediglich auf das Verhältnis von  $d_{\max}$  zu  $p_{\max}$  gelegt werden, wobei  $p_{\max}$  sich an der Reichweite des Potentials orientieren sollte und  $d_{\max}$  etwas größer zu wählen ist.

### 5.6 Referenzmaterial

Nach den Parameteranalysen der vorigen Kapitel werden nun die für die abschließenden Schädigungsrechnungen relevanten Kaskadensimulationen vorgestellt und analysiert. Zur Anwendung kommen dabei die in Kap. 5.2 zusammengestellten Referenzdaten und die gemäß der Ergebnisse der Parameteranalysen geeignet gewählten Modellparameter. Simuliert wurden jeweils Kaskaden durch primäre Rückstoßkerne (PKA's) im gesamten interessierenden Energiebereich, d.h. bis zur maximal erreichbaren PKA-Energie im 14 MeV-Neutronenfeld.<sup>1</sup>

Je nach Energie wurden bis zu 1000 (unterhalb 1 keV), 500 (bis 10 keV) und bei höheren Energien üblicherweise 200 bis 300 Kaskaden gerechnet, um eine verlässliche statistische Auswertung zu ermöglichen. Lediglich für He<sup>4</sup>-PKA's, die sowohl in Beryllium als auch in Li<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub> auftreten, wurde aufgrund der extrem ansteigenden Simulationszeiten die Zahl der Kaskaden oberhalb 10 MeV auf 100 begrenzt<sup>2</sup>.

#### 5.6.1 Beryllium

Die in Beryllium für die Verlagerungsschädigung im Fusionsneutronenfeld maßgeblichen PKA's sind Be<sup>9</sup> (aus elastischer Streuung), He<sup>4</sup> (aus (n,2n) und (n,α)) und He<sup>6</sup> (aus (n,α)). Für sie wurden zunächst Kaskaden in reinem monokristallinen Beryllium simuliert. Dabei wird der Kristall als statisch angesehen, d.h. die Atome befinden sich in der Matrix auf exakten Gitterpositionen. Da jedoch im Blanket erhöhte Temperaturen herrschen, wurde in einer Folge von Simulationen die Temperatur des Kristalls bis auf 900 K erhöht. Die mittleren thermischen Auslenkungen aus der exakten Ruheposition können aus dem Debye-Modell mit der Debye-Temperatur 1440 K bestimmt werden. Zusätzlich wurde der Einfluß der anisotropen thermischen Gitteraufweitung untersucht, die sich aus den vorliegenden Daten ergibt.

Neben der Modellierung für reines Beryllium wurden Targetmodelle mit einem zunehmenden Anteil an Sauerstoff aufgestellt. Dabei wird die Struktur der eigentlich vorliegenden Phase BeO dahingehend approximiert, daß die O-Verunreinigungen gemäß der EZ des BeO tetraedrische Zwischengitterplätze im Be-Gitter einnehmen.

---

<sup>1</sup> vgl. typische Kaskadenbilder im Anhang, S. 239ff.

<sup>2</sup> Selbst dann werden mindestens 10 CPU-Stunden auf einer IBM RS6000-Workstation nur für einen Energiepunkt benötigt.

### 5.6.1.1 Reines Material

Wichtigste Kaskadensimulation für Schädigungsrechnungen ist diejenige in reinem Material. Dazu wurden die Referenzdaten für Beryllium verwendet, d.h.

- statischer Kristall (0 K) mit Gitterkonstanten bei 293 K
- AMLJ-Potential mit homonuklearen Parametern
- kombinierter inelastischer Energieverlust (LSS, Bethe-Bloch)  
Gleichverteilung von lokalem und nichtlokalem Energieverlust  
Standardwert für  $Z_2$ -Oszillations-Korrektur  $c_k$
- lokales Bindungsmodell mit maximaler Bindungsenergie von 3,3 eV.

Gestartet wurden die Kaskaden durch isotrop emittierte primäre  $\text{Be}^9$ -,  $\text{He}^4$ - und  $\text{He}^6$ -Rückstoßkerne an ausgewählten Energiepunkten bis zur jeweiligen maximalen PKA-Energie im Blanket (vgl. auch die Kaskadenstrukturen, ABB. 8.1 bis ABB. 8.8, S. 239ff.).

#### Schädigungsdaten

Die prinzipiellen, schädigungsrelevanten Ergebnisse dieser Kaskaden sind der folgenden Abbildung zu entnehmen.

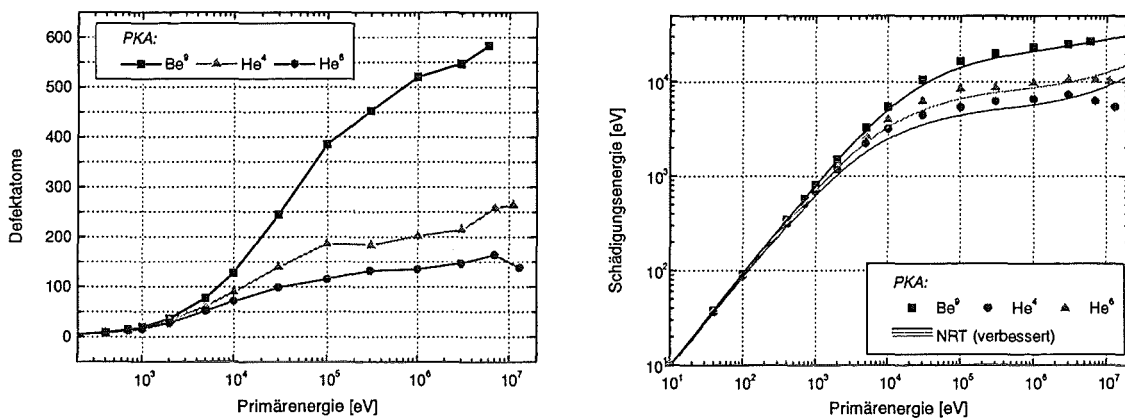


ABB. 5.22: Schädigungsfunktionen in reinem Beryllium: Vergleichskurven für  $E_{dam}$  aus Ref. [118].

Im Verlauf der Schädigungsenergie  $E_{dam}$  zeigt sich die qualitativ gute Übereinstimmung mit den analytischen Resultaten nach Lindhard-NRT bzw. einem verbesserten Modell [118]. Die relativen Differenzen sind jedoch teilweise beträchtlich. Unterhalb von etwa 1 keV liegen die Simulationsresultate gleichauf mit NRT. Größte positive Abweichungen ergeben sich dann um etwa 100 keV, wobei die Differenz für  $\text{Be}^9$  ca. 15 %, für He-PKA's ca. 20 % bis 25 % beträgt. Wesentlicher qualitativer Unterschied zwischen Simulation und NRT-Resultat ist das Verhalten bei sehr hohen Energien, auffällig besonders an den leichten Ionen.

Im klassischen Lindhard-Modell erwartet man wegen des stetigen Anstiegs des inelastischen Energieverlustquerschnitts eine Sättigung der Schädigungsenergie, die für leichte Ionen früher beginnt (um etwa  $10^5$  eV für  $\text{He}^4$ ) als für schwerere Ionen. Dies wiederum liegt am Verhältnis von nuklearem zu elektronischem Bremsquerschnitt, das für leichte Ionen kleiner ist. Deshalb steht für sie bei jeder Primärenergie weniger kinetische Energie für Rückstoßkerne zur Verfügung.

Im verbesserten Modell [118], das neben der Verwendung des ZBL- anstelle des Thomas-Fermi-Potentials im wesentlichen die Implementierung des Bethe-Bloch-Querschnitts beinhaltet, sinkt der inelastische Energieverlust oberhalb des Bethe-Maximums stark ab. In diesem Fall kann  $E_{dam}$  bei höheren Energien, wenn auch sehr schwach, noch ansteigen. Dieser Anstieg ist vor allem bei  $\text{He}^4$  schon bei einigen MeV auszumachen.

Demgegenüber zeigen die Simulationsresultate für alle PKA's eine Sättigung und für  $\text{He}^4$  sogar einen Abfall oberhalb 3 MeV. Ursache hierfür ist, wie bereits in den Parameteranalysen erläutert (s. S. 109ff.), das vermehrte Auftreten von streifenden Kollisionen, die lediglich zu inelastischen Energieverlusten beitragen.

Während im NRT-Modell aus  $E_{dam}$  mit der festen Verlagerungsschwelle  $E_d$  die Anzahl stabiler Frenkeldefekte  $N_d$  berechnet wird, liefert die BCA-Simulation in natürlicher Weise die Defektausbeute nach Rekombination naher Defektpaare. Auch hier sind  $E_{dam}$  und  $N_d$  in erster Näherung direkt proportional. Tatsächlich zeigt die effektive Schwelle  $Q = E_{dam}/N_d$  eine ausgeprägte Energieabhängigkeit (vgl. ABB. 5.23). Im Falle der He-Projektile beachte man, daß diese je nach Primärenergie in etwa 40 % bis 70 % aller Kaskaden einen Zwischengitterplatz besetzen und nicht rekombinieren. Deshalb muß zu den Be-Schädigungsdaten die entsprechenden für  $\text{He}^4$  bzw.  $\text{He}^6$  addiert werden, d.h. im Mittel etwa 0,5 Defekte und 3,2 eV für  $E_{dam}$ . Auswirkungen auf die Resultate erwartet man folglich nur bei kleinen Energien, unterhalb etwa einhundert eV.

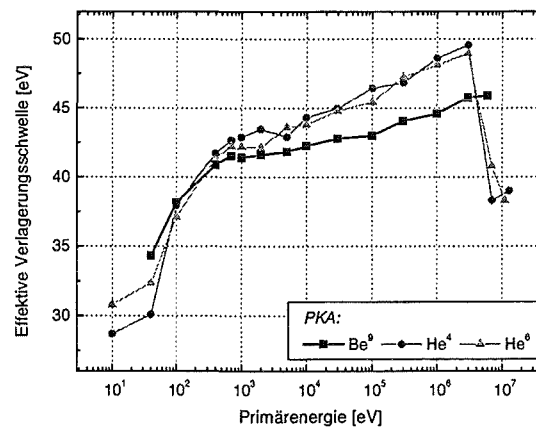


ABB. 5.23: Effektive Verlagerungsschwellen für verschiedene PKA's in reinem Beryllium.

In diesem Energiebereich steigt  $Q$  sehr stark an, denn wegen des Vorherrschens von Ersetzungsstößen ist hier die Defekterzeugung im Mittel relativ erleichtert. Ab etwa 1000 eV steigt  $Q$  näherungsweise konstant pro logarithmischem Energieschritt an. Hier nehmen mit steigender Primärenergie die Anzahl der Kollisionen in der Kaskade sehr stark zu, aber nur unterdurchschnittlich die Zahl verlagerteter Gitteratome. Denn die überwiegende Mehrzahl der Kollisionen wird von niederenergetischen Be-Rückstoßkernen (knapp oberhalb der Cutoff-Energie) verursacht, die kaum in der Lage sind, weitere Atome freizuschlagen. Ihr Anteil steigt nun bei höherer Primärenergie, so daß Energietransfers unterhalb des Cutoffs zunehmen, deren relativer Anteil an  $E_{dam}$  entsprechend ansteigt. Zudem wächst die Zahl korrelierter Annihilationen relativ zu unkorrelierten Rekombinationen, wobei aber die Summe gegenüber der Gesamtzahl verlagerteter Gitteratome praktisch unverändert bleibt.

Eine ähnliche Differenz der Rückstoßspektren findet man zwischen verschiedenen PKA's (s. ABB. 5.24). Demnach liegt z.B. der Anteil von Be-Atomen oberhalb 50 eV für He<sup>4</sup>-Projektilen von 30 keV bei 14,4 %, für Be<sup>9</sup> derselben Energie dagegen bei 15,8 %. Diese kleine Differenz ist ebenso entscheidend für die Defekterzeugung wie die zwischen verschiedenen Primärenergien: für Be<sup>9</sup> von 1 MeV sinkt der Anteil wieder auf 14,9 %, analog steigt die effektive Schwelle.

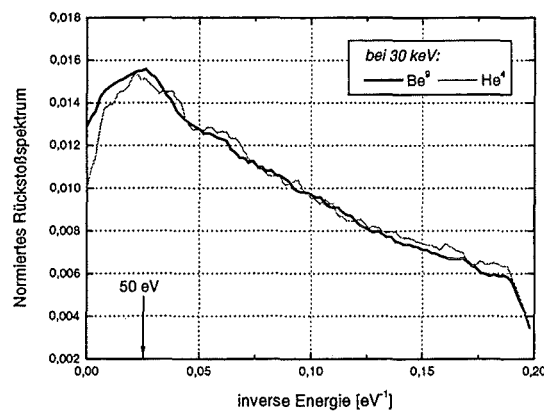


ABB. 5.24: Rückstoßdichten bei 30 keV: Vergleich zwischen Be<sup>9</sup>- und He<sup>4</sup>-initiierten Kaskaden.

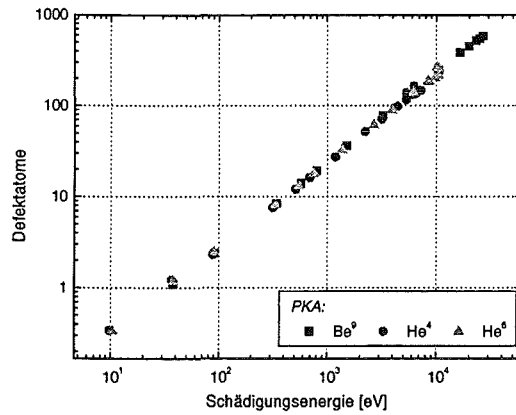


ABB. 5.25: Korrelation zwischen  $N_d$  und  $E_{dam}$  in Beryllium.

Im  $N_d$ - $E_{dam}$ -Diagramm (ABB. 5.25) liegen alle Simulationsresultate annähernd auf einer Geraden im doppelt-logarithmischen Maßstab, bis auf sehr kleine Energien und die Werte für He-PKA's oberhalb 3 MeV. Als gemeinsame Interpolation findet man

$$N_d = 0,0246(\pm 2 \cdot 10^{-3}) E_{dam}^{0,9886(\pm 8 \cdot 10^{-3})} \quad (\chi^2 = 0,25) \quad (139)$$

Wie im NRT-Modell kann auch an die Simulationsresultate eine analytische  $E_{dam}$ - $E$ -Abhängigkeit gefittet werden. Dabei ist es zweckmäßig die sogenannte reduzierte Energie  $\varepsilon$  zu verwenden, wobei

$$\varepsilon = E \frac{a M_2}{Z_1 Z_2 e^2 (M_1 + M_2)} \quad (140)$$

ist und  $a$  die Abschirmlänge des interatomaren Potentials. Wegen der Schwierigkeit, diese für AMLJ eindeutig zu definieren, und weil die obige Normierung üblicherweise unabhängig vom jeweiligen Potential durchgeführt wird, soll für  $a$  der Lindhard-Wert

$$a = \frac{0,8853 a_0}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}} \quad (141)$$

verwendet werden.

In Analogie zum NRT-Modell wurde folgende analytische Form gewählt:

$$E_{dam} = \frac{E}{(1 + a_1 \varepsilon^{a_2} + a_3)} \quad (142)$$

mit der Randbedingung, daß der Koeffizient  $a_2$  für alle PKA's denselben Wert aufweisen soll. Für die einzelnen PKA's erhält man damit als beste Parameter die in der folgenden Tabelle aufgeführten Werte.

TAB. 5.18: Fitparameter für NRT-ähnliche  $E_{dam}(E)$ -Abhängigkeit: vgl. Glg (142).

PKA	$a_1$	$a_2$	$a_3$
Be <sup>9</sup>	0,1586( $\pm 4 \cdot 10^{-3}$ )	0,9428( $\pm 4 \cdot 10^{-3}$ )	0,3172( $\pm 0,07$ )
He <sup>4</sup>	0,2006	0,9428	0,147
He <sup>6</sup>	0,1563	0,9428	0,262

### Defektcharakterisierung

Unabhängig vom primären Rückstoßkern erhält man praktisch identische normierte Defektverteilungen. Der Abstand zwischen Defektatom und zugehörigen Gitterfehlstelle ist dabei im allgemeinen recht klein (wenige zehntel Nanometer), wobei sich dies für höhere Energien noch verstärkt. Separationen oberhalb 1 nm findet man nur bei 30 % bis 25 % aller Defekte. Der Abfall mit steigendem Abstand ist nicht streng monoton, da wegen der diskreten Gitterabstände gewisse Abstände wahrscheinlicher sind.

Für He-PKA's ändert sich oberhalb 3 MeV auch das Separationsprofil, indem deutlich mehr Defektpaare mit kleinem Abstand auftauchen. Diese wiederum sind Kandidaten für folgende Rekombinationen, so daß der beobachtete Abfall der Defektzahlen noch größer werden kann.

Das Separationsprofil ist direkte Konsequenz des Rückstoßspektrums: viele Gitteratome werden mit Energien knapp oberhalb des Cutoffs freigeschlagen und können sich nur unweit des freigewordenen Gitterplatzes bewegen. Wenn nicht sogar spontane Annihilation eintritt, werden also überwiegend nahe Defektpaare erzeugt. Deshalb ist auch der Anteil korrelierter Defektpaare, bei dem das Zwischengitteratom von der zugehörigen Leerstelle stammt, signifikant (etwa 20 %) und steigt für He-Ionen oberhalb 3 MeV auf bis zu 50 %.

Die Zwischengitteratome werden in den Simulationen sehr präzise den definierten Zwischengitterplätzen (Oktaeder A, Tetraeder B) zugeordnet, nur ein verschwindender Bruchteil befindet sich in nächster Nähe eines regulären Gitterplatzes. Gemäß der Multiplizität der Zwischengitterpositionen erhält man etwa doppelt so viele B- wie A- Zwischengitteratome. Doch ist die Aufteilung nicht völlig symmetrisch, denn B-Plätze werden leicht bevorzugt, so daß dort etwa 4 % bis 6 % mehr Be-Atome pro Zwischengitterplatz gezählt werden. Diese Verteilung wird für alle primären Projektile unabhängig von deren Energie angenommen.

Aufgrund der leichten Atome in einem relativ offenen Gitter skaliert das Volumen der Kaskade, definiert als Vereinigung aller kubischen Volumina fester Kantenlänge um jeden Gitterdefekt, direkt mit der Anzahl der Defekte. Die Defektdichte ist also praktisch unabhängig

von der Primärenergie und beträgt etwa ein Defektpaar pro  $0,350 \text{ nm}^3$  (Würfel mit ca.  $0,7 \text{ nm}$  Kantenlänge).

Leerstellen bilden zu einem hohen Maß kleine Cluster von 2 oder 3 Leerstellen. Der Anteil von Leerstellen in Clustern sinkt mit steigender Primärenergie von etwa 47 % bei 1 keV auf 40 % bei 3 MeV. Vorrangig liegen Dupletts (doppelte Leerstellen) vor, etwa zehnfach mehr als Tripletts, wobei Paare in der Basalebene ( $d = 0,229 \text{ nm}$ ) gegenüber Nächsten-Nachbarn ( $d = 0,223 \text{ nm}$ ) bevorzugt sind. Dieses Verhalten deckt sich mit molekulardynamischen Rechnungen [119], nach denen Leerstellenpaare in der Basalebene etwas stärker gebunden sind als Paare auf benachbarten Ebenen.

Tripletts bilden sich schwerpunktmäßig auf zwei übereinanderliegenden Basalebene und nur untergeordnet innerhalb einer Basalebene. Zu den typischen Konfigurationen gehören zwei benachbarte Leerstellen in der Ebene plus eine dritte im Nächsten-Nachbarn-Abstand oder aber in größerer Entfernung ( $d = 0,319 \text{ nm}$ ), sowie zwei Leerstellen im doppelten Abstand innerhalb der Basalebene und eine symmetrisch dazu liegende Leerstelle in der benachbarten Ebene. Außerdem findet man Tripletts über 3 Basalebene, wobei jeweils zwei Leerstellen nächste Nachbarn sind.

Konkret produzieren  $\text{Be}^9$ -PKA's von 3 MeV im Mittel etwa 328 Singlett-Leerstellen, 91 Dupletts und 10 Tripletts. Der Anteil von Dupletts innerhalb der Basalebene beträgt 37 %, von nächsten Nachbarn 34 %, bezogen jeweils auf die Gesamtzahl. Die oben vorgestellten Tripletts-Konfigurationen machen etwa 70 % aller Tripletts aus, nur etwa 10 % liegen in einer Basalebene.

Zwischengitteratome liegen anders als Leerstellen überwiegend einzeln vor, nur 1 % bis 2 % bilden Dupletts. Deren Separationsverteilung ist kontinuierlich, wobei große Abstände bis zur vorgegebenen maximalen Clusterlänge ( $0,358 \text{ nm}$ ) bevorzugt sind.

### 5.6.1.2 Temperaturabhängigkeit

Gegenüber dem Idealfall eines statischen Kristalls, d.h. alle Gitteratome befinden sich auf exakten Gitterpunkten (höchste Symmetrie), führen thermische Gitterschwingungen zu einer Abschwächung der strengen Kristallsymmetrie. Da die Schwingungsperioden ( $10^{-13} \dots 10^{-12} \text{ s}$ ) um Größenordnungen länger sind als die Zeitskala einzelner Stoßvorgänge in der Kaskade, kann man die Positionen der Gitteratome während der Kaskadenausbreitung als eingefroren betrachten.

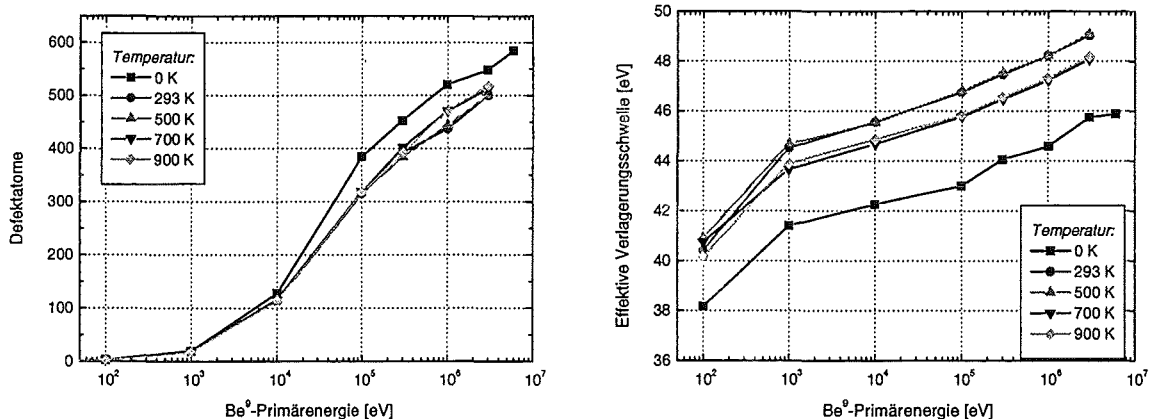
Für Beryllium wird die mittlere quadratische Auslenkung  $\langle u^2 \rangle$  aus dem Debye-Modell ( $\theta_D = 1440 \text{ K}$ ) berechnet. Dabei sind die einzelnen Elongationen isotrop, unkorreliert und gaußverteilt. Zusätzlich zur harmonischen Komponente der thermischen Gitterbewegung führen anharmonische Terme zur Gitterexpansion, die bei erhöhten Temperaturen berücksichtigt werden muß.

Im folgenden soll der Einfluß beider Effekte, Störung der Gittersymmetrie und Dichtereduzierung, am Beispiel von Be<sup>9</sup>-PKA's untersucht werden. Gegenüber dem statischen Modell werden zunächst die Gitterschwingungen bei 293 K addiert. Anschließend wird die Temperatur sukzessive auf 500 K, 700 K und 900 K erhöht unter Berücksichtigung der anisotropen Gitterexpansion. Zum Vergleich werden auch ausgesuchte Fälle mit unveränderten Gitterkonstanten herangezogen.

Wegen der hohen Debye-Temperatur sind die mittleren thermischen Auslenkungen (genauer: „root mean square“-Werte,  $\sqrt{\langle u^2 \rangle}$ ) selbst bei 900 K sehr klein (< 4 % des Nächsten-Nachbarn-Abstands), was aus folgender Tabelle ersichtlich wird:

**TAB. 5.19:** Gitterkonstanten von Be bei erhöhten Temperaturen.

Temperatur [K]	rms [nm]	Gitterkonstanten	
		a,b [nm]	c [nm]
293	0,0060	0,2286	0,3583
500	0,0069	0,2295	0,3595
700	0,0078	0,2303	0,3605
900	0,0087	0,2311	0,3615



**ABB. 5.26:** Temperaturabhängigkeit der Kaskadenresultate in Be: Defektatome (links) und effektive Verlagerungsschwelle (rechts).

Die Defektausbeute (vgl. ABB. 5.26, links) zeigt eine deutliche Reduktion, wenn thermische Schwingungen bei 293 K berücksichtigt werden. Die Reduzierung bezüglich den Werten im statischen Kristall steigt von 5 % (bei 100 eV) auf etwa 18 % (um 10<sup>5</sup> eV) und sinkt dann wieder auf ca. 5 % bis 9 % ab. Dieser Effekt verstärkt sich nicht, wenn man von 293 K auf höhere Temperaturen geht. Ganz im Gegenteil vermindert sich die Reduktion ab 700 K vor allem oberhalb 300 keV, wo die Defektzahl gegenüber kleinerer Temperatur um wenige Prozent zulegt.



Da die Schädigungsenergien nur eine vergleichsweise schwache Änderung aufweisen, zeigen die effektiven Schwellen einen merklichen Temperatureinfluß (s. ABB. 5.26, rechts). Sie liegen für 293 K und 500 K um etwa 3,3 eV, für 700 K und 900 K nur um 2,7 eV oberhalb des statischen Werts.

Der Einfluß der thermischen Schwingungen und der Gitteraufweitung äußert sich darin, daß die Kaskadenatome im Mittel mehr Kollisionen eingehen. Dies liegt daran, daß durch die Auslenkung der Gitteratome aus ihrer Ruhelage die Bedingungen für simultane Stöße schlechter werden, d.h. die Wahrscheinlichkeit für eine Konstellation mit zwei oder mehr Targetatomen sinkt (z.B. bei 1 MeV von ca. 36 % auf 33 %). Demzufolge erhöht sich die Zahl der Kollisionen ohne eine analoge Erhöhung der Zahl betroffener Targetatome. Daraus resultiert eine reduzierte Effektivität für den kinetischen Energieübertrag pro Kollision und Targetatom; in der Folge werden weniger Gitteratome verlagert bei einem relativ großen Energieübertrag ( $E_{dam}$ ). Insofern sinkt die Defektzahl, und die effektive Schwelle steigt.

Das normierte Rückstoßspektrum ändert sich beim Übergang zum thermischen Gitter nicht, d.h. die Kinematik der binären Kollisionen bleibt unverändert. Doch verlängert sich die Zeit, in der Verlagerungen auftreten, was deutlich im zeitlichen Kaskadenprofil zu erkennen ist. Während die Kaskade im statischen Gitter sehr schnell ausläuft, ist dieser Abfall im thermischen Gitter deutlich abgeflacht, insbesondere wenn man noch das niedrigere Maximum beachtet (bei 300 keV, vgl. ABB. 5.27, links).

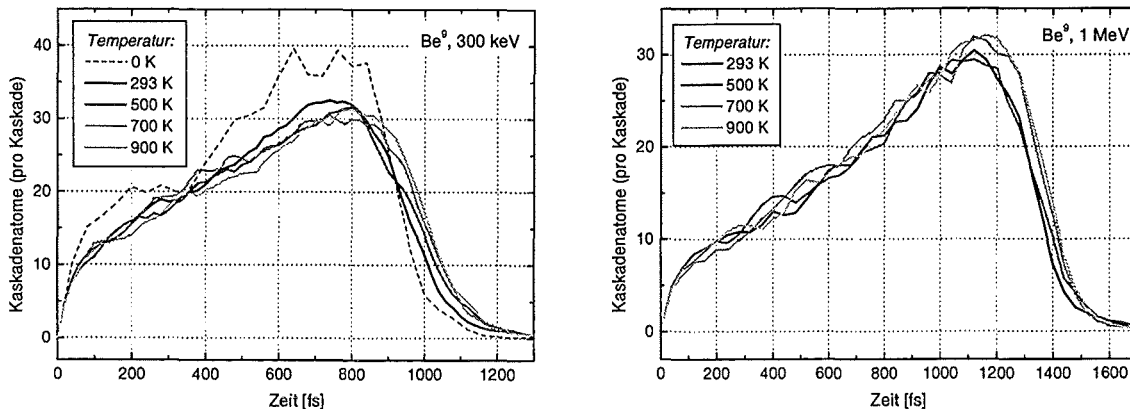


ABB. 5.27: Kaskadenprofile in Be bei verschiedenen Temperaturen: primäres Be<sup>0</sup>-PKA mit 300 keV (links) bzw. 1 MeV (rechts)

Bei Erhöhung der Temperatur ändern sich die oben beschriebenen Charakteristiken im allgemeinen nur unwesentlich. Da aber das Gitter weniger dicht ist (durch thermische Expansion), erhöhen sich Reichweite und Abbremszeit der primären Projektile. So steigt z.B. bei 3 MeV die radiale Reichweite von 5505 nm auf 5680 nm (+3 %), die Abbremszeit von 1865 fs auf 1950 fs (+4 %). Konsequenz davon ist, daß die Kaskadenprofile noch etwas langgestreckter

werden, wobei zwischen 700 K und 900 K kaum noch eine Differenz auszumachen ist (s. auch 1 MeV, ABB. 5.27, rechts).

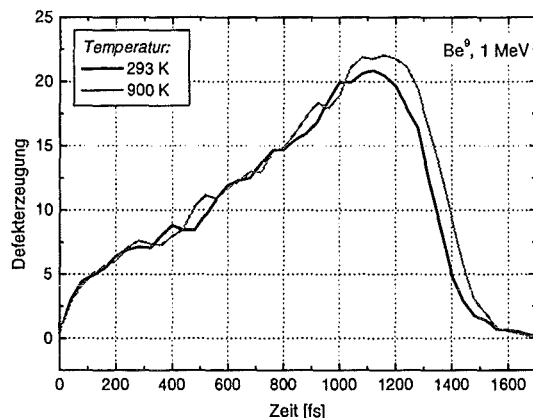


ABB. 5.28: Defektproduktion im Kaskadenverlauf: Stabile Punktdefekte (je 40 fs) durch ein primäres Be<sup>9</sup>-PKA mit 1 MeV.

Vergleicht man die Kaskaden bei 293 K und bei 900 K, so stellt man fest, daß durch die Verlängerung der Kaskaden gerade in diesem Zeitbereich mehr Defekte produziert werden (vgl. ABB. 5.28). Konkret sind es 44 % aller Defekte bei 293 K bzw. 47 % bei 900 K nach 1000 fs seit Kaskadenbeginn (Projektilenergie 1 MeV). Die Defekterhöhung bei 900 K (relativ zu 293 K) resultiert also vornehmlich aus dem letzten Abschnitt der Kaskade. Die zusätzlichen Defekte (+4 %) bilden aber sehr eng benachbarte Paare, so daß hier nach Abschluß der ballistischen Phase zusätzliche Rekombinationen wahrscheinlich sind.

Bisher war in den Kaskaden bei erhöhten Temperaturen Gitterschwingungen und Gitterexpansion gleichermaßen berücksichtigt. Läßt man jedoch die Gitterkonstanten unverändert, so sind die Kaskadenresultate nahezu unabhängig von der Temperatur. Dies liegt daran, daß die mittleren thermischen Auslenkungen zwischen 293 K und 900 K nur um 0,0027 nm zunehmen, also einem Bruchteil der typischen Atomabstände. Insofern sind keine quantitativen Auswirkungen zu erwarten.

### 5.6.1.3 Reines Material bei 900 K

Die Analysen zur Temperaturabhängigkeit in Beryllium zeigen, daß man bei 900 K beträchtliche Defekteinbußen über einen großen Primärenergiebereich erwarten kann. Im Targetmodell eines thermischen Kristalls bei dieser Temperatur wurden Kaskaden durch Be<sup>9</sup>, He<sup>4</sup> und He<sup>6</sup> realisiert. Die Modelldaten entsprechen ansonsten denen des statischen Kristalls.

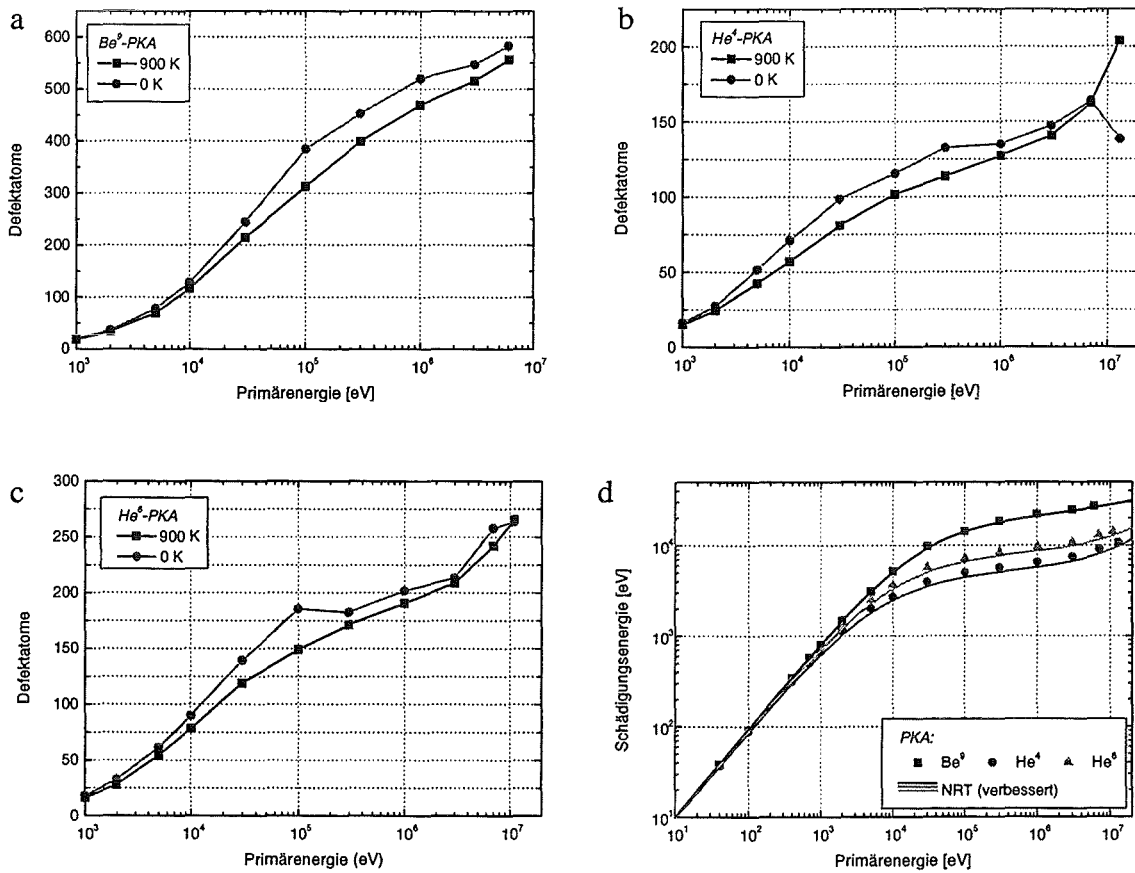
Schädigungsdaten

ABB. 5.29: Schädigungsfunktionen in Be bei 900 K: im Vergleich mit 0K.

Für alle PKA's findet man die erwartete Defektreduzierung, die einen Maximalwert von etwa 20 % bei etwa  $10^4$  eV bis  $10^5$  eV aufweist. Die Differenz schwächt sich jedoch für hohe Projektilenergien wieder ab, bei  $He^6$  werden dann annähernd die Werte für 0 K erreicht, bei  $He^4$  steigt die Defektzahl sogar über den statischen Wert (bei 13 MeV). In allen Fällen, insbesondere bei den leichten PKA's, erkennt man den gegenüber den Ergebnissen für 0 K deutlich stärkeren Defektzuwachs in diesem Energiebereich.

Dieser positive Gradient korreliert ausgezeichnet mit dem Verlauf von  $E_{dam}$ . Die Simulationsergebnisse folgen, merklich besser als bei 0 K, dem analytischen Resultat, das auf dem ZBL-Potential und dem kombinierten LSS-Bethe-Bloch-Querschnitt basiert. Unterhalb 1 keV sind die Unterschiede verschwindend, oberhalb davon auf kleinerem Niveau als bei 0 K und ohne merkliche Energieabhängigkeit. Für  $Be^9$  schwankt die Differenz zwischen 2 % und 5 %, für  $He^4$  zwischen 7 % und 14 % und für  $He^6$  zwischen 8 % und 13 %. Berücksichtigt man die statistischen Abweichungen der Simulationsergebnisse (bis maximal 3 %), so kann man mittlere Abweichungen der Simulation bezüglich NRT von 4 % ( $Be^9$ ), 12 % ( $He^4$ ) und 10 % ( $He^6$ ) konstatieren.

Diese Ergebnisse, kombiniert mit denen des statischen Gitters, lassen den Schluß zu, daß im wesentlichen Kristallsymmetrie-Eigenschaften zu Abweichungen von  $E_{dam}$  bezüglich der analytischen Theorie führen. Eine globale Störung dieser Symmetrie, z.B. durch thermische Auslenkung aller Gitteratome, resultiert dann in einem Verhalten, das sich dem analytischen, symmetrieunabhängigen Resultat annähert.

Die effektive Schwelle für alle PKA's ist im Mittel (oberhalb 1 keV) um ca. 3 eV gegenüber den Werten bei 0 K erhöht. Bis hin zu 3 MeV weist sie dieselbe Energieabhängigkeit auf. Oberhalb davon steigt sie zunächst noch etwas stärker an und fällt schließlich leicht ab. Dies ist eine Konsequenz des fehlenden Channelling im thermisch gestörten Gitter. Ein klarer Hinweis dafür ist auch das Kaskadenprofil für He<sup>4</sup>-PKA's mit Energien ab 3 MeV (ABB. 5.30).

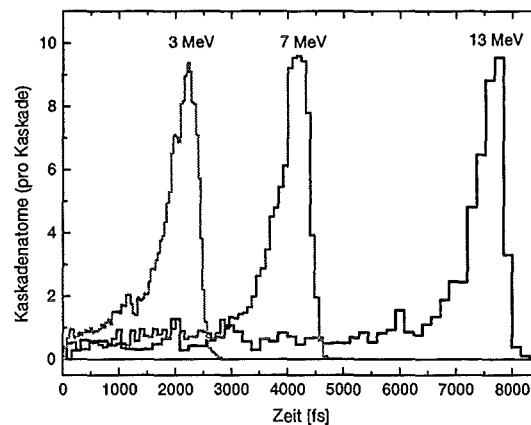


ABB. 5.30: Kaskadenprofile hochenergetischer He<sup>4</sup>-PKA's in Be bei 900 K.

Im Vergleich zu den Profilen im statischen Kristall (s. ABB. 5.8) erkennt man leicht, daß auch in der Anlaufphase vor dem Verlagerungspeak kurz vor Ende der Kaskade nun deutlich mehr Atome freigesetzt werden (vgl. auch ABB. 8.9).

#### 5.6.1.4 Verunreinigtes Material

Beryllium weist als eine der Hauptverunreinigungen Einschlüsse von BeO auf, die in den Be-Kügelchen für das Blanket einen Anteil von etwa 0,1 bis 0,2 mol% ausmachen. Dies entspricht typischerweise einem O-Anteil von 0,2 wt% (0,11 at%) in der Be-Matrix.

In Kap. 5.7.4 werden Kaskadensimulationen an Phasenübergängen Be-BeO vorgestellt. Eine etwas vereinfachte Behandlung soll in diesem Abschnitt verwendet werden. Dazu sei O homogen in der Be-Matrix verteilt. Analog der BeO-Struktur (P6<sub>3</sub>mc,  $a = b = 0,2698$  nm,  $c = 0,4380$  nm) werden dann die O-Atome auf tetraedrische Zwischengitterplätze (B) positioniert. Im BeO nämlich besetzen Be die Lagen 2(b) mit  $(\frac{1}{3}, \frac{2}{3}, 0)$ ,  $(\frac{2}{3}, \frac{1}{3}, 0,5)$  und O ebenfalls 2(b) mit  $(\frac{1}{3}, \frac{2}{3}, \frac{3}{8})$ ,  $(\frac{1}{3}, \frac{2}{3}, \frac{7}{8})$ .

Trotz der Verbesserungen im Kristallitmodell (s. Kap. 4.1.2) ist im Gittermodell mit 2 besetzten und 4 fast unbesetzten Gitterplätzen ein spürbarer Einfluß dieser zusätzlichen Punktlagen zu bemerken. Deshalb müssen die Ergebnisse mit O-Besetzungen auf reines Be mit demselben Gittermodell normiert werden. Die Resultate weichen dort um bis zu 20 % vom herkömmlichen hcp-Modell ab. Letztlich interessieren aber nur die durch zusätzliche O-Verunreinigungen verursachten Differenzen und nicht absolute Werte. Im folgenden werden die Resultate der durch  $\text{Be}^9$  initiierte Kaskaden bis 3 MeV in Be mit 0,11 at% (Referenzfall), 0,5 at% und 1,0 at% O vorgestellt.

### Schädigungsdaten

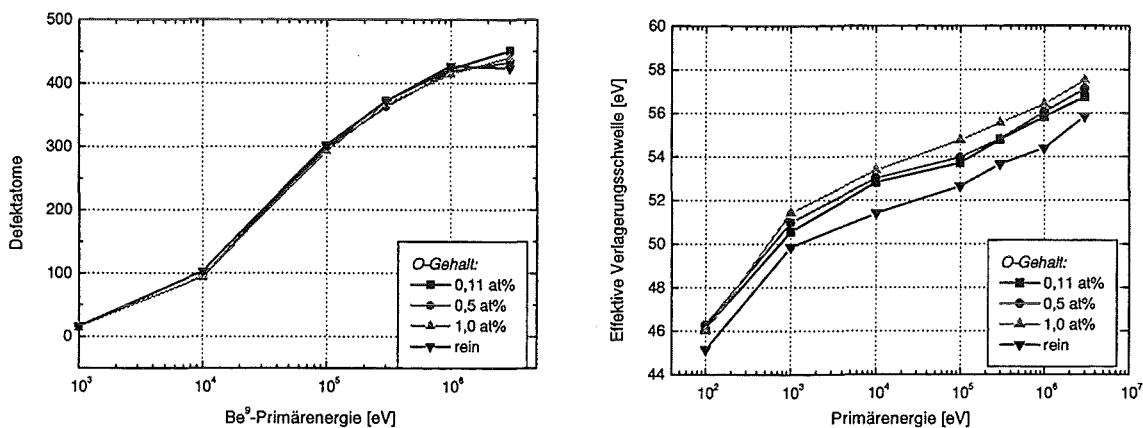


ABB. 5.31: Defekterzeugung und effektive Verlagerungsschwelle in verunreinigtem Be: mit Vergleichswerten aus reinem Beryllium.

Abgesehen von den merklichen Abweichungen bei 3 MeV, die aber kaum außerhalb der statistischen Unsicherheit liegen, weisen die Defektzahlen nur unwesentlich kleinere Werte als in reinem Be auf. Zwischen den verschiedenen O-Anreicherungen lassen sich ebenfalls kaum Unterschiede feststellen. Ab etwa 10<sup>5</sup> eV liegen die Werte, selbst für 1,0 at% O, nicht mehr signifikant auseinander, unterhalb davon betragen die maximalen Abweichungen zu reinem Be um ca. 4 %. Noch kleiner sind die Modifikationen der Schädigungsenergie, so daß die effektive Schwelle mit steigendem O-Gehalt zunimmt. Denn  $Q$  für O-Atome ist separat betrachtet deutlich größer als für Be-Atome ( $\sim 140$  eV gegenüber  $\sim 46$  eV). Je mehr O-Atome also in der Kaskade partizipieren, um so größer ist der Energieübertrag auf diese Atome, was sich ungünstig auf die Zahl verlagertter Atome auswirkt.

Die Resultate zeigen, daß ein O-Gehalt bis 1 at% in homogener Verteilung nur unwesentlichen Einfluß auf die Defektausbeute in Beryllium hat. Der Anteil von O-Atomen in einer Kaskade beträgt bei diesem Gehalt etwa 1,7 %, aber nur 0,5 % aller stabilen Defekte werden von O-Atomen gebildet.

### 5.6.2 $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ - $\text{Li}_2\text{SiO}_3$

Für die komplexen, polyatomaren Silikate müssen aufgrund der drei vorliegenden Elemente Li, O und Si eine Vielzahl möglicher PKA's betrachtet werden. In der Targetmodellierung kann weitgehend über die Isotopenzusammensetzung gemittelt werden, da, bis auf Lithium, die Massendifferenzen klein sind und gewöhnlich ein Isotop vorherrscht.

Andererseits muß bei der Berechnung der PKA-Spektren jedes Isotop, wenigstens im Prinzip, separat betrachtet werden. Insbesondere trifft dies für Lithium,  $\text{Li}^6$  und  $\text{Li}^7$ , zu, da  $\text{Li}^6$  gegenüber dem natürlichen Gehalt auf etwa 25 at% angereichert werden soll. Grund hierfür ist die Notwendigkeit, im Brutblanket eine Tritiumbrutrate (TBR) von mind. 1,0 zu erzielen, was im vorliegenden HCPB-Konzept nur durch entsprechende  $\text{Li}^6$ -Anreicherung erreicht werden kann.

Die betrachteten PKA's zeigen ausgesprochen große Massenunterschiede, von  $M = 4$  ( $\text{He}^4$  hauptsächlich aus  $\text{Li}^6(n,t)\alpha$ ) bis  $M = 28$  ( $\text{Si}^{28}$  aus (in)elastischer Streuung an  $\text{Si}^{28}$ ) für die reguläre Zusammensetzung und zusätzlich, für die mit  $\text{TeO}_2$  beaufschlagten Silikate eine mittlere PKA-Masse von 128 aus den verschiedenen Tellur-Isotopen ( $M = 124\dots 130$ ).

Auch für die beiden Silikatphasen wurden, wie in Beryllium, neben Kaskaden in statischen Kristallen auch solche bei 1180 K simuliert. Die thermische Ausdehnung wurde Literaturdaten entnommen. Die mittleren thermischen Auslenkungen können nun aber nicht direkt aus den Debye-Temperaturen der Elemente (d.h. der Elementphasen) abgeleitet werden. Vielmehr wurde das Debye-Modell an die thermischen Korrekturfaktoren zum Atomstreuquerschnitt der Silikatgitter gefittet. Außer chemisch reinen Silikaten wurden auch mit Te und C verunreinigte Chargen gemäß der vorgegebenen Spezifikationen untersucht.

#### 5.6.2.1 Reines Material

Für reines  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  wurden Kaskaden durch  $\text{He}^4$ , Li (gemittelte Masse bei 25 %  $\text{Li}^6$ -Anreicherung),  $\text{O}^{16}$ ,  $\text{Si}^{28}$  und  $\text{Mg}^{25}$  simuliert (vgl. auch die Kaskadenstrukturen für Li- und Si-Projektile, **ABB. 8.10** bis **ABB. 8.19**, S. 244ff.). Die Referenzdaten für das Targetmodell lauten:

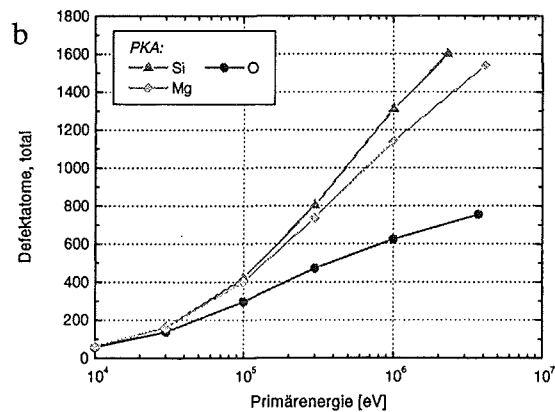
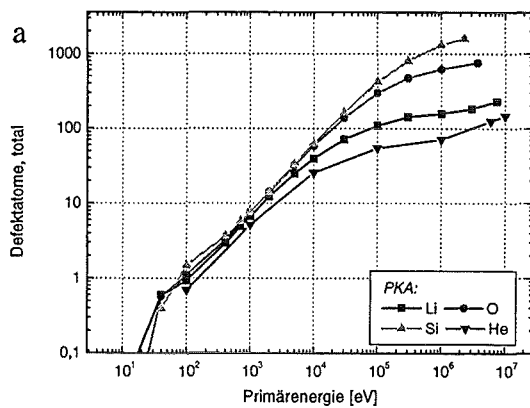
- statischer Kristall bei 293 K
- Coulomb-Potentiale mit AMLJ-Kern
- kombinierter inelastischer Energieverlust (LSS, Bethe-Bloch)
  - Gleichverteilung von lokalem und nichtlokalem Energieverlust
  - Standardwert für  $Z_2$ -Oszillations-Korrektur  $c_k$
  - Compound-Ionisierungspotential nach Thwaites
- lokales Bindungsmodell mit maximaler Bindungsenergien von 1,5 eV, 7 eV bzw. 2 eV für Li, Si bzw. O

In den Endkonfigurationen der einzelnen Kaskaden werden getrennt gezählt:

- Zwischengitteratome nach Rekombination mit partiell besetzten Li-Lagen
- Leerstellen
- Rekombinationen mit Li-Lagen: eigentliche durch Li-Ionen selbst, uneigentliche durch alle anderen Ionen
- Fehlordnungen

Davon sind für die abschließenden Schädigungsrechnungen vor allem die Zahl der Zwischengitteratome, der Fehlordnungen und der uneigentlichen Li-Rekombinationen interessant, die in folgenden Abbildungen dargestellt sind. Aufgrund des speziellen Charakters des Li-Subgitters ist es angemessen, lediglich die dort rekombinierten Li-Atome aus den Schädigungsdaten zu eliminieren. Fremdatome, die nominell dort rekombinieren, werden zwar zunächst als Fehlordnungsdefekte („uneigentliche Rekombinationen auf Li-Lagen“) registriert, sollen aber in den anschließenden Schädigungsrechnungen zu den jeweiligen *dpa*-Raten addiert werden. Umgekehrt muß in entsprechendem Maße die *ddf*-Rate nach unten korrigiert werden, so daß die Summe aus Gitterdefekt- bzw. Gitterfehlordnungsraten konstant bleibt. In den hier folgenden Auswertungen der Kollisionskaskaden werden jedoch diese Zuordnungen noch nicht vorgenommen.

### Schädigungsdaten



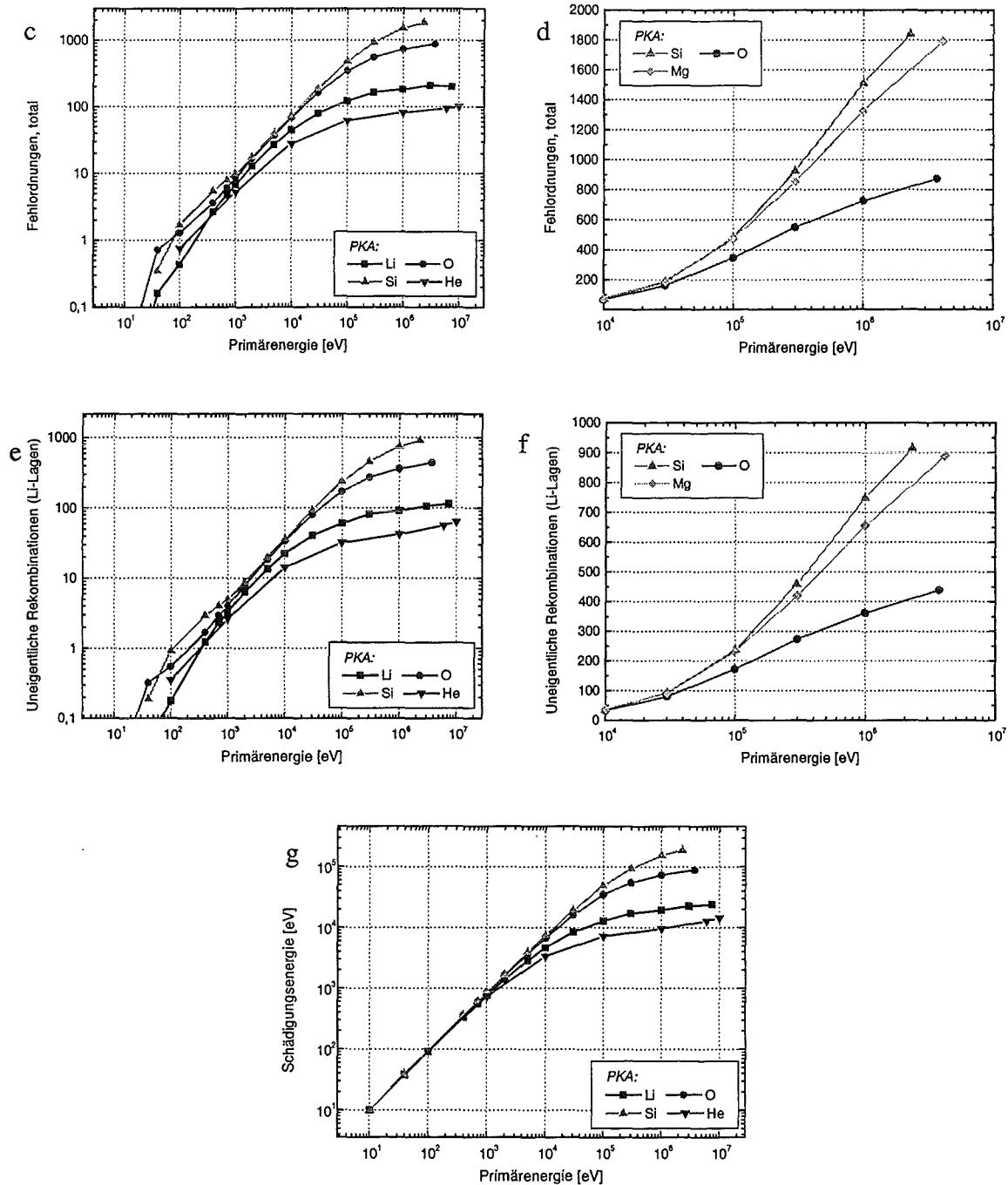


ABB. 5.32: Schädigungsfunktionen von verschiedenen PKA's in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ : (b), (d), (e) sind Ausschnitte für schwerere PKA's bei hohen Energien.

Der Verlauf der Schädigungsenergie  $E_{dam}$  (ABB. 5.32, g) für die unterschiedlichen PKA's zeigt qualitativ das vom Lindhard-NRT-Modell vorhergesagte Verhalten: zunächst eine streng lineare Proportionalität mit der Primärenergie, dann, für  $\text{He}^4$  bei etwa 1 keV, für Si um etwa 100 keV beginnend, ein immer stärkeres Abflachen, das schließlich in einen Plateau-Bereich übergeht. Wie bereits aus den Beryllium-Simulationen bekannt ist, steigt für leichte Ionen bei entsprechend hohen Energien  $E_{dam}$  an, was in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  bei  $\text{He}^4$  und in Ansätzen bei Li zu erken-



nen ist. Die schwereren Ionen haben selbst bei maximaler Energie die Sättigung noch nicht erreicht.

Im quantitativen Vergleich der Simulationsergebnisse mit analytischen Lindhard-NRT-Kurven kann man zum Teil beträchtliche Unterschiede feststellen. So erweist sich die Vorhersage des NRT-Modells mit einem gemittelten Target ( $M = 13,2$  amu,  $Z = 6,4$ ) als klare Unterschätzung; nur für Si-PKA's liegt die Differenz bei wenigen Prozent, steigt jedoch für leichtere PKA's deutlich an (für Li -50 %). Bildet man dagegen die gewichtete Summe aller elementaren Lindhard-Schädigungsenergien (also z.B. aus den Kombinationen Li-Li, Li-O und Li-Si), so ist dieses Ergebnis noch kleiner als für das gemittelte Target.

Auch die Diagramme der Defektatome und Fehlordnungen zeigen im wesentlichen dieselbe Energieabhängigkeit wie  $E_{dam}$ . Bei Energien bis einige hundert eV wird das Kaskadenresultat noch von der unmittelbaren Umgebung des Startorts dominiert, so daß die Defektausbeute stark vom jeweiligen PKA abhängt. Oberhalb davon, bis einige keV, steigt dann die Defektzahl direkt mit der Rückstoßenergie an, wobei lediglich die Resultate für  $He^4$  deutlich nach unten abweichen. Nach dem Abflachungsbereich verharren die Fehlordnungen in der Sättigung, während die Zahl der Defektatome und die der uneigentlichen Rekombinationen (auf Li-Lagen) zumindest für die leichteren PKA's merklich ansteigen.

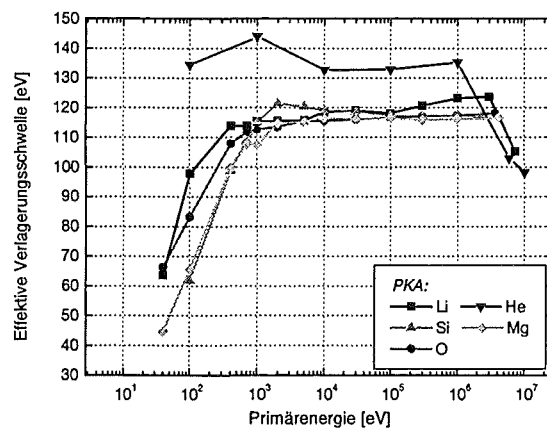


ABB. 5.33: Effektive Verlagerungsschwellen für verschiedene PKA's in  $Li_4SiO_4$ .

Die Abweichungen für  $He^4$ -Projekteile sind auch in der effektiven Schwelle augenscheinlich. Während für die schwereren PKA's nach dem Anstieg unterhalb 1 keV ein relativ konstanter und Projektil-unabhängiger Wert zwischen etwa 115 eV und 125 eV erreicht wird, liegt die Schwelle für  $He^4$ -PKA's deutlich darüber bei ca. 133 eV.  $He^4$  und Li zeigen dann das in den Beryllium-Kaskaden beobachtete starke Abfallen im MeV-Bereich.

Allen Kaskaden gemeinsam ist der Anteil von Zwischengitteratomen zur Anzahl der in der Kaskade erzeugten Leerstellen von ca. 43 % und das vermehrte Auftreten von Fehlordnungsdefekten (48 bis 50 %). Nur für die leichten PKA's ändert sich diese Verteilung im oberen

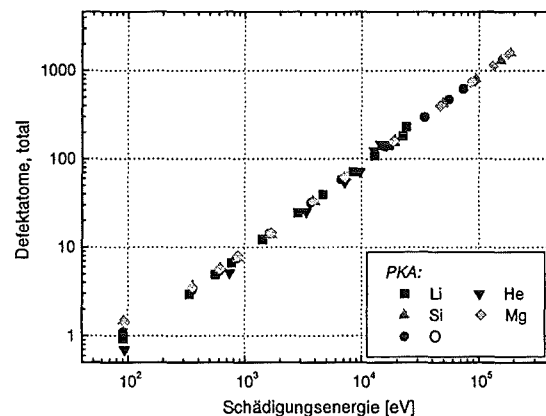
Energiebereich, der Anteil der Defektatome nimmt leicht zu, Fehlorderungen sinken analog ab.

Die Defektaufteilung nach den einzelnen Konstituenten in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  beträgt nahezu unabhängig von PKA und Primärenergie etwa 55 % Li, 40 % O und 5 % Si. Die offensichtliche Abweichung vom stöchiometrischen Verhältnis ist nicht in erster Linie auf die stark unterschiedlichen Bindungsenergien zurückzuführen, denn für Simulationen im bindungsfreien Targetmodell ergibt sich eine Zusammensetzung von etwa 50:38:12 (Li:O:Si). Vielmehr spielen Masse (und damit die Kinematik) und gegenseitige Lage im Kristall die entscheidende Rolle für die Bevorzugung von Li-Verlagerungen und der massiven Behinderung von freien Si-Rückstoßkernen.

Eine dem NRT-Modell ähnliche Korrelation zwischen  $N_d$  und  $E_{dam}$  läßt sich auch für Kaskaden in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  aufstellen. Sie ist, wie **ABB. 5.34** zu entnehmen ist, bis auf Ausnahmen bei kleinen Werten von  $E_{dam}$  und hohen Werten für die leichten Ionen durch eine Gerade im doppelt-logarithmischen Maßstab gegeben, bzw. durch die analytische Form

$$N_d = 0,0086(\pm 2 \cdot 10^{-4}) E_{dam}^{0,9984(\pm 1 \cdot 10^{-3})} \quad (\chi^2 = 2,31) \quad (143)$$

Dabei wurde der Exponent für  $E_{dam}$  als gemeinsamer Parameter für alle PKA's fixiert.



**ABB. 5.34:** Korrelation zwischen  $N_d$  und  $E_{dam}$  in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .

Im Vergleich der normierten Rückstoßspektren produziert ein Si-PKA bei 2 keV deutlich weniger Rückstoßkerne oberhalb etwa 20 eV als ein Li-PKA derselben Energie. Dieses Verhältnis kehrt sich jedoch mit steigender Projektilenergie um: bei 1 MeV verlagert ein Si-Projektil mehr Atome oberhalb etwa 50 bis 100 eV (je nach Spezies) als ein Li-Projektil. Noch geringer ist deren Anteil für ein  $\text{He}^4$ -PKA.

Diese Differenz im Energiebereich deutlich oberhalb der Cutoffs ist, wie bereits in den Beryllium-Simulationen ausgeführt, mitentscheidend für das Verhältnis der effektiven

Schwellen: ein hoher Anteil führt zu günstigen Verlagerungsbedingungen, führt also zu einer kleinen effektiven Schwelle. Betrachtet man nämlich die  $Q$ -Werte der einzelnen PKA genauer, so kann man genau diesen Effekt beim Übergang vom keV- in den MeV-Bereich erkennen. Für Li steigt  $Q$  leicht an, für Si ist es genau umgekehrt.

### Defektcharakterisierung

Die gegenseitige Separation in Defektpaaren in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  ist noch stärker als in Be zu kleinen Werten hin konzentriert. Dabei fällt die Verteilung monoton mit steigendem Abstand  $d$  etwa wie  $d^{-2}$  ab, so daß nur etwa 15 % aller Defektpaare einen Abstand von mehr als 1 nm aufweisen. Die Ursache hierfür liegt in der Vielzahl möglicher Gitterabstände im  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ -Kristall, die wegen 28 Gitterpunkten in der EZ von  $0,166 \text{ nm}^3$  relativ kontinuierlich verteilt sind. Daraus folgt auch der hohe Anteil von korrelierten Defektpaaren, der bei ca. 38 % liegt und für die leichten PKA's bis auf 50 % im oberen Energiebereich steigt.

Untersucht man die Zuordnung der Zwischengitteratome zu Gitterlagen im Kristall, so findet man ca. 51 % davon in der Nähe von O-Plätzen, 17 % bei Si-Plätzen und 32 % bei Li-Gitterpunkten. Jedoch verteilen sich die einzelnen Spezies differenzierter: Si bleibt vorrangig in der Nähe des Tetraederzentrums (zu mehr als 35 %), Li auf eigenen Gitterplätzen (ebenfalls um 35 %), während O-Atome sich entsprechend der mittleren Verteilung im Gitter plazieren. Wegen der inhomogenen Verteilung der Gitterpunkte treten gewisse Zuordnungen der Zwischengitteratome gehäuft auf, insbesondere trifft dies für die O(2)-Lagen zu. Diese liegen im Silikat-Tetraeder dem Zentralion mit  $0,160 \text{ nm}$  am nächsten, und auch die Abstände zu den benachbarten O-Lagen sind am geringsten. Wegen dieser Bevorzugung kleinerer Gitterabstände plazieren sich hier etwa 15 % bis 18 % mehr Zwischengitteratome pro Gitterplatz, so daß ca. 28 % aller O-Zuordnungen O(2)-Lagen betreffen (bei einem Gitterplatzanteil von 25 %).

Das skizzierte Verteilungsbild ist typisch für alle PKA's und Primärenergien. Andererseits werden Defektdichte und Defektclusterbildung von den Eigenschaften der primären Projektils beeinflusst. Für schwere PKA's (z.B.  $\text{Si}^{28}$ ) ist die Defektdichte, d.h. die Anzahl der Defektatome pro Kaskadenvolumen, etwas höher (um 5 % bei 10 keV) als für leichte PKA's, sinkt aber mit steigender Primärenergie, so daß bei genügend hohen Energien die Defektdichte nur noch schwach vom jeweiligen PKA abhängt. Sie beträgt für Leerstellen etwa  $1/0,295 \text{ nm}^3$ , für Zwischengitteratome  $1/0,770 \text{ nm}^3$  und für Fehlordnungsdefekte ca.  $1/0,570 \text{ nm}^3$ .

Die Clusterbildung von Leerstellen liegt auf einem relativ hohen Niveau, dabei noch stärker für  $\text{Si}^{28}$ . Der Anteil von Leerstellen in Clustern beträgt für Li ca. 25 %, für Si ca. 28 %. Während für Li nur 8 % bis 9 % aller Cluster aus mehr als zwei Leerstellen bestehen, liegt dieser Anteil für Si zwischen 15 % bei kleinen Energien und 9,5 % bei maximaler PKA-Energie. Dann tauchen auch Cluster bis 5 oder 6 Leerstellen auf. Daraus resultiert auch die etwas er-

höhe radiale Korrelation im Falle von Si-PKA's, d.h. die Clusterlängen sind im Mittel etwas größer.

Aufgrund der breiten Verteilung möglicher Gitterabstände sind auch die Profile der radialen Korrelation relativ langgestreckt. Deshalb ist die Zuordnung von bestimmten Histogrammkämen zu definierten Clusterkonfigurationen selbst für Dupletts überaus erschwert. Zwei Peaks im Profil der Dupletts, die Abständen von 0,190 bis 0,212 nm bzw. 0,251 bis 0,268 nm entsprechen, werden von 40 % bzw. 14 % der Leerstellen-Dupletts besetzt. Im ersten Fall handelt es sich vorrangig um Li-O-Paare (selten auch Li-Li-Dupletts), im zweiten Fall können die Kombinationen Si-Li, O-O und Li-Li vorliegen.

Zwischengitteratome sind nur zu einem kleinen Bruchteil (2 % bis 3 %) und dann praktisch ausschließlich zu Dupletts geclustert. Deren radiale Verteilung hat ein klares Maximum um etwa 0,16 nm, etwa 50 % liegen im Bereich zwischen 0,095 nm und 0,230 nm.

Fehlorderungsdefekte treten in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  noch häufiger auf als herkömmliche Defektatome auf Zwischengitterplätzen. Etwa 21 % von ihnen liegt in Form kleiner Cluster bis 5 Defekte vor, 5 % bis 6 % davon bestehen aus mindestens 3 Defekten. Hierbei gibt es nur relativ schwache Differenzen zwischen den verschiedenen PKA's. Gegenüber den Leerstellenclustern sind Fehlorderungen etwas dichter gepackt, ihre mittlere radiale Korrelation beträgt nur 0,50 gegenüber 0,535, entsprechend den Abständen 0,212 nm statt 0,219 nm. Dabei ist ihr Separationsprofil ähnlich wie bei Zwischengitteratomen zu kleinen Abständen hin konzentriert.

Die bei den leichten PKA's beobachtete Defektreduzierung im MeV-Bereich zeigt auch Auswirkungen in der Defektcharakteristik. Die Defektdichte sinkt etwas ab, ebenso verringert sich der Anteil geclusterter Defekte, besonders kraß für Fehlorderungen. Überraschenderweise erhöht sich die Leerstellendichte. Dies deutet darauf hin, daß entlang des hochenergetischen Abschnitts der PKA-Trajektorie praktisch keine Leerstellen erzeugt werden und erst in der Verästelungsphase, wo das PKA bereits beträchtlich an Energie verloren hat, Defekterzeugung möglich ist. Da außerdem vermehrt korrelierte Annihilationen auftreten (und entsprechende Bindungsverluste), sinkt die Zahl der Defektatome stärker als die der in der Kaskade erzeugten Leerstellen, so daß im Endeffekt eine schwache Erhöhung der Leerstellenkonzentration möglich ist (vgl. S. 113f.).

### 5.6.2.2 Reines Material bei 1180 K

Gegenüber dem bisherigen, statischen Kristallmodell für  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  sollen nun die thermischen Schwingungen bei 1180 K berücksichtigt werden. Dabei kann aber nicht, wie im monoatomaren Beryllium, einfach die Debye-Temperatur der Elemente im Debye-Modell eingesetzt werden, da diese Temperaturen nur für die jeweilige Elementphase (Li-Metall, festes Si, gasförmiges  $\text{O}_2$ ) anwendbar ist. Insbesondere würde die ausgesprochen niedrige Debye-Temperatur für  $\text{O}_2$  (91 K) zu unrealistisch hohen Auslenkungen (rms: 0,113 nm) im Kristallgitter führen.

Andererseits können aus den thermischen Korrekturfaktoren  $T_{\theta, \lambda}$  zum Atomstreu­faktor die mittleren quadratischen Auslenkungen  $\langle u_i^2 \rangle$  abgeleitet werden (s. beispielsweise [120]). Dieser Faktor  $T_{\theta, \lambda}$  beschreibt die Abschwächung der Streuamplituden für Wellen (üblicherweise Röntgenstrahlung) der Wellenlänge  $\lambda$  in einem Winkel  $\theta$  zur Einfallsrichtung, wenn das Streuzentrum (ein Atom in der EZ) thermische Schwingungen um seine Ruheposition ausführt. Im einfachsten Fall isotroper Schwingungen lautet  $T_i$  für das  $i$ -te Atom in der EZ

$$T_i = \exp[-B_i \sin^2 \theta / \lambda^2] \quad (144)$$

wobei  $B_i$ , der Temperaturfaktor für Atom  $i$ , gegeben ist durch

$$B_i = 8\pi^2 \langle u_i^2 \rangle \quad (145)$$

Im allgemeinen Fall beschreibt der symmetrische Tensor  $u$  mit 6 unabhängigen Komponenten  $u_{ij}$  die anisotrope Schwingungsausbreitung. Der thermische Korrekturfaktor für die Streuung an der Ebene (hkl) lautet dann

$$T_i = \exp\left[-2\pi^2 \left(u_{11} \left(\frac{h}{a_0}\right)^2 + u_{22} \left(\frac{k}{b_0}\right)^2 + u_{33} \left(\frac{l}{c_0}\right)^2 + 2u_{23} \frac{kl}{b_0 c_0} + 2u_{31} \frac{lh}{c_0 a_0} + 2u_{12} \frac{hk}{a_0 b_0}\right)\right] \quad (146)$$

Die thermischen Schwingungen können dann statt über eine Kugel im isotropen Fall über ein Ellipsoid beschrieben werden.

Für  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  liegen isotrope Temperaturfaktoren  $B$  für die verschiedenen Punktlagen vor [108]. Die Werte für O- und Li-Lagen wurden gemittelt, da im MARLOWE-Modell nicht nach einzelnen Gitterpunkten differenziert werden kann. Aus den Temperaturfaktoren ergeben sich dann, gemäß Gleichung (145), die in folgender Tabelle aufgeführten mittleren thermischen Auslenkungen bei 293 K.

TAB. 5.20: Thermische Parameter (293 K) für Konstituenten des  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ -Gitters.

Element	$B$ [ $\text{nm}^2$ ]	$\langle u_i^2 \rangle$ [ $\text{nm}^2$ ]	rms [nm], 293 K
Si	0,0069	$8,7 \cdot 10^{-5}$	0,0093
O	0,0109	$1,38 \cdot 10^{-4}$	0,0117
Li	0,0107	$1,36 \cdot 10^{-4}$	0,0117

Um nun die rms-Werte bei 1180 K zu erhalten wurden die obigen Werte für 293 K an das Debye-Modell für jedes Element gefittet. Daraus ergeben sich dann Pseudo-Debye-Temperaturen, die eine Berechnung der thermischen Auslenkungen für höhere Temperaturen ermöglichen. Für Si erhält man so die in folgender Tabelle, zusammen mit den Auslenkungen

bei 1180 K, aufgelisteten Debye-Temperaturen. Diese Parameter wurden in einem ansonsten unveränderten Targetmodell aufgenommen.

TAB. 5.21: Thermische Parameter (1180 K) für Konstituenten des  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ -Gitters.

Element	$\theta_D$ [K]	rms [nm], 1180 K
Si	430	0,0182
O	455	0,0228
Li	735	0,0218

### Schadigungsdaten

Obwohl die qualitativen Resultate der Kaskaden im thermischen Kristall nicht wesentlich verändert sind, zeigen doch die quantitativen Analysen spürbare und sehr unterschiedliche Differenzen zu den Ergebnissen bei 0 K (s. ABB. 5.35). Insbesondere erhält man deutliche Abweichungen für unterschiedliche PKA's. Auch das Ergebnis der Beryllium-Simulationen, nämlich praktisch durchgehende Defektreduzierung, wird hier nur teilweise bestätigt.

Im einzelnen zeigt die Defektausbeute Zuwächse bei kleinen (bei Si bis  $10^3$  eV, sonst darunter) und großen Energien (oberhalb etwa  $10^5$  eV), jedoch Verluste im mittleren Energiebereich, die für alle PKA's ca. 4 % bis 6 % erreichen. Die Zuwächse für die einzelnen PKA's sind sehr unterschiedlich und steigen im allgemeinen mit der Primärenergie an. Für Li erhält man maximale Zuwächse von über 20 % (bei 7,4 MeV), für O, Si und He von 10 %, 3 % und 13 %. Dabei weist He bis 1 MeV den stärksten Zuwachs auf, stagniert dann aber um 10 %.

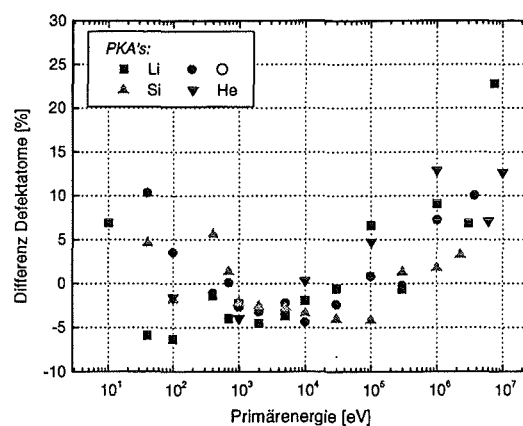


ABB. 5.35: Änderung der Defekterzeugung in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  bei 1180 K gegenüber 0 K.

Auch für Fehlorderungen und uneigentliche Rekombinationen (Li-Lagen) findet man eine Verteilung, die durch besonders hohe Zuwächse (bis auf O-Projektile) in den Randbereichen und minimale Werte im mittleren Energiebereich gekennzeichnet ist. Anders als in der De-

Defektausbeute sinken die Differenzen für Fehlordnungen und uneigentliche Rekombinationen (Li-Lagen) nur auf etwa 0 % bis -2 %. Die Zuwächse betragen maximal über 20 %, 15 %, 8 % und 17 % für Li, O, Si und He. Auch hier zeigt He bis 1 MeV die größten Differenzen, fällt oberhalb davon aber stark ab.

Etwas schwächer als die Defektausbeute ändert sich die Schädigungsenergie, so daß die effektive Schwelle bei 1180 K im Mittel um etwa 2 eV bis 3 eV oberhalb der Werte bei 0 K liegt. Unverändert bleibt jedoch der qualitative Verlauf bei hohen Energien der leichten PKA's, im Gegensatz zu Beryllium bei 900 K, wo aufgrund des gestörten Channellings die effektive Schwelle nicht mehr so stark absinkt.

Gegenüber den Kaskaden bei 0 K erhöht sich die Zahl der Kollisionen stark, jedoch nur unterdurchschnittlich die Zahl beteiligter Gitteratome. Ursache hierfür ist, daß die Zahl der Stöße mit mindestens zwei Gitteratomen deutlich reduziert ist. Ihr Anteil sinkt, je nach PKA und Energie, von ca. 48 % auf 36 %. Während bis zu mittleren Energien die Anzahl verlagerter Gitteratome nur schwach variiert, steigt sie bei hohen Energien stark an, da hier relativ gesehen nur wenige Kollisionen hinzukommen und pro Stoß wieder weniger Targetatome beteiligt sind. Damit sind die kinetischen Energieüberträge günstiger verteilt, so daß mehr Verlagerungen auftreten können.

### Defektcharakterisierung

Die Defektcharakterisierung ist, wie bei 0 K beschrieben, auch bei erhöhter Temperatur gültig. Lediglich die Clusterbildung ist nachhaltig vom thermischen Gitter beeinflusst. Für alle Defektsorten (Leerstellen, Atome, Fehlordnungen) erhält man im Mittel eine etwas erhöhte radiale Korrelation, sowohl speziell für Dupletts als auch allgemein für die normierten Werte aller Cluster. Die Anzahl der Leerstellen-Dupletts mit Abständen zwischen 0,268 nm und 0,285 nm (Kanal 9) erhöht sich drastisch auf Kosten derer mit Abständen zwischen 0,251 nm und 0,268 nm (Kanal 8). Dies ist ein Hinweis dafür, daß bisherige O-O-Dupletts nächster O-Gitterplätze aufgelöst werden, da diese nur in Kanal 8 gezählt werden können. Zusätzlich erhöht sich signifikant die Anzahl mit Abständen zwischen 0,212 nm und 0,232 nm, während der stark frequentierte Kanal zwischen 0,190 nm und 0,212 nm bestehen bleibt. Insgesamt erhält man in diesen drei Kanälen mehr als 60 % aller Leerstellen-Dupletts.

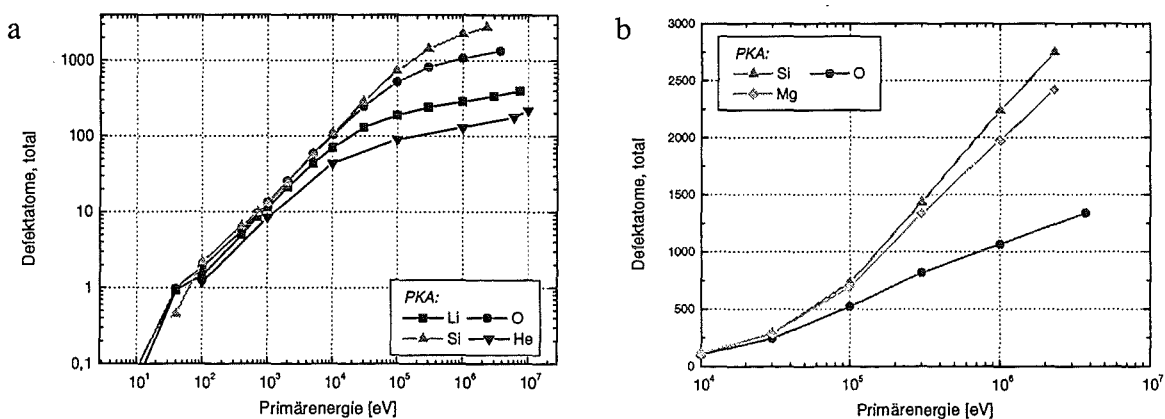
Der Anteil der Defekte in Clustern ändert sich nur unwesentlich, dagegen steigt der Beitrag von Clustern mit mindestens 3 Defekten signifikant an. Dabei sind Leerstellen als auch Fehlordnungen gleichermaßen betroffen, das Ausmaß hängt jedoch vom PKA ab: für die leichten PKA's erhöht sich der Beitrag um weniger als 1 %, für die schwereren um bis zu 4 %. Man beachte dabei aber, daß die relative Erhöhung weitaus deutlicher ist, da der Anteil großer Cluster nur bei etwa 6 % bis 15 % liegt (abhängig von PKA und Defektyp).

### 5.6.2.3 Verunreinigtes Material

Wegen der Zugabe von  $\text{SiO}_2$  erhält man ein zweite Silikatphase,  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ , die für die Kaskadenausbreitung gänzlich andere Bedingungen vorgibt. Im folgenden werden die Resultate der Kaskaden für alle schon in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  verwendeten PKA's vorgestellt. Die Targetreferenzdaten entsprechen denen in Kap. 5.6.2.1. Wichtigster Unterschied in der Bewertung der Kaskaden sind die fehlenden Rekombinationen mit partiell besetzten Punktlagen, da diese im Metasilikat nicht vorhanden sind. Lediglich Defektatome und Fehlordnungen auf regulär besetzten Gitterpunkten werden für die Schädigungsberechnungen verwendet (Kaskadenbilder für Si-Projektile im Anhang, ABB. 8.20 bis ABB. 8.24, S. 249ff.).

#### Metasilikat

Gegenüber den Resultaten für  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  zeigt  $E_{dam}$  nur sehr schwache Änderungen, die max. 6 % für einige ausgewählte Energiepunkte von leichten PKA's beträgt. Wegen der gänzlich anderen Gitterstruktur, insbesondere dem Fehlen von partiell besetzten Punktlagen, erhält man jedoch eine deutlich höhere Defektzahl. Diese liegt im allgemeinen um 70 % bis 80 % über den entsprechenden Werten in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ , jedoch abhängig von PKA und Primärenergie. Aufgrund des geänderten stöchiometrischen Verhältnisses der Elemente in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  teilen sich die Defekte nach Spezies nun wie 44:49:7 (Li:O:Si). Qualitativ wird die Energieabhängigkeit der Defektausbeuten bestätigt, auch die Sättigung der Fehlordnungen bei leichten PKA's bei gleichzeitiger Zunahme von Defektatomen ist zu erkennen. Der relative Anteil von Fehlordnungen liegt in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  nur noch bei ca. 30 % bis 33 % und sinkt vor allem für die leichten PKA's bei hohen Energien stark ab (für Li bis 25 %; für  $\text{He}^4$  bis 15 %).





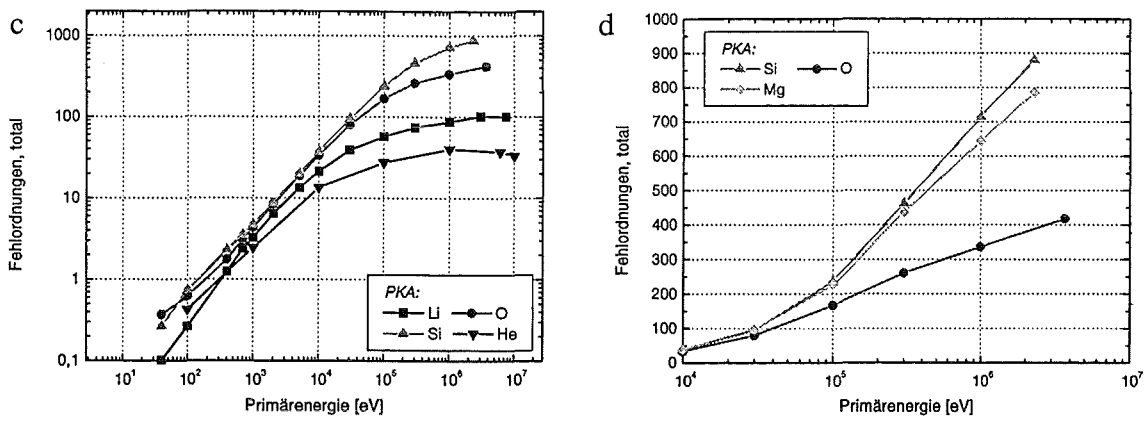


ABB. 5.36: Schädigungsfunktionen von verschiedenen PKA's in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ ; (b), (d) sind Ausschnitte für schwerere PKA's bei hohen Energien.

Die effektiven Schwellen sind bedingt durch die hohe Defektausbeute gegenüber  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  beträchtlich reduziert und liegen oberhalb 1 keV nun bei ca. 63 eV bis 70 eV (Li, O, Si, Mg) bzw. um 75 eV ( $\text{He}^4$ ). Oberhalb einigen MeV fallen auch im Metasilikat die effektiven Schwellen für Li und  $\text{He}^4$  beträchtlich ab, wenn auch weniger stark als im Orthosilikat.

Ähnlich wie in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  findet man auch im Metasilikat eine exponentielle Korrelation zwischen  $N_d$  und  $E_{dam}$ . Mit Ausnahmen kleiner Werte von  $E_{dam}$  und den etwas abweichenden Resultaten für  $\text{He}^4$  erhält man folgende analytische Form

$$N_d = 0,0147(\pm 2 \cdot 10^{-4}) E_{dam}^{1,0036(\pm 1,5 \cdot 10^{-3})} \quad (\chi^2 = 8,5) \quad (147)$$

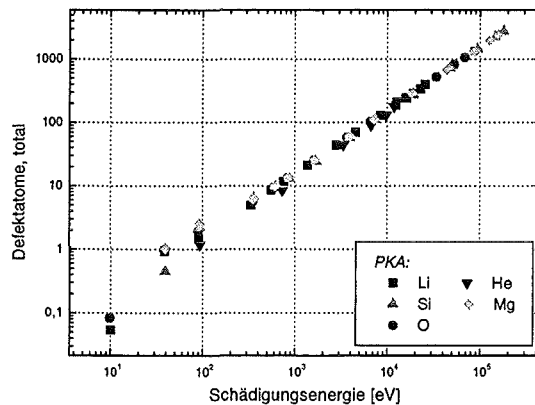


ABB. 5.37: Korrelation zwischen  $N_d$  und  $E_{dam}$  in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ .

Metasilikat bei 1180 K

Ähnlich wie im Orthosilikat können auch im Metasilikat die mittleren thermischen Auslenkungen aus den thermischen Korrekturfaktoren zum Atomstrefaktor abgeleitet werden. Dazu liegen die Komponenten des anisotropen Temperaturfaktor vor [114]. Da MARLOWE jedoch nur isotrope Schwingungen berücksichtigen kann, wurde ein gemittelter Wert für die Auslenkung gewählt, nämlich das arithmetische Mittel der Eigenwerte des Elongationstensors  $u$ . Aus diesen Daten kann dann  $\langle u_i^2 \rangle$  bei 293 K berechnet werden:

**TAB. 5.22:** Thermische Parameter (293 K) für Konstituenten des  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ -Gitters.

Element	B [nm <sup>2</sup> ]	$\langle u_i^2 \rangle$ [nm <sup>2</sup> ]	rms [nm], 293 K
Si	0,0038	$4,8 \cdot 10^{-5}$	0,0069
O	0,0066	$8,3 \cdot 10^{-5}$	0,0091
Li	0,0094	$1,19 \cdot 10^{-5}$	0,0109

Damit konnten dann Pseudo-Debye-Temperaturen  $\theta_D$  für jedes Element in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  bestimmt werden, mit denen dann die rms-Werte bei 1180 K berechnet werden. Man beachte, daß  $\theta_D$  in diesem Zusammenhang einen variablen Parameter darstellt, der insofern auch deutlich von den entsprechenden Werten in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  abweichen kann.

**TAB. 5.23:** Thermische Parameter (1180 K) für Konstituenten des  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ -Gitters.

Element	$\theta_D$ [K]	rms [nm], 1180 K
Si	590	0,0133
O	595	0,0175
Li	790	0,0203

Die Temperaturabhängigkeit der Defektausbeuten in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  ähnelt der in Beryllium mehr als der in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ . Auch hier wird durch die Störung des regelmäßigen Kristallgitters eine Defektreduzierung erreicht, anders als in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ , wo durch die partiell besetzten Li-Lagen bereits eine Symmetrieschwächung im statischen Kristall besteht.

Der relative Verlust an Defektatomen beträgt für alle PKA's (bis auf  $\text{He}^4$ ) im Mittel etwa 3 % bis 4 % mit einer nur leichten Tendenz zu kleineren Werten bei kleiner Primärenergie.  $\text{He}^4$ -PKA's stellen auch in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  einen Sonderfall dar: bis etwa 1 MeV sind die Ergebnisse praktisch identisch mit denen im statischen Kristall, oberhalb davon steigt die Defektzahl um bis zu 15 %.

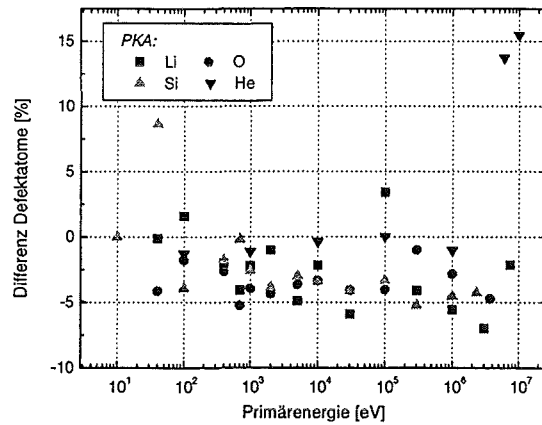


ABB. 5.38: Änderung der Defekterzeugung in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  bei 1180 K gegenüber 0 K.

Auch die Fehlordnungen weisen Verluste auf, die noch stärker sind als die der Defekttatome (im Mittel zwischen 4 % und 8 %). Bei kleinen Energien ist die Reduzierung weniger deutlich, bis hin zu leichten Zuwächsen z.B. bei Li-PKA's.

Silikate mit Te-Verunreinigungen

Bei Zugabe von 2 wt%  $\text{TeO}_2$  zu dem Phasengemisch  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ - $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  substituiert Te ein Teil der Li-Lagen in den Silikaten. Der Gehalt an Te in den zwei Silikaten beträgt dann 0,15 at% (Orthosilikat) bzw. 0,31 at% (Metasilikat), zusätzlich wurde eine C-Verunreinigung von 0,07 at% berücksichtigt. Entsprechende Kristallmodelle für diese verunreinigten Phasen unter Berücksichtigung der etwas veränderten Gitterkonstanten (s. Kap. 5.2.2) wurden aufgestellt und darin Kaskaden durch Li, O, Si und Te simuliert.

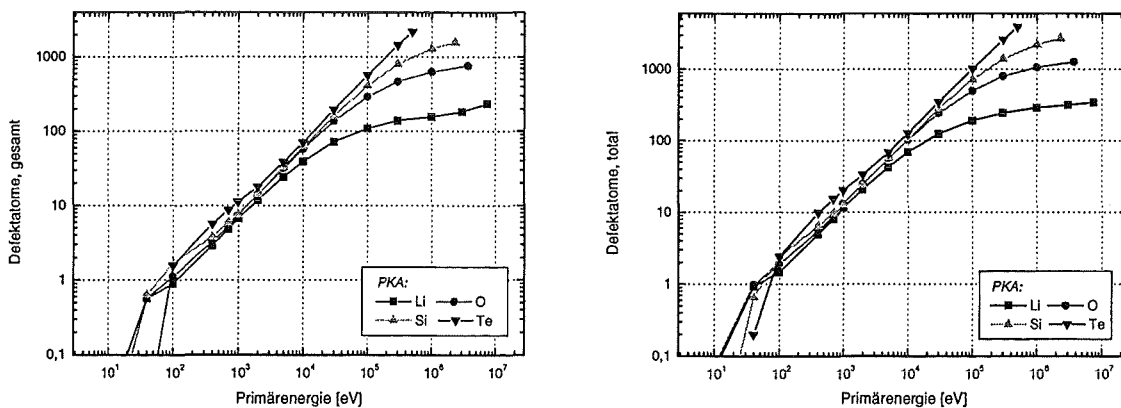


ABB. 5.39: Defekterzeugung in Li-Silikaten mit Te-Verunreinigungen:  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  (links),  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  (rechts).

Wie zu erwarten führt ein solch kleiner Verunreinigungsgehalt in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  zu praktisch keinen Änderungen in der Gesamtdefektausbeute (max. Änderungen  $\pm 2$  %). Auch die Verteilung der Defektspezies ist durch die Zugabe von Te und C nicht beeinflusst, da diese Elemente nur zu

einem verschwindenden Bruchteil in der Kaskade partizipieren. Insofern bleibt das Schädigungsverhalten für die PKA's aus den Hauptelementen unverändert.

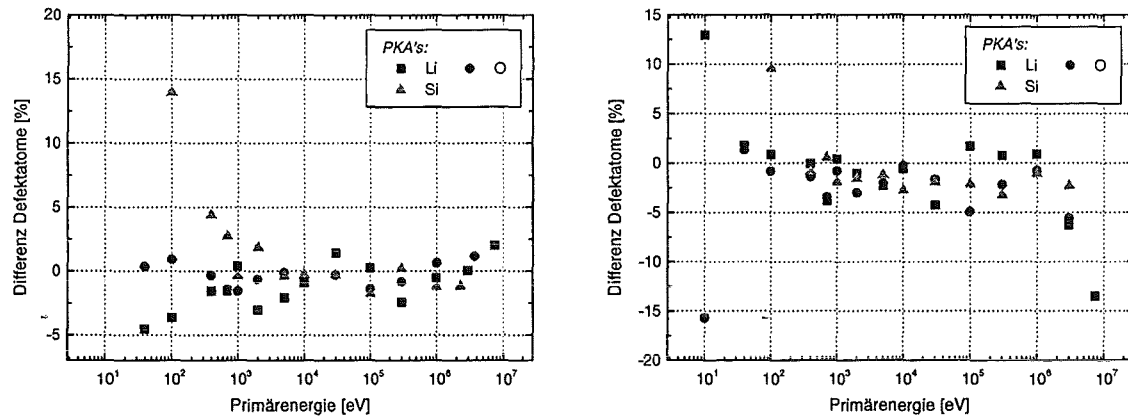


ABB. 5.40: Änderung der Defekterzeugung in Li-Silikaten mit Te: Li<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub> (links), Li<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub> (rechts).

Anders verhält es sich im Metasilikat. Da nun zusätzliche Leerstellen durch die Verdrängung von 4 Li-Atomen pro Te-Atom entstehen, können dort, wenn auch in beschränktem Umfang, Defekte rekombinieren. Tatsächlich findet man bis in den MeV-Bereich eine schwache Defektreduzierung, die maximal 3 % erreicht. Für leichte PKA's verstärkt sich dieser Effekt in der Nähe der höchsten PKA-Energie und erreicht z.B. für Li Werte von 10 % und mehr (s. ABB. 5.40). Durch die zusätzlichen Rekombinationen entstehen konsequenterweise mehr Fehlordnungsdefekte.

Wegen der großen Masse der Te-PKA's, in Kombination mit einem hohen Wirkungsquerschnitt für PKA-Erzeugung (s. Kap. 6.2.1) und des effektiven Verlagerungsverhaltens, müssen diese, bei entsprechend hoher Anreicherung im Material, zusätzlich in einer Schädigungsrechnung berücksichtigt werden. Bei der hier untersuchten Spezifikation ist dies jedoch nicht zu erwarten. C-PKA's interessieren in diesem Zusammenhang nicht wegen ihrer kleinen Masse und der relativen Atomhäufigkeit, die weniger als die Hälfte der Te-Häufigkeit ausmacht.

Die Simulationsergebnisse zeigen, daß Te bis zur maximalen PKA-Energie von etwa 500 keV noch im Proportionalbereich von Primärenergie und Schädigungsenergie liegt (s. ABB. 5.39). Deshalb ist die Gitteratomverlagerung durch Te-PKA's besonders effektiv und übertrifft mit immer größerer Energie die Defektausbeuten der anderen PKA's beträchtlich. Bei 300 keV werden etwa 1450 Defektatome in Li<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub> erzeugt (ca. 2590 in Li<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>), das ist mehr als das 10fache für ein Li-PKA derselben Energie. Auch für dieses ausgesprochen schwere Ion werden die Defektcharakteristiken der bisher behandelten PKA's bestätigt. Lediglich die effektive Schwelle erreicht erst bei ca. 10<sup>4</sup> eV den Sättigungswert der anderen PKA's.

### 5.7 Lokale Inhomogenitäten

Die bisher durchgeführten Analysen in monokristallinen Festkörpern stellen das Fundament einer Schädigungsberechnung in realen Materialien dar. Deren heterogene Zusammensetzung kann mit dem in dieser Arbeit implementierten Layermodell wenigstens prinzipiell in eine BCA-Simulation eingebracht werden. Tatsächlich muß man sich auf einfache Konstellationen beschränken und diese dann in geeigneter Weise extrapolieren und verallgemeinern.

Deshalb sollen im folgenden ausgewählte Kombinationen von Korn-, Korn-Hohlraum- und Phasenübergängen simuliert werden. Dabei werden zwei prinzipielle Simulationsbedingungen vorgegeben, nämlich zum einen ein gerichteter Einfall des PKA's auf die Grenzfläche und zum anderen isotrope Ausbreitung des PKA's in der Nähe der Grenzfläche. Im ersten Fall werden abstands- und orientierungsabhängige Defektausbeuten für niederenergetische Projektile untersucht. Dazu werden Projektile bis 10 keV in einem Strahl von  $10^\circ$  Divergenz in normaler Richtung auf eine Grenzfläche emittiert. Der Abstand zu dieser Fläche wird variiert, ebenso wie deren Orientierung. Etwa 1000 Kaskaden pro definierter Anfangsbedingung werden simuliert, um eine hinreichend gute Statistik zu erreichen<sup>1</sup>. Im zweiten Fall liegt das Interesse auf gemittelten Auswertungen auch für hohe Primärenergien. Die PKA's starten in logarithmisch gestuften Abständen zur jeweiligen Grenzfläche oder aber innerhalb eines Kornes. Wegen der hohen Energien muß die Zahl der Kaskaden gegenüber den detaillierten Analysen reduziert werden (ca. 200 Kaskaden bei 1 MeV).

In Beryllium werden vorrangig Korngrenzen, aber auch Phasenübergänge zu BeO-Einschlüssen, Hohlräume (Voids) und He-Blasen modelliert. Im Lithiumorthosilikat liegt der Schwerpunkt der Untersuchungen auf Phasengrenzen zum Metasilikat.

#### 5.7.1 Körner: Beryllium

##### 5.7.1.1 Kaskadenausbreitung entlang der Grenzflächennormalen

Als Korn wird ein Würfel der Kantenlänge 100 nm betrachtet (vgl. **ABB. 5.41**). Am Übergang 1- $\rightarrow$ 2 treffen eine (001)-Ebene und unterschiedliche niedrigindizierte Ebenen des Kornes 2 aufeinander. Das Be-PKA startet in einer zentralen Position vor dem Korn in Normalenrichtung. Dabei wird eine Divergenz von  $10^\circ$  erlaubt, um im statischen Kristall bei 0 K überhaupt statistische Variationen der Ergebnisse zu ermöglichen. Die Primärenergien betragen 100 eV, 1 keV und 10 keV.<sup>2</sup>

---

<sup>1</sup> Typische Kaskadenbilder finden sich im Anhang, S. 251ff.

<sup>2</sup> vgl. typische Kaskadenbilder im Anhang, **ABB. 8.25f**.

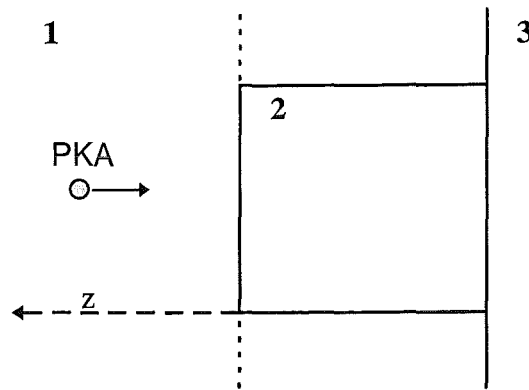


ABB. 5.41: Targetmodellierung für Untersuchungen an lokalen Inhomogenitäten: PKA startet in normaler Richtung auf Korn 2.

Untersucht wird, wie sich die Defektverteilung der Kaskaden mit dem Abstand  $z$  verändert. Dieser wird von  $z = 0$  (d.h. direkt auf der Grenzfläche) bis zu einer Entfernung, die der Reichweite des PKA's angemessen ist, variiert. Bei 100 eV beträgt folglich der maximale Abstand 2 nm, bei 1 keV 8 nm und bei 10 keV bis 70 nm. Referenzwerte zum Vergleich erhält man, wenn das PKA in sehr großer Entfernung ohne Wechselwirkung mit der Grenzfläche gestartet wird.

### Schädigungsdaten

Für die Primärenergie von 100 eV findet man in allen Kombinationen eine merkliche Defekterhöhung von etwa 8 %, wenn das PKA in einem Abstand von 1 nm von der Grenzfläche startet. Jedoch ist bei dieser geringen Energie mit einer mittleren radialen Reichweite  $R$  von etwa 0,7 nm nur ein sehr begrenzter Kristallbereich betroffen, so daß jede kleine Änderung in der Projektilumgebung zu erheblich veränderten Ausbreitungsbedingungen führt. Insofern finden sich Fälle, in denen beim Start an der Grenzfläche eine erheblich niedrigere Zahl von Defektatomen gezählt wird.

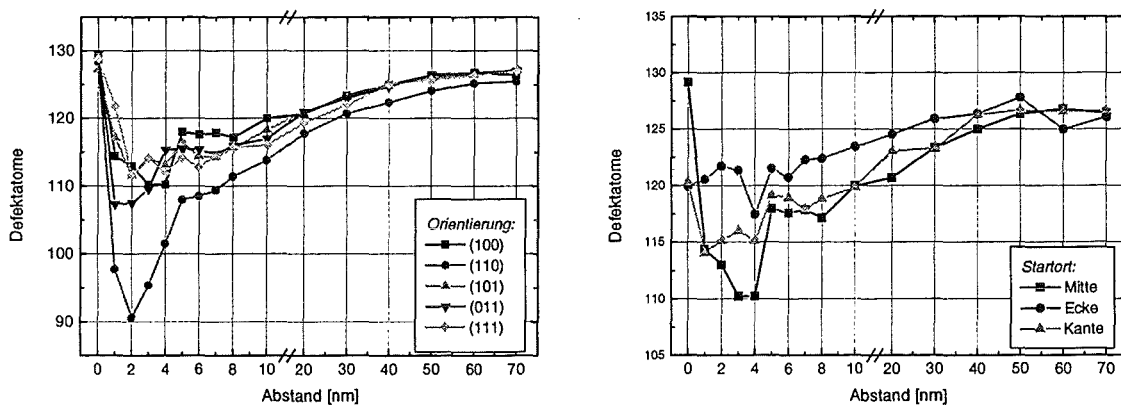


ABB. 5.42: Defekterzeugung ( $\text{Be}^9$  mit 10 keV) in variablem Abstand zu einer Korngrenze: für verschiedene Orientierungen des Korns (links) bzw. Lage des PKA-Startorts bezüglich des Korns (rechts).

Wesentlich robuster sind die Simulationen bei 1 keV und 10 keV. Hier beträgt die mittlere Reichweite des Projektils ca. 6 nm bzw. 55 nm. Hervorstechendes Merkmal aller untersuchten Flächenorientierungen ist eine Depression in der Defektausbeute bei  $z$  um 1 bis 4 nm und der allmähliche, kontinuierliche Anstieg auf den Referenzwert (ohne Grenzfläche) mit wachsendem Abstand (vgl. **ABB. 5.42**, links). Die Differenz zwischen dem Maximum und dem Minimum der Defektausbeute ist bei 1 keV im allgemeinen etwas kleiner als bei 10 keV. Sie beträgt im Mittel ca. 15 % bzw. 20 % für 1 keV bzw. 10 keV.

Startet das Projektil in der zentralen Position vor der Grenzfläche, breitet sich die Kaskade praktisch vollständig vor und im Korn aus. Insbesondere treffen alle PKA's auf ihrer Trajektorie den interessanten Bereich in Korngrannähe. Liegt der Startort jedoch versetzt, so kann sich eventuell ein Teil der Kaskade ohne Wechselwirkung mit den Korngrannflächen ausbreiten. Die Resultate der Simulationen werden also weniger deutliche Effekte aufweisen. Für eine (100)-Ebene wurden deshalb zum Vergleich PKA's auf Höhe einer Kante bzw. Ecke des Kornes gestartet. In diesem Fall trifft theoretisch nur etwa jedes zweite bzw. jedes vierte PKA direkt das Korn, was aber nicht direkt zu einer analogen Reduzierung der Effekte führt. Denn zusätzlich treten Streuprozesse entlang der lateralen Grannflächen auf, die wieder zur Defektverminderung beitragen sollten. Tatsächlich wird ein solches Verhalten beobachtet (**ABB. 5.42**, rechts). Die Defektzahlen sind zwar gegenüber der Zentralposition weniger stark beeinflusst, liegen aber trotzdem mit maximal -6 % (Ecke) bzw. -9 % (Kante) deutlich unter dem Referenzwert (-13% für Zentralposition). Schon beim Start auf Höhe des Korn ( $z = 0$ ) reduziert die laterale Grannfläche die Defektausbeute, während für die Zentralposition sogar eine leichte Defekterhöhung zu beobachten ist.

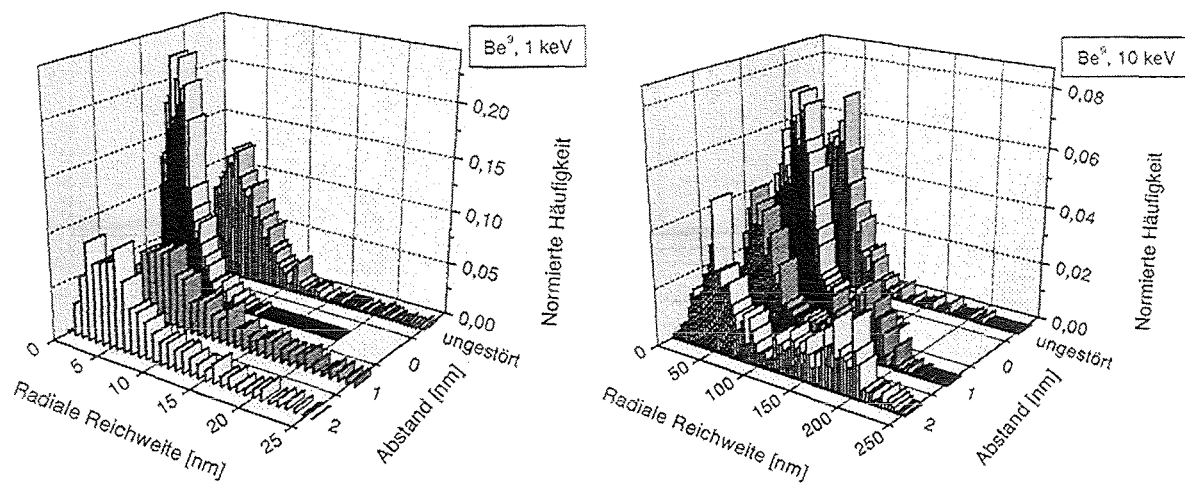
### Channelling

Besonders markante Effekte werden beim Übergang in eine (110)-Ebene erzielt. Die Normalenrichtung ist dabei [110], d.h. ein Gittervektor der Basalebene. Beispielhaft soll an den Kaskadensimulationen für diesen Übergang die typischen Phänomene, die zu dieser Defektentwicklung führen, aufgezeigt werden.

Wenn die mittlere Reichweite der PKA's merklich erhöht ist, werden weniger Defekte produziert. In diesem Fall trifft das Projektil nämlich mehr Gitteratome, verliert also zusätzlich Energie durch lokal-inelastische Überträge an die beteiligten Stoßpartner. Damit sinkt die Schädigungsenergie drastisch ab, besonders stark für höhere Energien. In der Folge werden weniger Atome von ihren Gitterplätzen verlagert.

Starten die PKA's in einer Entfernung um etwa 2 nm von der Grannfläche entfernt, so erzeugen sie relativ wenige Defekte, und ihre mittlere Reichweite ist stark erhöht. Bei 1 keV erhöht sie sich so von normalerweise etwa 6,3 nm auf bis zu 10,2 nm, bei 10 keV von 55 nm auf

92 nm. Dabei ist aber die Verteilung der Reichweiten nicht mehr mit der im Grundmaterial zu vergleichen (s. folgende Abbildung).



**ABB. 5.43:** Reichweitenverteilung an einer Korngrenze: Be<sup>+</sup>-PKA startet in variablem Abstand zur Grenzfläche; Vergleichswert bei ungestörter Ausbreitung in identischer Kristallumgebung.

Beim Start direkt von der Korngrenze ( $z = 0$ ) verdichtet sich die Verteilung, da in diesem Fall durch die kleine Lücke von 0,1 nm zwischen den beiden Layern die nächste Atomreihe versetzt ist. Während dies für höhere Primärenergien weniger entscheidend ist, übt dies auf niederenergetische PKA's einen merklichen Einfluß aus (s. 1 keV). Von der Korngrenze entfernt startend wird die Reichweitenverteilung deutlich breiter, so daß selbst Vielfache der üblichen mittleren Reichweite möglich sind. Mit einer Primärenergie von 10 keV können so einzelne PKA's bis zur hinteren Korngrenze vordringen. Die Reichweitenverteilung bei dieser Energie zeigt dann ein ausgeprägtes zweites Maximum jenseits von 100 nm.

Offensichtlich können hier zwei Mechanismen der PKA-Ausbreitung identifiziert werden. Neben der herkömmlichen im Grundmaterial tritt ein verstärktes Channelling hinzu. Dies äußert sich bei 1 keV darin, daß mehr Projektile weit ins Korninnere vordringen können. Das zeitliche Profil der Kaskaden verlängert sich. Bei einer Energie von 10 keV können die PKA's das gesamte Korn durchqueren und werden dann vorrangig unmittelbar hinter dem Korn gestoppt. Dort werden auch relativ viele Defekte eingebracht, max. etwa 20 % aller Defekte. Mit steigendem Abstand von der Korngrenzfläche bleibt zunächst die Defektsumme vor und hinter dem Korn konstant, während sie im Korn ansteigt (bis ca.  $z = 5$  nm). Der Anteil von Defekten hinter dem Korn bleibt auch bis etwa 8 nm konstant und beträgt immer noch ca. 6 %. Schließlich werden immer mehr Defekte noch vor der Korngrenze erzeugt, der Anteil im Korn nimmt somit drastisch ab.



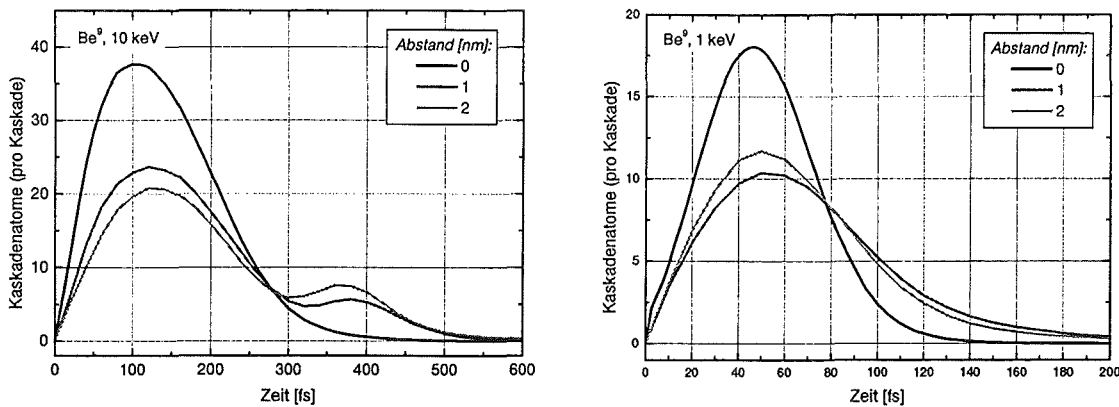


ABB. 5.44: Kaskadenprofile an einer Korngrenze:  $\text{Be}^{\circ}$ -PKA startet in variablem Abstand zur Grenzfläche

Der gemittelte zeitliche Verlauf der Kaskaden (ABB. 5.44) zeigt sehr deutlich diesen Channeling-Effekt. Entlang des ersten Abschnitts der PKA-Trajektorie werden weniger Rückstoßkerne freigesetzt, d.h. der Anstieg des Kaskadenprofils ist weniger steil, und die maximale Zahl von Kaskadenatomen ist deutlich geringer als ohne Channelling. Anschließend werden die Atome nur langsam abgebremst, das Profil verlängert sich entsprechend. Bei einer Primärenergie von 10 keV können nun einige Atome die hintere Korngrenze erreichen. Dort wird das Channelling nachhaltig gestört und relativ viele neue Gitteratome können freigesetzt werden. Das Profil zeigt also eine merkliche Erhöhung, eventuell sogar ein lokales Maximum, wenn die Kaskade diese Korngrenze überwindet.

Liegen die Gitteratome nicht exakt auf ihren Gitterpunkten, so sollte das Ausmaß des Channellings durch das Korn stark reduziert sein. Tatsächlich zeigt dieselbe Kaskadensimulation (Korngrenze ist (110)-Ebene) in einem Targetkristall mit thermisch ausgelenkten Gitteratomen (293 K) eine verminderte Defektreduktion. Sie beträgt bei 10 keV statt bisher etwa 40 % nur noch maximal 17 %. Für kleinere Primärenergien, bei denen Channelling noch keine große Rolle spielt, wird das Resultat dagegen kaum beeinflusst.

Kanalisierte Projektile verlieren entlang ihrer Trajektorie nur wenig Energie und erzeugen auch relativ wenige Kaskadenatome. Beim Austritt aus dem Korn und wegen des dortigen diskontinuierlichen Übergangs weisen sie noch genügend kinetische Energie auf, um dort eine Schar von Atomen freizusetzen. Insofern führt das Channelling zu einer drastischen Defektreduzierung, das anschließende Auffächern aber zu einem entgegengesetzten Effekt. Anschaulich wird dies demonstriert, wenn das Korn doppelt so tief ist (200 nm). Hier ist die Defektreduktion noch ausgeprägter (maximal ca. 60 % bei 10 keV), da nun mehr PKA's ohne Beeinflussung der hinteren Korngrenze durch das Korn propagieren können. Trotzdem sind einige PKA's in der Lage, fast das gesamte Korn zu durchqueren. Die Reichweite zeigt eine sehr weitgestreckte Verteilung mit etwa 20 % aller Projektile oberhalb 150 nm. Deshalb ist auch in diesem Fall ein Einfluß der entfernten Korngrenze zu verzeichnen, der selbst bei Start eines PKA's im Abstand von 10 nm in der Defektausbeute noch bemerkbar ist. Noch größere

Abstände verhindern dann das Auftreffen von einzelnen Kaskaden an der hinteren Korngrenze und die Ergebnisse gleichen denen im kleineren Korn.

### 5.7.1.2 Isotrope Kaskadenausbreitung

Im Unterschied zu den bisherigen Korngrenzen-Simulationen startet nun das Be-PKA im Zentrum des kubischen Kornes. Die PKA's werden isotrop mit Energien bis zu 1 MeV emittiert. Analysiert werden soll dabei, inwieweit sich die Defektausbeute in Abhängigkeit von der Primärenergie gegenüber dem Referenzwert (ohne Korngrenzen) ändert.

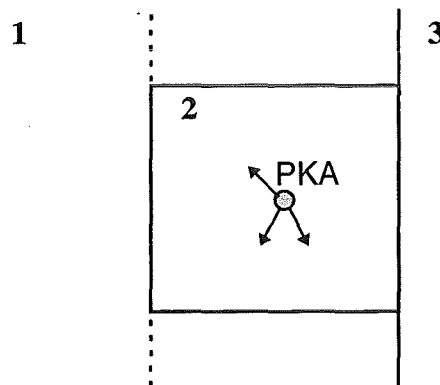


ABB. 5.45: Targetmodellierung für Untersuchungen an lokalen Inhomogenitäten: PKA startet isotrop im Zentrum von Korn 2.

Erst wenn die Primärenergie ausreicht, daß Kaskaden in signifikantem Maße die Korngrenzen durchsetzen, sind prinzipiell ähnliche Effekte wie in den vorigen Simulationen zu erwarten. Bei einem Kornhalbmesser von 50 nm ist dies ab etwa 10 keV der Fall, wo die mittlere radiale Reichweite  $R$  ungefähr 55 nm beträgt. In der folgenden Abbildung sind die Differenzen zum Referenzfall deutlich zu erkennen.

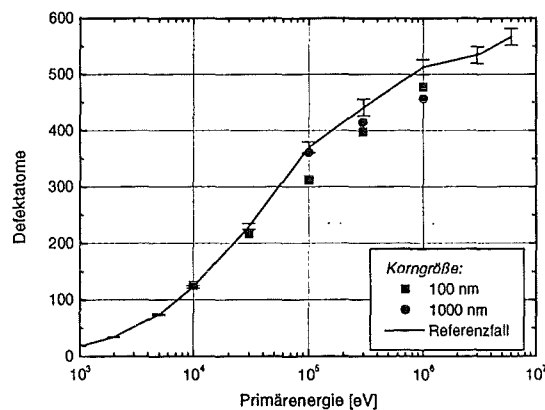


ABB. 5.46: Defekterzeugung durch Be<sup>9</sup>-PKA im Zentrum eines Kornes: Referenzfall ist Kaskadenausbreitung ohne Störung durch Korngrenzen.

Die Defektreduzierung steigt bis zu 13 % bei 100 keV und sinkt dann wieder ab auf immerhin noch 5 % bei 1 MeV. Zum Vergleich in einem Korn der Kantenlänge 1.000 nm, ebenfalls mit einem PKA im Zentrum startend, ergeben sich Differenzen oberhalb etwa 100 keV ( $R \approx 440$  nm), die bis auf etwa 9 % bei 1 MeV ansteigen.

Trifft eine Kaskade die Korngrenze, so verursacht diese offensichtlich defektreduzierende Channellingeffekte. Als typisches Maß der Kaskadenausbreitung hat man die mittlere Reichweite des PKA's. Ist diese vergleichbar mit der Entfernung zu einer Korngrenze, so trifft der Hauptteil der Kaskade diese Grenze. Bei der Primärenergie von 10 keV liegt  $R$  gerade so, daß nur wenige Richtungen eine direkte Wechselwirkung mit Korngrenzen erlauben. Insofern ist die Defektreduzierung praktisch noch nicht zu erkennen. Der Großteil der Defekte wird im Korn produziert (etwa 100 von 125). Ist die Primärenergie größer, so erzeugen die Kaskaden die meisten Defekte außerhalb des Korn. Bei 30 keV sind es ca. 73 %, bei 100 keV schon 93 % der Gesamtdefektzahl. Die PKA's erzeugen auf dem ersten Abschnitt ihrer Trajektorie nur wenige, v.a. niederenergetische Rückstoßatome. Erst in der Auffächerung, die sich für mittlere Energien gerade in Korngrenznähe ereignet, werden die meisten Atome freigesetzt und entsprechend viele Defekte ermöglicht. Kaskaden mit sehr hoher Primärenergie, bei denen die Auffächerung erst weit jenseits der Korngrenzen auftritt, durchsetzen diese relativ ungestört, die Defektreduzierung fällt entsprechend weniger stark aus.

Im größeren Korn wird eine Primärenergie von mehr als 100 keV benötigt, um die Kaskaden bis in Korngrenznähe zu bringen. Dann ist die Defektreduzierung in einer Kaskade mit 1 MeV ( $R \approx 2280$  nm) größer als im kleineren Korn, da nun die Korngrenzen in einer für die Defektentwicklung kritischen Entfernung liegen.

Ist das PKA nicht mehr im Zentrum des kubischen Korns, ist der Einfluß der Korngrenzen abgeschwächt. Dies läßt sich aus den Ergebnissen einer Simulation in einem Korn der Kantenlänge 6.000 nm ablesen, bei der PKA's in einer Tiefe von 500 nm isotrop starten. Die Defektreduzierung selbst bei 1 MeV liegt dann immer noch im statistischen Fehlerbalken, da die Kaskadengröße nur ausreicht, einen kleinen Teil (ca. 1/12) der gesamte Kornoberfläche zu durchsetzen. Deshalb wird auch der Großteil der Defekte, etwa 66 %, innerhalb des Korns erzeugt.

### 5.7.2 Körner: $\text{Li}_2\text{SiO}_4$

#### 5.7.2.1 Kaskadenausbreitung entlang der Grenzflächennormalen

Wegen des teilweise statistischen Charakters der Orthosilikatgitters sind weniger starke Effekte beim Übergang durch Korngrenzen zu erwarten. Die Ergebnisse der Kaskadensimulationen mit gerichteten Li-PKA's in variablem Abstand bestätigen diese Erwartung (s. **ABB. 5.47**).

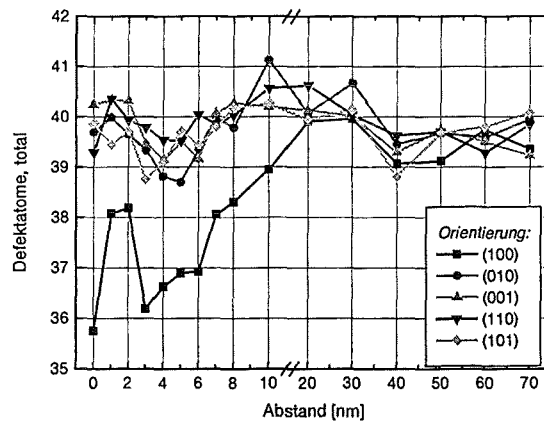
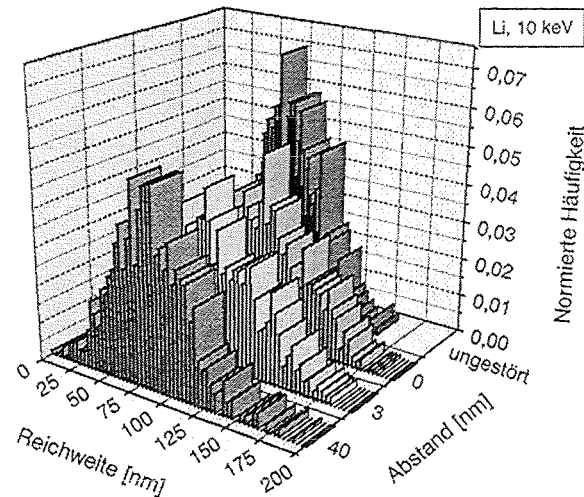


ABB. 5.47: Defekterzeugung (Li mit 10 keV) in variablem Abstand zu einer Korngrenze: für verschiedene Orientierungen des Korn.

Hierbei beträgt die mittlere Reichweite für Li-Ionen der Energie 1 keV etwa 8 nm und für solche mit 10 keV über 80 nm. In der totalen Defektausbeute zeigt lediglich der Übergang (001)  $\rightarrow$  (100) einen relativ starken Effekt, mit einer maximalen Spannbreite von ca. 12 % (bei beiden Energien). Ansonsten weichen die Werte für verschiedene Abstände nur um max. 7 % voneinander ab. Gemeinsames Merkmal in allen Kurven ist die Depression bei etwa 3 nm bis 5 nm, die aber weniger deutlich ausfällt als bei Beryllium. Für 10 keV erkennt man noch eine Absenkung bei ca. 40 nm.

Da die Defektreduzierung in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  weniger deutlich ist als in Beryllium, ist auch das Channeling nicht besonders ausgeprägt. Auch hier korrespondiert eine verlängerte mittlere Reichweite mit einer Defektreduzierung; so kann  $R$  bei 1 keV bis zu 11 nm ansteigen, bei 10 keV bis zu 98 nm, was aber relativ betrachtet nur unbedeutend ist. Entsprechend weist auch die Reichweitenverteilung (ABB. 5.48) im Prinzip dieselbe Form auf, lediglich die Ausdehnung hat sich verlängert. Insgesamt bleibt die Verteilung recht kompakt mit nur der Andeutung einer Häufung oberhalb etwa 110 nm bis ca. 130 nm (beim Start in einem Abstand von 3 nm von der Korngrenze).



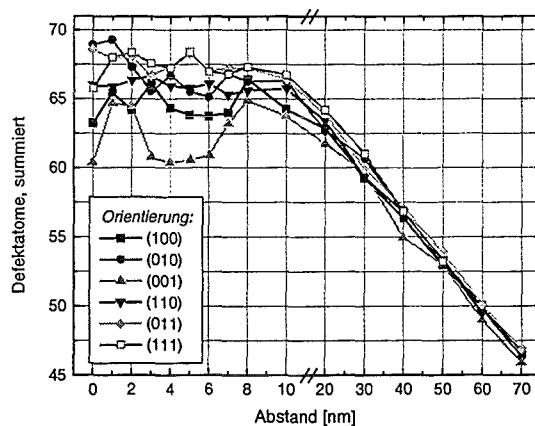
**ABB. 5.48:** Reichweitenverteilung an einer Korngrenze: Li-PKA startet in variablem Abstand zur Grenzfläche; Vergleichswert bei ungestörter Ausbreitung in identischer Kristallumgebung.

### 5.7.3 Phasen: $\text{Li}_4\text{SiO}_4$

#### 5.7.3.1 Kaskadenausbreitung entlang der Grenzflächennormalen

Analog den Simulationen für Korngrenzenübergänge soll nun das Kaskadenverhalten in der Nähe von Phasengrenzen untersucht werden. Dazu wird dieselbe Geometrie verwendet, d.h. ein Li-PKA startet in Normalenrichtung aus einem  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ -Kristalliten in ein kubisches  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ -Korn (Kantenlänge 100 nm). Die PKA's weisen Energien von 100 eV bis 10 keV auf und starten in verschiedenen Abständen zur Phasengrenze.

Wegen der Ausbreitung der Kaskaden in zwei unterschiedlichen Phasen erhält man als Grenzwerte für die Defektausbeute im wesentlichen die Werte für die reinen Phasen. Diese betragen bei isotroper Ausbreitung für 10 keV 39,4 bzw. 69,8 Defekte in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  bzw.  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ . Beim Start von der Phasengrenze erwarten man also Defektwerte, die in etwa dem Referenzwert im Metasilikat entsprechen, analog für große Abstände einen Wert um das Orthosilikat-Resultat. Dies wird auch in den Simulationen bestätigt (am Beispiel der 10 keV-Simulationen, s. **ABB. 5.49**). Trotzdem unterscheiden sich die Resultate für verschiedene Orientierungen bis hin zu Abständen um 20 nm recht deutlich. So weist der Übergang in eine (001)-Ebene des Metasilikats besonders niedrige Defektausbeuten auf mit einer markanten Energieabhängigkeit, nämlich einem breiten Minimum zwischen 3 nm und 6 nm. Andere Orientierungen führen zu mehr Defekten (bis zu 14 %) bei abgeschwächter Energieabhängigkeit. Oberhalb etwa 10 nm fällt die Defektkurve in allen Fällen (relative Differenz ist im allgemeinen kleiner als 5 %) fast linear mit dem Abstand zur Phasengrenze. Extrapoliert man diese Entwicklung bis zum Referenzwert in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ , so liegt der Abstand bei ca. 10 nm für 1 keV bzw. 88 nm für 10 keV. Dies sind ca. 10 bis 20 % mehr als die jeweilige mittlere Reichweite der Li-PKA's in der vorgegebenen Strahlrichtung.



**ABB. 5.49:** Defekterzeugung (Li mit 10 keV) in variablem Abstand zu einer Phasengrenze: für verschiedene Orientierungen der Phasengrenze.

Betrachtet man die Verteilung der Defekte in den zwei Phasen, so findet man einen grob linearen Anstieg der Defektzahl im  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  mit steigendem Abstand von der Phasengrenze. Im Metasilikat-Korn selbst findet man (für 10 keV) dieselben charakteristischen Schwankungen wie in der Gesamtdefektzahl. Dies deutet daraufhin, daß die verschiedenen Orientierungen für unterschiedliche Channellingbedingungen sorgen, denn die Defektausbeute hinter dem Korn zeigt drastische Unterschiede für die verschiedenen Konstellationen. Man beachte aber dabei, daß nur ein kleiner Anteil der Kaskaden bis in diese Region vordringen kann, der statistische Fehler ist dementsprechend groß (typisch sind ca. 10 % gegenüber 2 % vor und im Korn).

### 5.7.3.2 Isotrope Kaskadenausbreitung

Um gemittelte Effekte zu erhalten, die nicht die spezifische Richtungs- und Orientierungsabhängigkeiten der detaillierten Simulationen aufweisen, wurden Li-PKA's isotrop in eine Halbkugel in negativer z-Richtung (d.h. auf die Phasengrenze zu) emittiert. Dabei reichen die Energien bis zu 1 MeV, die Abstände zur Phasengrenze wurden entsprechend vergrößert.

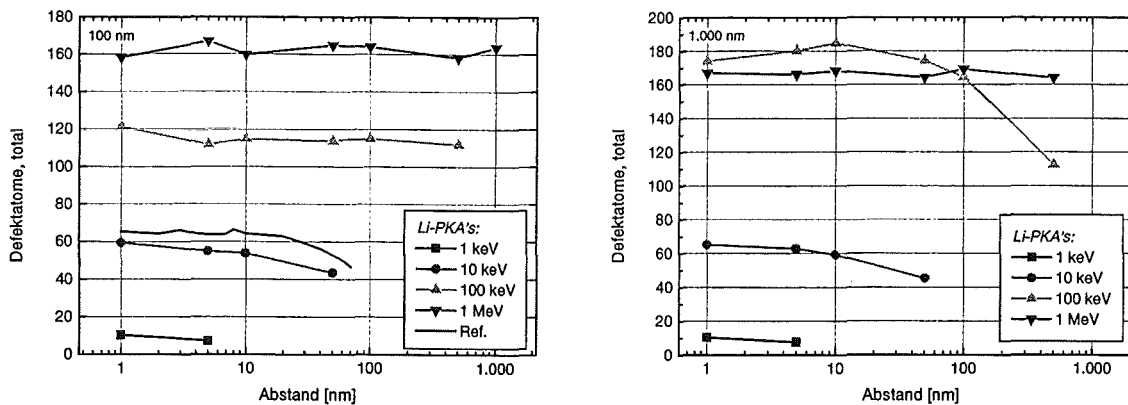


ABB. 5.50: Defekterzeugung in Nähe einer Phasengrenze ( $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ - $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ ): Korngröße ist 100 nm (links) bzw. 1000 nm (rechts).

Auch in diesen Simulationen fällt der Unterschied in der Defektausbeute zwischen den beiden Phasen auf. Nur wenn der Hauptteil der Kaskaden sich innerhalb des Metasilikatkorns ausbreitet, werden deutlich erhöhte Defektzahlen erwartet. Bei einer Korngröße mit 100 nm Kantenlänge führen folglich Kaskaden mit 10 keV bei zunächst kleinen Abständen größtenteils zur Defektausbreitung im Metasilikat. Der Anteil der Defekte im Orthosilikat liegt bei  $x = 1$  nm bei etwa 25 %, bedingt hauptsächlich durch Ausbreitung des PKA's unter großen Winkeln zur Normalen. Bei größeren Abständen erreichen immer weniger Kaskaden das Metasilikat, wodurch sich die Defektzahl langsam dem Wert im Orthosilikat nähert. Im Abstand von 50 nm erhält man so eine um weniger als 10 % oberhalb des  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ -Referenzwerts liegende Defektzahl, und etwa 80 % aller Defekte liegt jetzt im Layer 1.

Li-PKA's höherer Energien durchströmen aufgrund ihrer sehr großen mittleren Reichweite das Korn 2 und deponieren dort nur relativ wenige Defekte. Selbst beim Start direkt vor der Phasengrenze erzeugt also ein Li-PKA mit 100 keV nur etwa 8 % aller Defekte (10 von 121) im Korn 2, bei 1 MeV sind es weniger als 1 % (0,8 von 154). Unter Berücksichtigung des Volumenanteil von Korn 2 an der Halbkugel, deren Radius die Projektilreichweite ist, zeigt sich aber, daß die Defektausbeute im Metasilikat effektiver ist. Dieser Volumenanteil beträgt nämlich für 100 keV ( $R \approx 600$  nm) nur ca. 0,2 %. Eine ähnliche geometrische Betrachtung des Layers 3, also hinter dem Metasilikat Korn, zeigt, daß hier merklich weniger Defekte eingebracht werden als es dem Volumenanteil entspricht. Dies ist auf den ersten Blick überraschend, da ja die Reichweite eine breite Verteilung auch oberhalb des Mittelwerts aufweist und gerade im letzten Abschnitt der PKA-Trajektorie besonders viele Defekte erzeugt werden. Tatsächlich aber wirken sich offenbar die Layerübergänge ungünstig auf die effektive Defekterzeugung aus. Zusammenfassend ist die Defektausbeute für diese hohe Energien praktisch unabhängig vom Abstand des PKA's zur Phasengrenze.

Ein Korn der Kantenlänge 1.000 nm verändert das Defektverhalten dramatisch. Bei 10 keV können sich die Kaskaden nur vor und innerhalb des Korns ausbreiten. Beim Start direkt vor der Phasengrenze wird folglich beinahe der  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ -Referenzwert erreicht, nur etwa 15 % al-

ler Defekte liegt im  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ . Auch bei größeren Abständen liegen die Defektwerte immer oberhalb denen für 100 nm Kantenlänge, da ein größerer Volumenbereich im  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  zur Schädigung beiträgt. Besonders deutlich ist dies bei 100 keV, wo sich nun nur unter großen Winkeln zur Normalen noch Kaskaden am Metasilikat vorbei ausbreiten können. Deshalb wird fast die Defektzahl in reinem  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  erreicht (174 statt 188 Defekte). In einem Abstand von 500 nm spielt dann das Metasilikat nur noch eine schwache Rolle und die Defektzahl fällt drastisch. Für Li-PKA's mit 1 MeV dagegen erhöht sich die Defektzahl nur unwesentlich, da auch jetzt noch der Volumenanteil des Kornes zur Reichweitenhalbkugel klein bleibt. Deshalb ist die Defektausbeute auch in diesem Fall abstandsunabhängig.

Gegenüber den Ergebnissen für das kleinere Korn ist der Anteil der Defekte hinter dem Korn deutlich überhöht bezogen auf den geometrischen Anteil. Dies liegt daran, daß bei 1 MeV die Layergrenzen praktisch keine Rolle mehr spielen, das PKA bzw. die Atome in der Kaskade propagieren nur unwesentlich beeinflusst weiter. Fächert dann die Kaskade weiter auf, so werden mehr Defekte erzeugt, die dann mehrheitlich weit entfernt vom Startort zu liegen kommen.

#### 5.7.4 Phasen: Beryllium

##### 5.7.4.1 Isotrope Kaskadenausbreitung

Phasenübergänge sind in Beryllium wegen des niedrigen Gehalts an Fremdphasen (im speziellen BeO) von relativ kleiner Bedeutung. Deshalb sollen hier nur mittlere Effekte vorgestellt werden. Das Simulationsmodell entspricht dabei dem in den  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ -Berechnungen verwendeten.

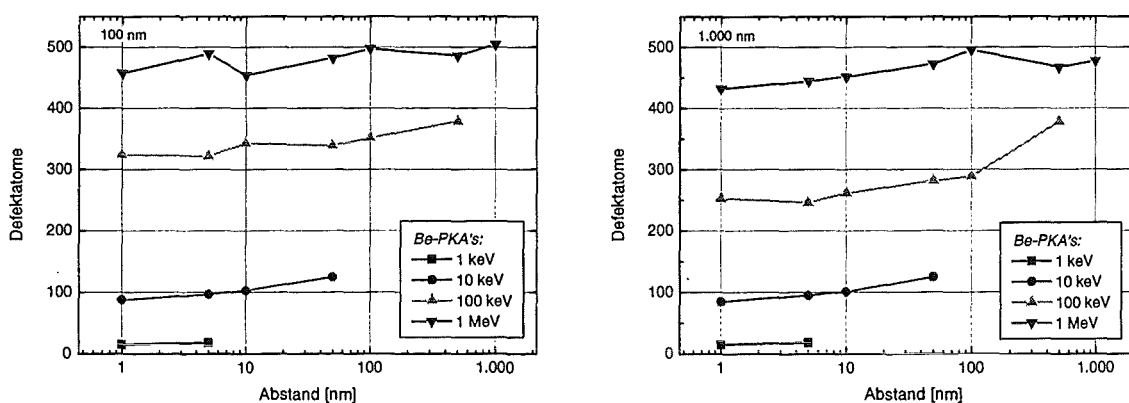


ABB. 5.51: Defekterzeugung in der Nähe einer Phasengrenze (Be-BeO): Korngröße ist 100 nm (links) bzw. 1000 nm (rechts).



Mit wachsendem Abstand zur Phasengrenze steigt die Defektausbeute an, da offenbar durch BeO die Schädigungswirkung abgeschwächt wird. Tatsächlich liegen die Referenzwerte für Defekterzeugung in BeO um etwa 20 bis 40 % unterhalb derer in Be:

**TAB. 5.24:** Defektatome in BeO und Be: Vergleichswerte für Phasenübergang;  $\Delta$  ist Differenz zwischen BeO und Be.

Energie [keV]	BeO	Be	$\Delta$ [%]
1	12,6	19,4	-35
10	85,0	127,9	-34
100	259	385	-33
1000	415	520	-20

Im kleinen Korn wird für Energien bis zu 10 keV zunächst, wie erwartet, vorrangig das BeO-Korn getroffen. Ein Vordringen jenseits des Korns (in Layer 3) ist nicht möglich. Beim Start mit größerem Abstand steigt der Anteil der Kaskaden im Be, so daß sich bei 50 nm die Defekterzeugung fast vollständig im Be abspielt (zu 97 %). Bei höheren Primärenergien wird das BeO-Korn praktisch durchströmt, nur relativ wenige Defekte werden dort deponiert. Für 100 keV übt es aber noch einen starken Einfluß auf die Gesamtdefektzahl aus, denn die Ausbeute erhöht sich in einem Abstand von 500 nm um ca. 16 %. Demgegenüber ist der Effekt bei 1 MeV deutlich geringer (+10 %), jedoch vorhanden. Dies ist sehr verschieden vom Verhalten bei  $\text{Li}_4\text{SiO}_4\text{-Li}_2\text{SiO}_3$ , wo die Defektzahl nahezu unabhängig ist vom Startort. Dafür kommen zwei Ursachen in Betracht: zum einen die gegenüber den leichteren Li-PKA's verkürzte mittlere Reichweite des Be-PKA's und vor allem das intensive Channelling im hcp-Gitter. Der erste Punkt führt zu einem vergleichsweise hohen Volumenanteil des Phaseneinschlusses innerhalb der Reichweitenhalbkugel, während das Channelling vor allem schon in der kleinen Korngröße (100 nm) dominiert.

Die Situation mit dem größeren Korn (1.000 nm) ist für Kaskaden bis 10 keV ohne Belang, da diese schon im kleineren Korn eingegrenzt waren. Jedoch werden nun Kaskaden mit 100 keV ähnlich in das Korn eingekapselt, die Defektzahl variiert folglich sehr stark je nachdem, ob sich der Hauptteil der Kaskaden im BeO ausbreitet oder davor im Be (Anstieg um 50 %). Auch für 1 MeV wird nun ein signifikanter Defektbeitrag im BeO erzeugt, etwa 9 % bis hin zu einem Abstand von 100 nm. Ab diesem Abstand nimmt auch die Defektzahl im Be (Layer 1) stark zu, so daß hier ebenfalls eine abstandsabhängige Defektausbeute vorliegt (maximal +10 %).

### 5.7.5 Hohlräume: Beryllium

#### 5.7.5.1 Kaskadenausbreitung entlang der Grenzflächennormalen

Be-PKA's werden vor der Grenzfläche eines quaderförmigen Hohlraums in Normalenrichtung mit  $10^\circ$  Divergenz gestartet. Die Ausmaße des Hohlraums betragen lateral  $100 \times 100 \text{ nm}^2$  (in x-y-Richtung) und vertikal zwischen 50 und 1.000 nm. Die Primärenergie reicht bis 10 keV, die Abstände zur Voidgrenze variieren bis zu 70 nm.<sup>1</sup> Gegenüber den bisherigen Simulationen sind hier keine Bindungsenergien verwendet. Dies bedeutet, daß man die absoluten Defektausbeuten entsprechend dem Bindungseinfluß korrigieren muß. Die relativen Effekte sind davon aber unbeeinflusst.

#### Schadigungsdaten

Beim Start direkt an der Voidoberfläche ( $z = 0$ ) verursachen die Be-PKA's bei allen Primärenergien deutlich weniger Defekte als im Grundmaterial (vgl. ABB. 5.52). Bei 1 keV beträgt die Reduzierung je nach Größe des Voids zwischen 10 und 20 %, bei 10 keV sind es über 30 % unabhängig von der Voidgröße. Mit steigendem Abstand von der Hohlraumgrenze nähert sich die Defektzahl allmählich dem Referenzwert, wobei für 1 keV die Variation nur noch sehr schwach ist.

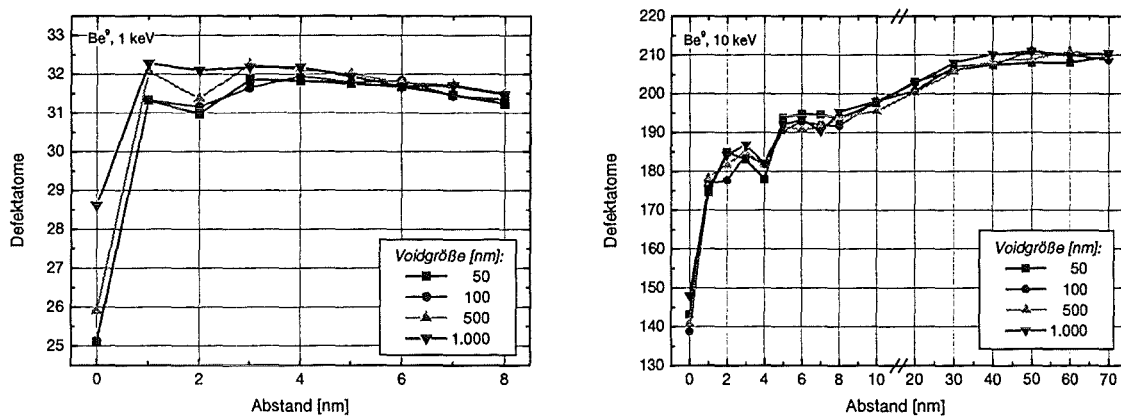
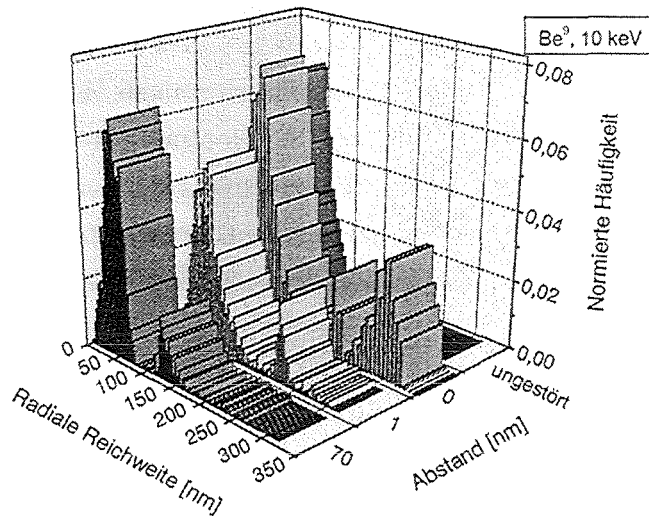


ABB. 5.52: Defekterzeugung in der Nähe eines Hohlraums: Be<sup>+</sup>-PKA mit 1 keV (links) bzw. 10 keV (rechts).

<sup>1</sup> vgl. typisches Kaskadenbild (für würfelförmigen Hohlraum) im Anhang, ABB. 8.27.

Channelling

**ABB. 5.53:** Reichweitenverteilung an einer Hohlraumgrenze (Größe: 50 nm): Be-PKA startet in variablem Abstand zur Grenzfläche; Vergleichswert bei ungestörter Ausbreitung in identischer Kristallumgebung.

Ursache der Defektreduzierung bei Durchtritt durch den Hohlraum ist wie in den bisher behandelten Konstellationen ein verstärktes Channelling, wenn das Projektil eine Layergrenze durchtritt. In der Reichweitenverteilung für 10 keV (am Beispiel der Dicke von 50 nm, s. **ABB. 5.53**) wird dieses Phänomen verdeutlicht: startet das PKA direkt an der Hohlraumgrenze, so durchwandert es zunächst unabgebremst den ganzen Hohlraum. Beim Übertritt in den Kristall können dann neben der herkömmlichen Reichweitenverteilung (liefert den Peak um 100 nm) auch einige PKA in offene Kanäle fokussiert werden. Im speziellen Fall liegt dort eine (001)-Ebene, d.h. wahrscheinlichste Fokussierungsrichtung ist [001] und nach Streuung des Projektils an mindestens einer Atomlage verschiedene andere z.B. [111]. Im ersten Fall folgt das PKA seiner ursprünglichen Flugrichtung und kann sehr weit in den Kristall vordringen. Es erreicht eine radiale Entfernung von ca. 250 nm ab der Kristallgrenze in einer extrem langen Zeitspanne von ca. 1600 fs. In den anderen Fällen wird das PKA abgelenkt und fliegt mit verringerter Energie in einen offenen Kanal. Die Reichweite ist entsprechend herabgesetzt, ein Maximum bildet sich bei ca. 170 nm (ab Kristallgrenze). Dazu benötigt das PKA eine Flugzeit von etwa 800 fs.

Etwas verändert präsentiert sich das Reichweitenprofil beim Start von  $z = 1$  nm. In diesem Fall treten Streuprozesse schon vor dem Eintritt in den Hohlraum auf. Deshalb ist das exakte Channelling in [001]-Richtung praktisch eliminiert, lediglich die höherindizierten Fokussierungen tauchen noch häufig auf (Peak um 220 nm). Starten die PKA's bei  $z = 70$  nm, werden sie größtenteils vor dem Hohlraum abgebremst (Peak um 50 nm). Einige sind jedoch in der Lage, in den Hohlraum vorzudringen. Mit ihrer Restenergie treffen sie dann nach Durchquerung des Voids auf die (001)-Kristallebene, wo nur noch in begrenztem Maße Channelling

möglich ist. Insofern entspricht dem Reichweitenpeak um 120 nm das Abbremsen der PKA's jenseits der Hohlraumgrenze.

Daß diese Channellingeffekte nicht etwa durch Streuung entlang der Voidgrenzflächen entstehen, läßt sich u.a. daraus ablesen, daß die beobachteten Peaks bei allen Voidgrößen erscheinen. Wegen der langgestreckten Form des Hohlraums bei der Dicke von 500 nm können einige PKA's direkt eine Seitenfläche treffen. Deshalb findet man hier einen beträchtlichen Anteil von Reichweiten ab etwa 300 nm (vgl. ABB. 5.54).

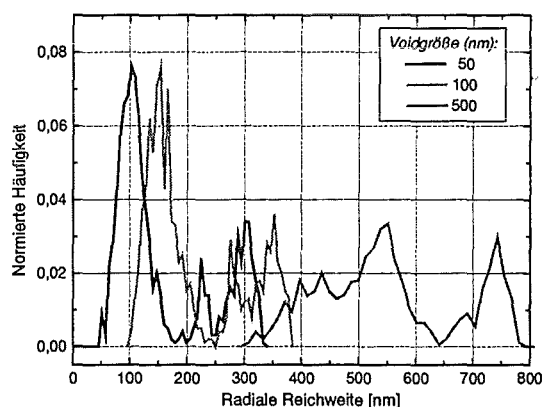


ABB. 5.54: Reichweitenverteilung durch Hohlräume verschiedener Ausdehnung:  $\text{Be}^9$ -PKA (10 keV) startet ab Hohlraumgrenzfläche.

Da ein signifikanter Teil der PKA's fokussiert werden kann, wird durch deren schwache Defektausbeute das Gesamtergebn wesentlich beeinflusst. Tatsächlich findet man für  $z = 0$  eine Defektverteilung, bei der ca. 28 % aller PKA's weniger als 50 Defekte erzeugen. Im Grundmaterial werden im Mittel dagegen ca. 210 Defekte erzeugt.

### 5.7.6 Gasblasen: Beryllium

In Be werden durch Bestrahlung mit schnellen Neutronen He-Atome (über die  $\text{Be}^9(n,\alpha)\text{He}^6$ - und die  $\text{Be}^9(n,2n)2\alpha$ -Reaktion) erzeugt. Diese sind in der Matrix praktisch nicht löslich und bilden deshalb vorrangig intragranulare Blasen, aber auch Kornoberflächenblasen. Die intragranularen Blasen sind sehr klein und weisen eine hohe Gasdichte auf. Typisch sind Durchmesser von 5 nm bis 25 nm mit einer Abflachung von 0,16 (Verhältnis Dicke zu Durchmesser). Sie liegen bevorzugt auf Basalebene [121]. Kornoberflächenblasen sind dagegen deutlich größer, typische Durchmesser liegen bei etwa 0,1  $\mu\text{m}$  [122].

Im Idealfall betrachtet man sphärische Blasen mit Radius  $r$ . Wenn Selbstdiffusion möglich ist, steht der Blaseninnendruck  $p$  im Gleichgewicht mit Oberflächen- und Außendruck [97].

$$p = \frac{2\gamma}{r} + p_{ext} \quad (148)$$

$\gamma$  ist dabei die Oberflächenspannung.

Setzt man ideales Gasverhalten voraus, so findet man für die Gasdichte in der Blase:

$$\frac{N}{V} = \frac{2\gamma}{kTr} \quad (149)$$

Um eine Abschätzung der Gasdichte bzw. des Blaseninnendrucks zu erhalten, verwende man  $\gamma = 2 \text{ J/m}^2$ ,  $T = 673 \text{ K}$  und Radien von  $5 \text{ nm}$  bzw.  $50 \text{ nm}$ . Damit erhält man Dichten von  $8,6 \cdot 10^5 \text{ nm}^{-3}$  bzw.  $8,6 \cdot 10^6 \text{ nm}^{-3}$ . Die Drücke betragen  $8000 \text{ bar}$  bzw.  $800 \text{ bar}$ .

In MARLOWE wird die Heliumblase als Quader zwischen zwei (001)-Ebenen (Basalebene) modelliert. Beschrieben wird das Gas approximativ durch eine einfach-kubische, amorphe Anordnung von Punkten mit einer normierten EZ von  $0,01 \text{ nm}^3$ . Entsprechend der Gasdichte werden die vorliegenden Gitterpunkte statistisch mit He-Atomen besetzt. Diese Verfahren erlaubt es, ein PKA durch das He-Gas zu transportieren, wobei durch die amorphe Anordnung und die schwache statistische Belegung nur unkorrelierte Kollisionen möglich sind. Beim Durchgang des PKA's durch das Gas wird Energie gemäß der vorliegenden Gasdichte dissipiert. Eine Projektilablenkung ist zwar möglich, aber durch obige Maßnahmen (und zusätzlich die kleine He-Masse) nur sehr schwach. Dies wird in den Simulationen tatsächlich beobachtet. Erhalten He-Atome Energieüberträge oberhalb der Cutoff-Energie, werden sie zunächst als verlagerte Atome gezählt. In der anschließenden Defektidentifizierung werden sie aber wieder eliminiert.

Bis auf die unter extremen Drücken stehenden intragranularen Blasen ist die Atomdichte in den Blasen deutlich kleiner als im Be-Gitter. Zusammen mit der niedrigeren Kernladung folgt daraus ein drastisch reduzierter spezifischer Energieverlust. Dieser ist für die intragranularen Blasen mit einem Radius von  $5 \text{ nm}$  am größten und beträgt ca.  $30 \%$  des Be-Wertes. Für die großen intergranularen Blasen liegt der Anteil jedoch bei nur  $3 \%$ . Insofern wird verständlich, daß im Grenzfall großer Blasen ein Verhalten wie in Hohlräumen zu erwarten ist. Dies gilt jedoch nicht für hinreichend kleine Primärenergien, bei denen die PKA's schon in der Blase unter die Schwelle abgebremst werden können.

## 5.7.6.1 Kaskadenausbreitung entlang der Grenzflächennormalen

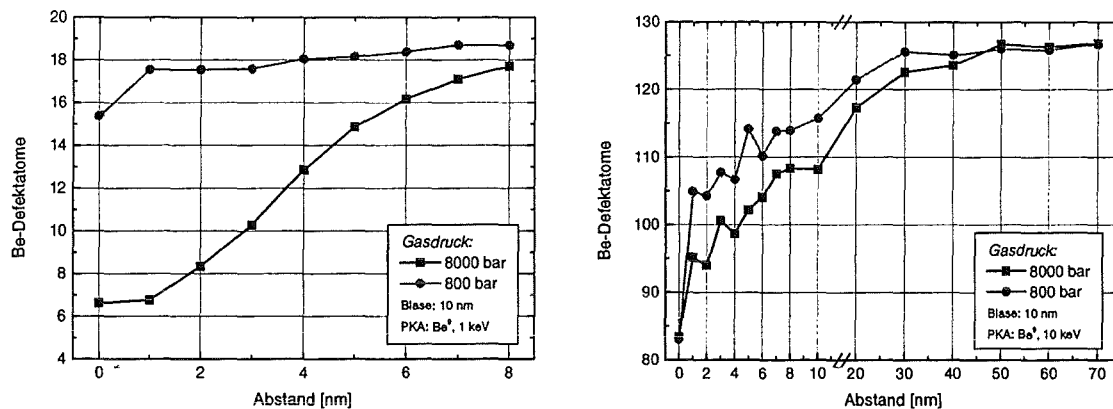


ABB. 5.55: Defekterzeugung an einer intragranularen He-Blase: Nominaldruck ist 8000 bar, zum Vergleich auch mit 800 bar.

Be-PKA's bis 10 keV werden im gewohnten Simulationsmodell (normaler Einfall in verschiedenen Abständen) verwendet<sup>1</sup>. Die Resultate für die unter hohem Druck stehenden intragranularen Blasen (Kantenlänge 10 nm) zeigen bei 1 keV eine drastisch verringerte Defektzahl, die nur allmählich mit wachsendem Abstand zum Nominalwert ansteigt. Denn die Energiedissipation beim Durchgang durch die Blase ist relativ hoch, so daß die PKA's nicht weit in den Kristall hinter der Blase vordringen können. Die Defekterzeugung ist dort also merklich reduziert. PKA's, die innerhalb der Blase unter den Cutoff fallen, werden in der Simulation nicht weiter verfolgt. Sie werden im folgenden an der Blasenoberfläche ausgeschieden und verursachen keine weiteren Verlagerungen. Die in der Blase getroffenen He-Atome können eventuell die Blasengrenze erreichen und in das Wirtsgitter vordringen. Dort besetzen sie etwa gleichwahrscheinlich Zwischengitterplätze oder leere Be-Gitterplätze (max. etwa 2 Atome pro Kaskade).

Beträgt die Primärenergie dagegen 10 keV, ähnelt die Defektausbeute mehr der für einen Hohlraum derselben Größe. Die Defektzahl für kleine Abstände ist bis über 30 % kleiner als der Referenzwert. Dies liegt in derselben Größenordnung wie für Hohlräume trotz der relativ hohen Materialdichte in der Blase. Tatsächlich ist der Energieverlust bezogen auf die Primärenergie wegen der  $\sqrt{E}$ -Abhängigkeit relativ gering (bei wenigen Prozent). Zusätzlich wird Energie durch Stöße mit den Helium-Atomen übertragen. Dabei ist die Ablenkung des PKA's nicht besonders stark, denn das in der Reichweitenverteilung sichtbare Channelling ist gegenüber den Hohlraumsimulationen kaum abgeschwächt. He-Atome können, wie bei 1 keV beobachtet, in geringem Maße die Blase verlassen. Absolut ist deren Zahl für 10 keV nicht größer, da wegen der höheren Primärenergie die Wahrscheinlichkeit für beträchtliche kinetische Energieüberträge geringer geworden ist.

<sup>1</sup> vgl. typische Kaskadenbilder im Anhang, ABB. 8.28f.

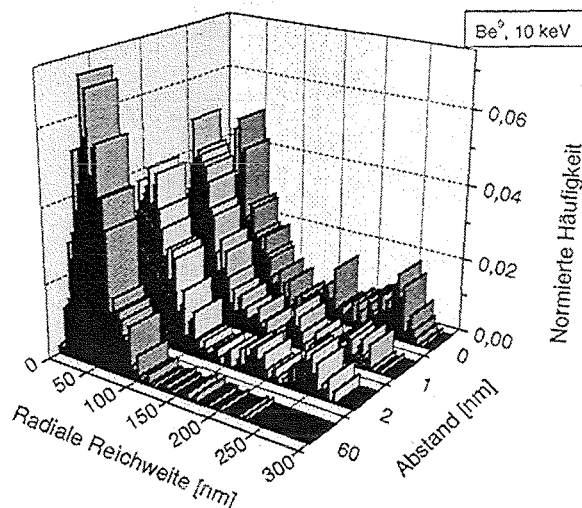


ABB. 5.56: Reichweitenverteilung in der Nähe einer He-Blase (10 nm).

Zum Vergleich wurde für dieselbe Blasengröße eine zehnfach reduzierte Gasdichte angenommen, die der einer großen Kornoberflächenblase entspricht. Dabei zeigen die PKA's mit 1 keV praktisch ein abstands unabhängiges Defektverhalten, ähnlich dem durch einen Hohlraum verursachten. Bei 10 keV ist die Defektausbeute etwas höher bedingt durch den kleineren Energieverlust in der Blase. Ansonsten ist aber das qualitative Verhalten praktisch unverändert.

Die Defektentwicklung für eine große Blase (Durchmesser 100 nm, Druck 800 bar) folgt bei 1 keV Primärenergie sehr eng der für eine kleine intragranulare Blase. Dies liegt daran, daß durch den kleineren Druck die Kollisionshäufigkeit herabgesetzt ist und folglich das PKA im Mittel denselben Energieverlust bis zum Erreichen der Blasengrenze aufweist. In beiden Blasen ist zudem der Durchmesser größer als die mittlere Reichweite, d.h. alle PKA's können durch das reduzierte Bremsvermögen der Heliumblase während eines Teils der Trajektorie wesentlich weiter vorrücken als im Be-Kristall.

Diese Voraussetzung ist natürlich bei der Primärenergie von 10 keV nicht mehr erfüllt. Startet das PKA nahe der Blasenoberfläche, propagiert es durch die Blase, wobei wiederum Energieverlust und Ablenkung sich zwischen den beiden Blasengrößen nicht wesentlich unterscheiden. Deshalb ist die Defektausbeute nahezu identisch. Legt das PKA aber schon vor Eintritt in die Blase eine Strecke im Be zurück, kann dies in der großen Blase zu einem verstärkten Abbremsen führen. Immer mehr PKA's werden innerhalb der Blase gestoppt. Der Energieübertrag auf He-Atome steigt an, und hinter der Blase werden weniger Be-Defekte erzeugt.

## 5.8 Ergebnisse der Kaskadensimulationen und Schlußfolgerungen

Stoßkaskaden in leichten mono- oder polyatomaren Materialien, verursacht durch Fusionsneutronen, stellen für die Simulation im Rahmen der binären Kollisionsapproximation starke, neue Anforderungen. Diese betreffen u.a. die hohen Primärenergien bis zu einigen MeV/amu

und die geeignete Wahl der physikalischen Parameter zur Beschreibung der Wechselwirkung zwischen Atomen und Elektronen in teilweise ionisch gebundenen Festkörpern.

Ganz allgemein findet man als typisches Kaskadenbild für leichte PKA's eine bei kleinen Energien relativ kompakte Verteilung von beteiligten Atomen im zeitlichen Ablauf der Kollisionskaskade. Während einer relativ zur gesamten Kaskadendauer kleinen Zeit werden Atome von Gitterplätzen verlagert, bis ein Ausgleich durch Abbremsung unter die Cutoff-Schwelle erreicht ist. Danach klingt die Kaskade über eine vergleichsweise lange Zeit ab. Bei hohen Primärenergien spielen streifende Kollisionen innerhalb der Kaskade eine beherrschende Rolle. So werden zunächst nur wenige Atome freigesetzt, wobei über lange Zeiten praktisch kein Kaskadeneffekt auftritt. Erst wenn die kinetische Energie des primären Kerns entscheidend reduziert ist, können wieder mehr Atome verlagert werden und es bildet sich ein Kaskadenpeak, der aber bezüglich kleineren Primärenergien nicht vergrößert ist. Im Extremfall (z.B. für  $\text{He}^4$  oder  $\text{Li}^6$ ) kann so eine absolute Defektreduzierung bei den höchsten Rückstoßenergien im Blanket festgestellt werden.

Dieser Effekt steht im krassen Gegensatz zu dem vom NRT-Modell vorhergesagten Verhalten, das jedoch qualitativ bestätigt wird. Demnach findet man in den untersuchten Materialien einen fast linearen Zusammenhang zwischen Schädigungsenergie und Anzahl stabiler Punktdefekte. Genauer ist die effektive Verlagerungsschwelle nicht konstant, sondern steigt für kleine Primärenergien stark, für höhere schwächer mit etwa 1 eV pro logarithmischem Energieinkrement an. Dabei ist sie zudem abhängig vom jeweiligen PKA, nämlich größer für leichtere PKA's.

### 5.8.1 Parameteranalysen

Der Einfluß der in einer BCA-Simulation, und speziell im MARLOWE-Code, verwendeten Parameter (physikalische Eingangsgrößen, BCA-Modell und quasisimultane Stöße, Modellparameter) auf die Kaskadenresultate wurde in einer Reihe von Simulationen untersucht und bewertet.

Demnach hat die Abschirmung der rein repulsiven *Potentiale* einen starken Einfluß auf die Defektausbeuten, v.a. bei hohen Primärenergien, wo die Differenzen zwischen verschiedenen interatomaren Potentialen zudem noch ansteigen. Teilweise abgeschirmte Coulomb-Potentiale, wie sie in ionisch gebundenen Materialien vorliegen, führen zu Änderungen in der atomaren Zusammensetzung der Defekte und zu einer totalen Defektreduzierung gegenüber der Verwendung abgeschirmter Potentiale. Das Rückstoßenergiespektrum der Kaskadenatome wird nachhaltig bestimmt durch die unterschiedlich starken ionischen Ladungen der einzelnen Konstituenten, was wiederum die eigentliche Ursache für die Defektentwicklung darstellt.

Berücksichtigt man im *inelastischen Energieverlust* das gemäß Bethe-Bloch bestimmte Verhalten für hinreichend energetische Atome, so erhält man einen Defektzuwachs oberhalb des



Abbremsmaximums, der in Beryllium typischerweise etwas 10 bis 15 % beträgt. Eine Niederenergiekorrektur, die  $Z_2$ -Oszillationen beschreiben soll, kann dagegen schon bei sehr kleinen Energien starke Auswirkungen haben. Deutlicher sind diese jedoch bei hohen PKA-Energien, da dabei viele Atome innerhalb der Kaskade zum Energieverlust beitragen. Die Aufteilung in lokale und nichtlokale Verluste (d.h. inelastische Energieverluste in einzelnen Kollisionen bzw. entlang der Trajektorie) ist weniger bedeutend. Erst bei extrem hohen Primärenergien führt ein höherer nichtlokaler Anteil in Beryllium zu einer schwachen Defektreduzierung. Bei allen Modifikationen bleibt die effektive Schwelle praktisch unverändert, was ein Hinweis darauf ist, daß der inelastische Energieverlust zwar quantitativ das Defektergebnis beeinflusst, aber keine qualitative Änderung der Defektproduktion impliziert.

Compound-Effekte im Ionisierungspotential, die zu einer Erhöhung gegenüber dem Bragg-Wert führen, erhöhen die Defektausbeute in polyatomaren Materialien, wobei der Zuwachs in Abhängigkeit von der Primärenergie und dem jeweiligen PKA sehr uneinheitlich ausfällt. Erst bei sehr hohen Energien stabilisiert er sich und erreicht je nach PKA Werte um 10 % in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .

Das *lokale Bindungsmodell* und die darin möglichen Spezifikationen der beteiligten Kristallbindungen ist in den hier untersuchten Materialien von relativ geringer Bedeutung. Dies liegt für Beryllium an der hohen Zahl etwa gleichstarker Bindungen im Metallgitter. In den Silikaten ist der Effekt etwas stärker, insbesondere im Silikat-Tetraeder. Außerdem sind wegen der unterschiedlichen ionischen Ladungen auch entgegengesetzte Bindungsbeiträge möglich. Änderungen in der absoluten Bindungsenergie wirken sich dagegen besonders stark auf die Defektentwicklung aus. Eine Skalierung auf der Basis der Summe von Cutoff-Energie und mittlerer Bindungsenergie (unter Berücksichtigung lokaler Gitterumgebungen) ist in Beryllium für die effektive Verlagerungsschwelle sehr gut möglich. Für die Defektanzahl gilt dies zwar weniger genau, doch ist auch hier die Korrelation eindeutig gegeben.

In den polyatomaren Silikaten tragen die Bindungsstärken aller Konstituenten zur Gesamtdefektausbeute bei. Insofern ist eine Normierung von effektiver Schwelle oder Defektzahl bezüglich Cutoff und Bindungsenergie ungleich schwieriger als in Beryllium. Zumindest für die effektive Schwelle wurde eine Korrelation bezüglich einer geeignet gemittelten Bindungsenergie aufgefunden, die jedoch deutlich schlechter ist als in Beryllium.

*Verbesserte Stoßintegrale*, die in der Behandlung der inelastischen BCA erforderlich sind, haben einen relativ schwachen Einfluß auf leichte Materialien mit offenen Kristallgittern (z.B. Beryllium). Sie führen zu etwas längeren Kaskadenzeiten, obwohl die zeitliche Entwicklung der sich ausbreitenden Kaskade beschleunigt ist. Für sehr hohe Primärenergien wird ein Defektzuwachs von wenigen Prozent erzielt, die effektive Verlagerungsschwelle bleibt davon aber unberührt.

Die Behandlung unabgeschirmter Coulomb-Potentiale erzwingt die Einführung eines *Potential-Cutoffs* zur Berechnung des Zeitintegrals. Dieser Cutoff für einzelne Defektspezies zu un-

terschiedlichen Abweichungen, da Potentiale zwischen stark geladenen Ionen besonders kraß abgeschnitten werden. Entsprechend ändert sich auch das Rückstoßspektrum in der Kaskade. In der Summe erhält man für höhere Cutoffs einen leichten Defektanstieg, der selbst bei Verdoppelung der Cutoff-Länge nur ca. 5 % beträgt (in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ ).

Ausgesprochen sensitiv reagiert die Defektausbeute auf Modifikationen der *Cutoff-Energie*  $E_c$ . Diese ist somit ein besonders kritischer Parameter für die BCA-Simulation, und es bedarf einer sorgsamten Abschätzung, welcher Wert für eine gegebene Fragestellung geeignet ist. Während die Schädigungsenergie naturgemäß nahezu unbeeinflußt durch  $E_c$  ist und damit als universeller Schädigungsparameter angesehen werden darf, ändert sich die Defektzahl sehr drastisch. Für Be sinkt sie z.B. um 50 %, wenn man  $E_c$  von 3,3 eV auf 15 eV erhöht. Ursächlich hierfür ist in erster Linie die verringerte Zahl von verlagerten Atomen, die den gegensätzlichen Effekt von weniger Rekombinationen bei höherer Cutoff-Energie übertrifft. Für *dpa*-Rechnungen sollte  $E_c$  etwa der Kristallbindungsenergie  $E_b$  entsprechen, denn die Kaskadenresultate skalieren nicht direkt mit der Cutoff-Energie, sondern mit der modifizierten Größe  $\frac{2}{3} E_c + E_b$ . Die Kristallbindungsenergie ist deshalb ein Maß für die Cutoff-Energie. In polyatomaren Materialien mit unterschiedlichen  $E_c$ -Werten wird das Gesamtergebnis von jedem dieser Werte mitbeeinflusst. Wenn jedoch eine Spezies in den Kollisionskaskaden vorherrscht, wie dies für Li in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  zutrifft, so ist deren Cutoff-Energie entscheidend.

Der *maximale Stoßparameter*  $p_{\max}$  zur Bestimmung simultaner Targets muß für Beryllium (rein repulsive, kurzreichweitige Potentiale) den geometrischen Verhältnissen im Kristallgitter angepaßt sein. Ist er zu klein, werden Stoßvorgänge übergangen, andererseits darf er nicht zu groß gewählt werden, da sonst zu viele Kollisionen für eine Nächste-Nachbarn-Wechselwirkung ausgewertet werden. In diesem Falle kann eine leichte Defektreduzierung eintreten, da wegen der steigenden Zahl simultaner Targets kinetische Energieüberträge auf mehr Atome verteilt werden.

In den Silikaten mit interatomaren Potentialen von prinzipiell unendlicher Reichweite sollte  $p_{\max}$  möglichst groß sein, dabei aber deutlich kleiner als der vorgegebene Kristallsuchradius. Andererseits muß man aus praktischen Erwägungen heraus einen Kompromiß zwischen Rechenaufwand und Nutzen eines großen Stoßparameters eingehen. Gegenüber einer Nächsten-Nachbarn-Wechselwirkung erhält man so für den Referenzwert von  $p_{\max}$  eine Verringerung der Defektzahl um etwa 20 %.

Der *Kristallsuchradius*  $d_{\max}$  sollte in jedem Fall etwas größer als der maximale Stoßparameter sein, um Randeffekte in der Kristallsuche zu vermeiden. Ein größerer Wert führt, ähnlich wie bei  $p_{\max}$ , zu einer Defektreduzierung, die jedoch in der Summe relativ schwach ausfällt. Bedingt durch unterschiedliche lokale Kristallumgebungen für die jeweiligen Gitterlagen sind für einzelne Spezies die Änderungen durchaus recht variabel. Trotzdem ist der Effekt bei fixiertem  $p_{\max}$  eher klein.

### 5.8.2 Defektproduktion in Beryllium und Lithiumsilikaten

Die für die *dpa*-Rechnungen erforderlichen Kaskadensimulationen aller relevanten PKA's über den jeweils erlaubten Energiebereich wurden sowohl für das Referenzmaterial (reines Be,  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ ) als auch für verunreinigte Materialien und bei erhöhten Temperaturen durchgeführt.

Im Falle von Beryllium wird das NRT-Modell für die Schädigungsenergie qualitativ bestätigt. Die Abweichungen betragen für Be-PKA's bis zu 15 %, für He-PKA's bis 25 %. Der wesentliche Unterschied besteht jedoch im Verhalten bei sehr hohen Energien, wo im Gegensatz zum verbesserten NRT-Modell kein Anstieg, sondern Sättigung bzw. sogar Abnahme zu bemerken ist. Dies ist durch verstärktes Channelling bei Zunahme streifender Kollisionen bedingt.

Die Defektzahl skaliert mit  $E_{dam}$  wie  $N_d = a \cdot E_{dam}^b$  mit dem Exponenten  $b < 1$ . Entsprechend ist die effektive Verlagerungsschwelle  $Q$  energieabhängig. Sie steigt mit der Primärenergie leicht an und ist für die leichten PKA's etwas größer. Dies läßt sich sehr leicht an der Form der Rückstoßspektren, und insbesondere dem Anteil energetischer Atome, ablesen. Oberhalb 3 MeV führt das Channelling von He-PKA's zu einer drastischen Reduzierung der effektiven Schwelle, so daß in diesem Bereich die  $N_d$ - $E_{dam}$ -Korrelation nicht mehr gültig ist.

Die in Beryllium erzeugten Defektpaare weisen vorrangig kleine gegenseitige Abstände auf, wobei dies bei He-PKA's noch stärker zu beobachten ist. In diesem Falle tendiert die Defektverteilung zu weiteren Rekombinationen nach Abschluß der Kollisionskaskade. Die Defektdichte in Beryllium weist ein lineares Verhalten auf, d.h. es skaliert direkt mit der Anzahl erzeugter Defekte und ist nahezu konstant auch für verschiedene PKA's. Die Zwischengitteratome besetzen dabei bevorzugt tetraedrische Zwischengitterpositionen. Leerstellen bilden überwiegend Paare in der Basalebene, aber auch Tripletts über drei parallele Basalebenen sind häufig anzutreffen

Kaskaden im thermischen Kristallgitter führen zu einer Verringerung der Defektzahl, die im mittleren Energiebereich besonders ausgeprägt ist und bis maximal 20 % beträgt. Zu höheren Energien verringert sich der Effekt, ebenso wie bei kleinen Energien. Auffallend ist, daß  $E_{dam}$  nun besser mit dem NRT-Modell übereinstimmt, d.h. die relative Differenz ist kleiner und auch der Anstieg bei hohen PKA-Energien ist zu beobachten. Dies kann dadurch erklärt werden, daß im thermisch gestörten Kristallgitter die induzierte Asymmetrie zu einem verringerten Channelling führt. Deshalb ist die Defektproduktion bei kleinen Energien eher behindert (weniger Ersetzungsstöße möglich), bei hohen dagegen erleichtert. Offensichtlich ist die Kristallsymmetrie die entscheidende Größe, die zu Abweichungen vom NRT-Modell führt.

Untersuchungen des Einflusses von O-Verunreinigungen in homogener Verteilung (bis zu 1 at%) zeigen praktisch keine Veränderung in den Kaskadenresultaten. Lediglich die Simula-

tionen für Phasenübergänge von Be zu BeO weisen auf die lokale Bedeutung von Verunreinigungen hin. Im globalen betrachtet verwischen sich dann diese Effekte.

Auch Kaskaden in reinem  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  zeigen für die unterschiedlichen PKA's ein qualitativ richtiges Verhalten der Schädigungsenergie. Dabei sind aber die absoluten Werte nicht direkt mit dem NRT-Modell vergleichbar. Während dies für Si-PKA's (in einem mittleren Target mit  $M = 13,2$  und  $Z = 6,4$ ) noch vergleichsweise gut möglich ist, steigt die Diskrepanz je leichter das PKA und je größer die PKA-Energie ist (-50 % für Li bei 7,4 MeV). Trotzdem weisen auch in den BCA-Simulationen leichte PKA's den vorhergesagten Anstieg bei hohen Energien auf. Dies ist ein Hinweis auf das relativ schwache Channelling im monoklinen Orthosilikatgitter mit partiell besetzten Li-Lagen.

Die effektiven Schwellen weisen das aus den Be-Simulationen bekannte Verhalten auf, mit energie- und PKA-abhängigen Werten, wobei für die beiden leichtesten PKA's,  $\text{He}^4$  und Li, ein deutlicher Abfall der Schwelle bei den höchsten Rückstoßenergien zu verzeichnen ist. Bedingt durch Rekombinationen auf partiell besetzte Li-Lagen beträgt die Anzahl freier Zwischengitteratome nur etwa 43 % der Anzahl von Leerstellen. Der Anteil von Fehlordnungsdefekten übertrifft demzufolge diese Zahl und beträgt etwa 50 % der Leerstellenanzahl. Zählt man jedoch uneigentliche Rekombinationen auf partiell besetzte Li-Lagen nicht als Gitterfehlordnung, sondern als Zwischengitterdefekte, so erhält man einen Anteil von durchschnittlich 70 % für Gitterdefekte und 25 % für Fehlordnungsdefekte. Beide Defektspezifikationen weisen eine starke Abweichung von der Stöchiometrie auf mit einer letztlich bevorzugten Ausbildung von O-Defekten. Ursache hierfür sind weniger die unterschiedlichen Bindungsenergien als vielmehr die veränderte Stoßkinematik bei verschiedenen Massen und ionischen Ladungen, verbunden mit der jeweiligen spezifischen Kristallumgebung. Die Defektpaare sind noch enger als in Beryllium separiert, weshalb auch der Anteil korrelierten Defektpaare signifikant ist (bis zu 50 %). Die Defektdichte ist mit Ausnahme der durch niederenergetische schwere PKA's erzeugten Kaskaden nahezu konstant. In diesen Ausnahmefällen ist sie um wenige Prozent größer. Folge davon ist auch die verstärkte Clusterbildung von Leerstellen, die aber für alle PKA's stark ausgeprägt ist und zu großen Clustern von etwa 5 bis 6 Leerstellen führen kann. Fehlordnungsdefekte neigen noch stärker zur Agglomeration, mithin sind sie im Mittel auch enger gepackt.

Das schon im statischen Kristall schwache Channelling wird im thermischen Gitter nicht wesentlich beeinflusst. Insofern ist Defektreduzierung nur in einem Energiebereich zwischen etwa 1 keV und 100 keV zu beobachten. Die Energieabhängigkeit der Defektänderungen zum statischen Fall zeigt aber ebenso wie in Beryllium höhere Werte (d.h. kleinere Reduzierung) für niedrige und hohe PKA-Energien. Auffallend ist jedoch, daß die Clusterbildung nachhaltig beeinflusst wird, wobei der Anteil großer Cluster signifikant erhöht ist.

Zur Verbesserung der mechanischen Eigenschaften von Orthosilikat-Kügelchen für die Brutkeramikschüttungen im Feststoffblanket werden dem Referenzmaterial  $\text{SiO}_2$  und eventuell auch  $\text{TeO}_2$  zugesetzt. Dabei bildet sich zunächst als zweite Gleichgewichtsphase das Metasilikat. Darin werden sehr ähnliche Kaskaden produziert, da die atomare Zusammensetzung (mittleres Target mit  $M = 14,9$  und  $Z = 7,3$ ) nicht wesentlich von der des  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  abweicht. Da aber keine partiell besetzten Gitterlagen vorhanden sind, ist die Defektzahl um 70 % bis 80 % erhöht (bzw. wegen der speziellen Behandlung von Si und O im Li-Subgitter um lediglich 10 % bis 20 %), und die Fehlordnungsquote beträgt nur noch etwa 30 % der Defektzahl.

Der Temperatureinfluß in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  ähnelt dem in Beryllium mehr als dem in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ . Eine Defektreduzierung um etwa 4 % wird über den gesamten Primärenergiebereich aller PKA's beobachtet. Lediglich  $\text{He}^4$ -PKA's erzielen einen Defektzuwachs um 10 % oberhalb 1 MeV. Dieses Verhalten zeigt also, daß Channelling-Effekte in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  relativ bedeutend sind und bei erhöhten Temperaturen offensichtlich stark herabgesetzt werden.

Te-Verunreinigungen sind im Orthosilikat praktisch ohne Einfluß auf die Stoßkaskaden, da Te-Atome nur verschwindend in der Kaskade partizipieren. Im Metasilikat sind jedoch aufgrund nun freiwerdender Li-Lagen zusätzliche Rekombinationen möglich, so daß eine schwache Defektreduzierung um max. 3 % eintritt und entsprechend mehr Fehlordnungsdefekte auftauchen. Dieser Effekt ist für leichte PKA's bei hohen Energien sogar noch ausgeprägter zu beobachten.

### 5.8.3 Lokale Inhomogenitäten

Neben Kaskaden in monokristallinen und homogenen Materialien wurden auch solche in der Nähe von lokalen Inhomogenitäten simuliert. Dabei handelt es sich im Modell um quaderförmige Strukturen, die Korngrenzenübergänge, Hohlräume, Gasblasen und Phasenübergänge darstellen sollen. Aus den zur Verfügung stehenden Simulationsergebnissen lassen sich einige allgemeine Schlußfolgerungen ziehen, die die Basis für Extrapolationen auf weitere, bisher nicht simulierte Kaskadenkonfigurationen bilden.

Zunächst ist klar, daß die beobachteten Ergebnisse nur auf sehr eng begrenzte Volumenbereiche ( $\mu\text{m}$ -Bereich) in der Umgebung solcher Gitterstörungen anwendbar sind. Auch die Größe der erzielten Effekte lassen den Schluß zu, daß im allgemeinen keine globalen Defektänderungen und damit veränderte Schädigungsraten zu erwarten sind. Andererseits liefern die durchgeführten Simulationen Aussagen über Schädigungseffekte in der Nähe (bis zu etwa 1  $\mu\text{m}$  radiale Entfernung) von Gitterstörungen. Wenn der Volumenanteil dieser Regionen signifikant ist, kann man auch globale Effekte erwarten.

An Korngrenzen in Beryllium erhält man, bedingt durch induziertes Channelling an der Grenzfläche, im allgemeinen eine moderat reduzierte Defektanzahl. Dabei müssen offensichtlich die PKA's in einer gewissen Entfernung von der Grenzfläche starten, damit durch

Kollisionen bereits vor dem Kornübergang fokussierende Richtungen wahrscheinlich werden. Je weiter der Startort von diesem Übergang entfernt liegt, um so geringer wird die Defektverminderung, bis sie etwa jenseits der mittleren Projektilreichweite praktisch verschwindet. Diese Größe stellt gewissermaßen eine charakteristische Länge für den Einfluß von Korngrenzen (und allgemein beliebiger lokaler Inhomogenitäten) auf die Defektentwicklung der jeweiligen Kollisionskaskaden dar. Der maximale Effekt ist energieabhängig und wurde eher konservativ aus den verschiedenen vergleichbaren Daten ermittelt ( $\text{Be}^9$ -Projektil):

1 keV	10 keV	100 keV	1 MeV
-15 %	-20 %	-13 %	-10 %

Dabei muß betont werden, daß auch die Größe des Kornes einen Einfluß auf die Kaskadenresultate haben kann, sofern das PKA in der Lage ist, durch das gesamte Korn zu propagieren. In diesem Fall wirkt auch der zweite Übergang noch defektvermindernd. Die oben angegebenen Werte bezeichnen den maximalen Effekt bei Start des PKA in eine fixierte Richtung auf die Grenzfläche zu. Berücksichtigt man isotrope Ausbreitung, so ist der resultierende Effekt deutlich schwächer, da die Kaskadenausbreitung sowohl teilweise als auch gänzlich den Korngrenzenübergang verfehlen kann.

Bei Vorliegen von thermischen Gitterschwingungen reduziert sich das Channelling drastisch, so daß in diesem Falle von einem verschwindenden Effekt an Korngrenzen ausgegangen werden kann.

Wegen der schwachen Gittersymmetrie in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  sind die Effekte an Korngrenzen dieses Materials vergleichsweise gering und betragen, ebenfalls gemittelt, maximal nur etwa 7 %. Tendentiell erhält man auch hier an jeder Grenzfläche, insbesondere bei mehrfachem Korngrenzenübergang, eine geringe Defektverminderung. Aufgrund des gegenüber Beryllium verringerten Einflusses kann man aber in guter Näherung - auch unter Beachtung von thermischen Gitterschwingungen - den Effekt vernachlässigen.

Hohlräume im Be-Gitter bewirken annähernd unabhängig von ihrer Größe eine Reduzierung der Defektzahl. Ähnlich wie bei einem Korngrenzenübergang können in dieser Konstellation Atome nach Durchquerung des Hohlraums in offene Kanäle des hcp-Gitter fokussiert werden. Hierbei ist offensichtlich der größte Effekt zu erwarten, wenn das PKA direkt von der Hohlraumgrenze startet. Erleidet es dagegen schon Kollisionen vor Eintritt in den Hohlraum, ist das Channelling jenseits davon erschwert, so daß die Defektausbeute wieder ansteigt. Die wiederum vorsichtig abgeschätzten maximalen Differenzen sind folgender Tabelle zu entnehmen (für  $\text{Be}^9$ -Projektil):

1 keV	10 keV	100 keV	1 MeV
~ 0 %	-15 %	-10 %	-10 %

Diese Werte beziehen sich dabei aber nicht auf den Abstand  $z = 0$ , sondern sind so gewählt, daß die weiter unten vorgestellte Abstandsinterpolation über große Bereiche die simulierten Resultate wiedergeben kann. Für  $z = 0$  lauten die maximalen Differenzen für 1 keV bzw. 10 keV -15 % bzw. -30 %.

In gasgefüllten Hohlräumen tritt neben dem Channelling-Effekt auch verstärkte Abbremsung in der Gasphase auf. Kaskaden, die vorrangig in der Gasblase gestoppt werden, führen zu einer drastisch reduzierten Defektausbeute. Insofern wurden zwei typische Heliumblasengrößen (intragranulare Blasen, Durchmesser etwa 10 nm, und Kornoberflächenblasen, Durchmesser etwa 100 nm) untersucht, wobei die größere bereits eher ein Hohlraumverhalten zeigt. Unabhängig von der Blasengröße ergibt sich näherungsweise als maximale Defektreduzierung -60 % für 1 keV und -30 % für 10 keV. Der hohe Wert für 1 keV rührt von der Tatsache her, daß in diesem Fall die Blasendimension größer als die mittlere Reichweite des PKA's ist, so daß sich der überwiegende Anteil der Kaskadenkollisionen innerhalb der Blase ereignen und folglich wenig Defekte erzeugt werden können. Während der maximale Effekt in den beiden Blasengrößen für 10 keV etwa gleich groß ist, bleibt die Defektreduzierung in der großen Blase mit steigendem Abstand signifikant größer.

Phasenübergänge weisen neben Channellingphänomenen auch einen kontinuierlichen Übergang der Defektausbeuten in den beiden benachbarten Phasen auf. Für das System  $\text{Li}_4\text{SiO}_4\text{-Li}_2\text{SiO}_3$  zeigt sich bei gerichteter PKA-Ausbreitung in kleinem Abstand zur Grenzfläche zunächst ein Verhalten, das dem eines Korngrenzenübergang für die zweite Phase ähnelt. Erst mit steigendem Abstand nähert sich die Defektzahl der in der ersten Phase, und zwar in guter Näherung proportional mit dem Abstand. Kleine Phaseneinschlüsse werden von hochenergetischen PKA's praktisch ohne Wechselwirkung durchströmt, während sie für kleinere Primärenergien zum beschriebenen Defektverhalten führen. Insofern sind ausgedehnte Fremdphasen auch für hohe Primärenergien bedeutend.

Beim Übergang Be nach BeO treten prinzipiell dieselben Mechanismen wie in den Silikaten auf. Jedoch sind die Effekte bei kleinen Korngrößen auch für hohe Primärenergien zu verspüren. Ursache hierfür ist das gegenüber den Silikaten weitaus stärkere Channelling, so daß die Defektausbeute noch bei hohen PKA-Energien für jede Korngröße abstandsabhängig bleibt. Die charakteristische Entfernung ist, wie bereits erwähnt, die jeweilige radiale Reichweite des PKA's.

### 5.8.3.1 Extrapolationen

Aus den einzelnen Kaskadensimulationen für lokale Inhomogenitäten müssen für die Schädigungsberechnungen nun tragfähige allgemeine Trends abgeleitet werden. Ziel ist es, für alle PKA's energieabhängige Defektausbeuten bei festem Abstand  $z$  zur Grenzfläche zu erhalten. Dazu werden eventuelle Oszillationen (wie bei Korngrenzenübergängen) ausgemittelt und

zwischen Randwerten (d.h. maximalem Effekt bei einem typischen Abstand von der Grenzfläche bis zu verschwindendem Effekt in großem Abstand) geeignet interpoliert.

Wesentliche Größe zur Abschätzung der Effekte ist in jedem Fall die mittlere radiale Reichweite  $R$  des primären Projektils als Maß für die größte Kaskadenausdehnung. Sie bestimmt die Entfernung, bei der der Einfluß der Grenzfläche für das spezielle PKA verschwindet. Je näher der Startort des PKA's an dieser Fläche liegt, um so stärker werden die Effekte sein, bis zu einem maximalen Wert, der lediglich für Korngrenzenübergänge nicht direkt auf der Grenzfläche liegt.

Im einzelnen kann die Abstandsabhängigkeit an Korngrenzen etwa wie  $z^{-1/3}$  beschrieben werden. Die minimale Defektausbeute wird dazu bei  $z = 0$  angenommen, der Maximalwert bei etwa  $1,1 \cdot R$ . Zusätzlich wird für Abstände, die kleiner sind als etwa  $0,05 \cdot R$ , wieder die ungestörte Defektanzahl angesetzt. Damit wird der Tatsache Rechnung getragen, daß PKA's hoher Energie erst in einem gewissen Abstand durch die Korngrenze gestört werden.

Auch für Hohlräume in Beryllium kann ab etwa 10 keV dieselbe Abstandsabhängigkeit verwendet werden. Um aber für weite Abstandsbereiche hinreichend gute Interpolationen zu finden, muß der minimale Defektwert nach oben angepaßt werden. Er entspricht dann einem Abstand von etwa 2 nm für 10 keV (d.h. wieder etwa 5 % der radialen Reichweite). Unterhalb 10 keV verringert sich der Effekt immer mehr, da für kleine Projektilenergien Channelling nicht bedeutend ist.

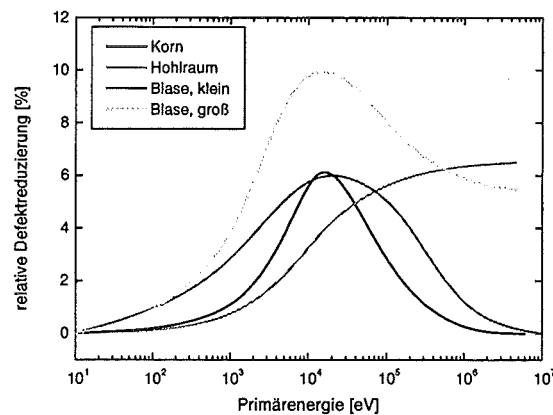
Schließlich ist auch für Gasblasen in Beryllium eine  $z^{-1/3}$ -Interpolation möglich, sofern die Primärenergie nur hinreichend groß ist. Bei kleineren Energien steigt die Defektanzahl deutlich langsamer mit dem Abstand, da sich noch der Großteil der Kaskade innerhalb der Blase ausbreitet und der Be-Kristall jenseits davon kaum betroffen ist. Dann ergibt sich ein Verhalten, das eher dem kontinuierlichen Übergang zwischen zwei unterschiedlichen Phasen entspricht. Insofern kann hier eine grobe lineare Abstandsinterpolation gewählt werden. Während für diese Energien beide typische Blasengrößen zu praktisch identischen Ergebnissen führen, muß im Falle der  $z^{-1/3}$ -Interpolation, zumindest bei 10 keV ( $\text{Be}^9$ ), für jede Blasengröße ein etwas veränderter Verlauf angenähert werden. Bei noch höheren Primärenergien sinkt die maximal erreichbare Defektreduzierung, und die Blase wirkt eher wie ein Hohlraum entsprechender Größe. Tatsächlich ist der relative Energieverlust, bedingt durch die kleine Wegstrecke, um so kleiner, je größer die Primärenergie ist.

Wenn die Ausdehnung jeder einzelnen Phase groß genug ist, um eine Kaskade vollständig aufzunehmen, kann an Phasengrenzen die Defektausbeute linear zwischen den beiden Grenzwerten in den reinen Phasen angenähert werden. Andererseits führen die besprochenen Channelling-Effekte zu Abweichungen von dieser einfachen Regel, insbesondere bei Be-BeO, wo für kleine Abstände die Defektzahl stärker ansteigt. Trotzdem wird angesichts der ohnehin kleinen Differenzen auch für Be-BeO der lineare Ansatz ausgewählt.



Die bisher abgeleiteten Korrekturfaktoren betreffen jeweils nur PKA's, die sich in einer festen vorgegebenen Richtung auf eine Grenzfläche zubewegen. Bei isotroper Ausbreitung, wie sie für *dpa*-Rechnungen nötig ist, müssen nun in geeigneter Weise alle Konstellationen des PKA zur Grenzfläche, insbesondere die unterschiedlichen Entfernungen, berücksichtigt werden. Im einfachsten Modell sei die Grenzfläche eine unendlich ausgedehnte Ebene. Dann wird näherungsweise der Schnitt der durch die mittlere radiale Reichweite des PKA's gegebenen Kugel mit der Grenzfläche den Winkelbereich bestimmen, in dem eine Wechselwirkung mit der Grenzfläche zu erwarten ist. Ist die Grenzfläche aber endlich und vergleichbar mit Kaskadendimensionen, so wird mit wachsendem Abstand der zur Verfügung stehende Raumwinkel für die PKA's kleiner. Alle Winkel, unter denen die Grenzfläche nicht getroffen werden, führen zu herkömmlichen Defektausbildungen (Referenzwerte im homogenen Material).

Die abstandsabhängigen Korrekturfaktoren für Korn-, Hohlraum- und Blasengrenzen können nun auf dem Schnitt der Grenzfläche mit der Reichweitenkugel integriert werden. Schematisch erhält man für einen festen Abstand zur Grenzfläche die in folgender Darstellung ersichtlichen energieabhängigen Korrekturen (am Beispiel von Be<sup>9</sup> im Abstand von 5 nm).



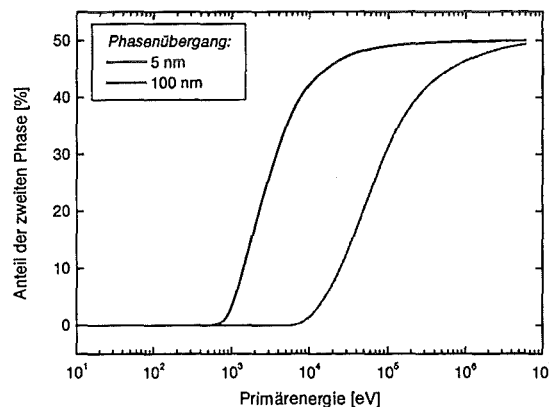
**ABB. 5.57:** Schematische Defektreduzierung an lokalen Inhomogenitäten in Be: Be<sup>9</sup>-PKA startet im Abstand von 5 nm direkt auf Grenzfläche zu.

Bei Korngrenzen erhält man nur in einem mittleren Energieintervall eine Defektreduzierung. Bei hohen Energien und kleinen Entfernungen zur Korngrenze verschwindet nämlich der Einfluß. Dies ist aber bei Hohlräumen nicht der Fall, so daß dort auch energetische Kaskaden weniger Defekte produzieren. Kleine Heliumblasen verursachen über einen relativ breiten Energiebereich eine Verminderung der Defektausbeute, wobei aufgrund des begrenzten Volumens hochenergetische PKA's weniger stark beeinflusst werden. Für die großen Kornoberflächenblasen nähert sich die Defektreduzierung in diesem Energiebereich dem für Hohlräume, bleibt also auf einem relativ hohen Niveau.

Die Kurven verschieben sich bei größeren Abständen zu höheren Energien und verringern ihre Amplitude. Da im speziellen für die Gasblasen in Beryllium eine finite Größe angenommen ist, verschwindet der Effekt für kleine Blasen bereits bei ca. 50 nm, für große Blasen erst bei etwa 100 nm. In allen anderen Fällen erhält man auch noch bei 500 nm eine schwache Defektmodifikation durch den Einfluß der Grenzfläche.

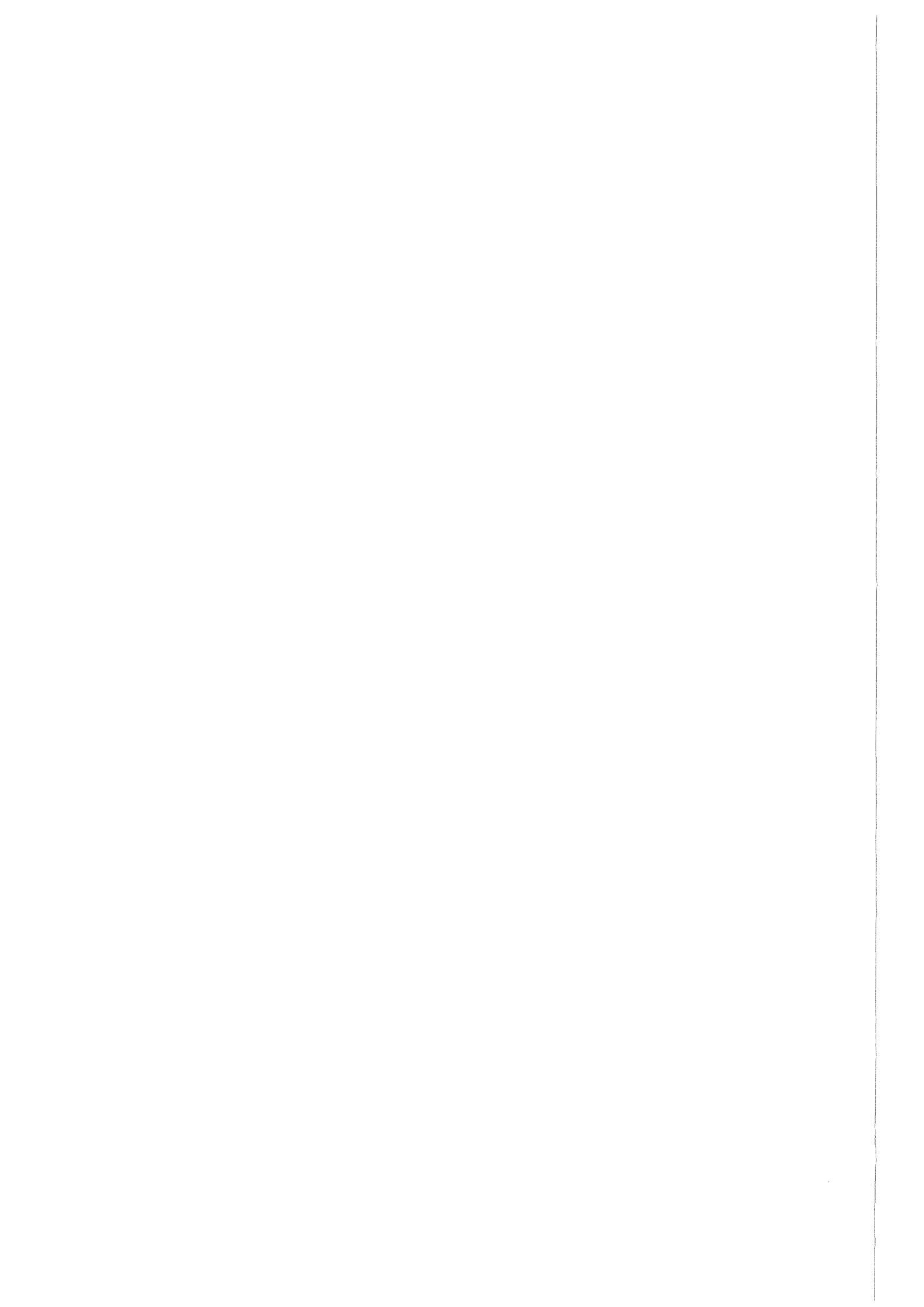
Da für Phasenübergänge näherungsweise eine lineare Interpolation der Defektanzahl zwischen den beiden Referenzwerten in den jeweiligen reinen Phasen möglich ist, führt die Integration der verschiedenen Beiträge bei isotroper PKA-Ausbreitung zu einer einfachen Volumenbetrachtung. Demnach kann der Kugelabschnitt jenseits der Grenzfläche als Anteil der Defekterzeugung in dieser Phase identifiziert werden. Bei gegebener Reichweite  $R$  und Abstand  $z$  beträgt dieser Anteil

$$\frac{2R^3 - 3zR^2 + z^3}{4R^2}; \text{ (Volumen des Kugelabschnitts: } \frac{\pi}{3}(R-z)^2(2R+z) \text{)} \quad (150)$$



**ABB. 5.58:** Defektausbildung an einer Phasengrenze: Beitrag der zweiten Phase bei Start eines  $\text{Be}^9$ -PKA's im Abstand von 5 nm bzw. 100 nm von der Phasengrenze.

Qualitativ (wiederum am Beispiel von  $\text{Be}^9$ ) erhält man die in **ABB. 5.58** gezeigte Kurve. Die Defektausbreitung wird also in einem mittleren Energiebereich stark durch den Phasenwechsel beeinflusst.



## 6 SCHÄDIGUNGSRECHNUNGEN

### 6.1 Methodik der Schädigungsberechnung

Zur quantitativen Erfassung der Strahlenschädigung in Form von Gitteratomverlagerungen berechnet man die Parameter Schädigungsenergiequerschnitt  $\sigma_{dam}$ , Verlagerungsquerschnitt  $\sigma_D$  (für Gitterdefekte, displacements, bzw. Gitterfehlordnungen, disorder) und die Schädigungs-raten  $dpa/s$  (displ) bzw. in polyatomaren Materialien zusätzlich  $ddf/s$  (dis). Dazu benötigt man die Energieverteilung der durch neutroneninduzierte Kernreaktionen entstandenen Rückstoßkerne (bzw. schweren Sekundärteilchen). Die Erzeugung dieser „primary knock-on atoms“ (PKA) ist gewissermaßen das primäre Schädigungsereignis, während die durch die PKA's induzierte Stoßkaskade zu einer sekundären Defektausbildung führt. Diese wiederum kann beschrieben werden durch die Schädigungsenergie  $E_{dam}$ , die Zahl der Defektatome  $N_d$  bzw. der Fehlbesetzungen  $N_f$ , die ein bestimmtes PKA aus einem Reaktionskanal im betrachteten Material mit definierter Energie in der Stoßkaskade erzeugt.

Die Schädigungsquerschnitte kombinieren primäre Schädigung (PKA-Erzeugung) mit der dadurch induzierten Schädigung. In polyatomaren Materialien summiert man die entsprechenden Partialbeiträge aus den einzelnen Reaktionskanälen  $i$  und wichtet diese mit der atomaren Häufigkeit der jeweiligen Targetkerne  $w^{(i)}$  [123, 124]:

$$\begin{aligned} \sigma_{dam}(E) &= \sum_i w^{(i)} \sigma_{dam}^{(i)}(E) = \sum_i w^{(i)} \int_{T_{min}}^{T_{max}} \frac{d\sigma_i(E)}{dT} E_{dam}^{(i)}(T) dT & (151) \\ &= \sum_i w^{(i)} \int_{T_{min}}^{T_{max}} \sigma_{PKA}^{(i)}(E, T) E_{dam}^{(i)}(T) dT \\ \sigma_D^{(displ)}(E) &= \sum_i w^{(i)} \sigma_D^{(displ)(i)}(E) = \sum_i w^{(i)} \int_{T_{min}}^{T_{max}} \sigma_{PKA}^{(i)}(E, T) N_d^{(i)}(T) dT \\ \sigma_D^{(dis)}(E) &= \sum_i w^{(i)} \sigma_D^{(dis)(i)}(E) = \sum_i w^{(i)} \int_{T_{min}}^{T_{max}} \sigma_{PKA}^{(i)}(E, T) N_f^{(i)}(T) dT \\ dpa/s &= \int \sigma_D^{(displ)}(E) \Phi(E) dE \quad ; \quad ddf/s = \int \sigma_D^{(dis)}(E) \Phi(E) dE \end{aligned}$$

$w^{(i)}$	atomare Häufigkeit des Targetkerns für Reaktion $i$
$T_{min}, T_{max}$	min. und max. kinetische Energie des PKA's
$\sigma_{dam}^{(i)}(E)$	Schädigungsenergiequerschnitt für Reaktion $i$ [barn·eV]
$\sigma_D^{(i)}(E)$	Verlagerungsquerschnitt (displ oder dis) für Reaktion $i$ [barn]
$\sigma_i(E)$	Kernreaktionsquerschnitt für Reaktion $i$

$\sigma_{PKA,i}(E,T)$  PKA-Spektrum (Energie  $T$ ) aus Reaktion  $i$  [barn/eV]  
 $\Phi(E)$  Flußdichte der Neutronen [ $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ]

Die Berechnung der Schädigungsparameter (und damit auch der PKA-Spektren) kann zwar prinzipiell punktweise erfolgen, doch ist es üblich und praktikabel, gerade wenn die Wirkungsquerschnitte schnell fluktuieren, gruppengemittelte Werte zu verwenden. Die Multi-gruppenrechnung läßt sich formal an der Gleichung für den Neutronentransport, der Boltzmann-Gleichung, ableiten. Dazu wird die Gleichung über eine Energiegruppe  $g$  (mit Energien von  $E_1$  bis  $E_2$ ) integriert, woraus sich Gruppenkonstanten für Neutronenfluß, Wirkungsquerschnitte und Übergangsmatrizen bestimmen lassen. Als Gruppenstruktur wird in dieser Arbeit eine spezielle 100-Gruppen-Struktur aus dem Schädigungscode SPECTER [7] verwendet, so daß in einfacher Weise die hier erzielten Ergebnisse mit denen aus SPECTER verglichen werden können. Das Aufbereiten der Kerndaten, die in dieser Arbeit der Kerndatenbibliothek ENDF/B-VI [125] entnommen sind, in Gruppenkonstanten geschieht über den Processing Code NJOY [126]. Dabei werden die Spektren in barn ausgegeben, was für die Kondensation mit den Schädigungsfunktionen  $E_{dam}$ ,  $N_d$  und  $N_f$  geeignet ist. Anschaulicher sind jedoch differentielle Spektren ( $\sigma_{PKA}(E,T)$  in barn/eV), deren Werte, bezogen auf den Gruppenwirkungsquerschnitt, die Wahrscheinlichkeit darstellen, daß ein Neutron der Energie  $E$  ein PKA mit der Energie  $T$  bis  $T + dT$  erzeugt.

Da die PKA-Spektren in Gruppenform vorliegen, bietet es sich an, auch die übrigen Größen in einer Multigruppenrechnung zu verwenden. Die Integrationen über die Sekundärenergie (PKA-Rückstoßenergie) reduzieren sich dann auf einfache Summationen:

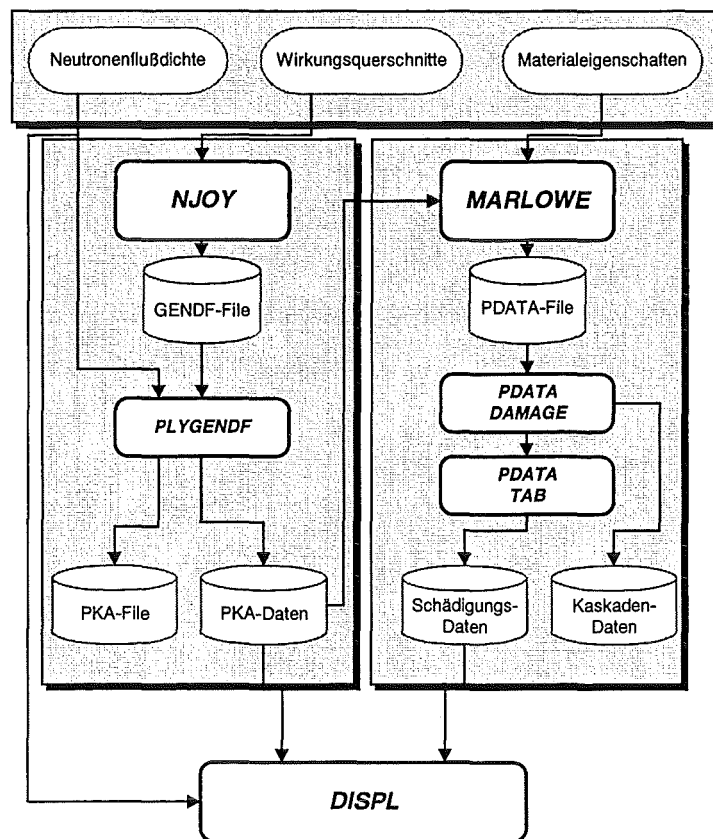
$$\begin{aligned}\sigma_{dam}(g) &= \sum_i w^{(i)} \sum_{g'} \sigma_{PKA}^{(i)}(g, g') E_{dam}^{(i)}(g') \\ \sigma_D(g) &= \sum_i w^{(i)} \sum_{g'} \sigma_{PKA}^{(i)}(g, g') N_{d,f}^{(i)}(g') \\ dpa / s \text{ bzw. } ddf / s &= \sum_g \sigma_D(g) \Phi(g)\end{aligned}\tag{152}$$

mit den Energiegruppen  $g$  (Neutron) und  $g'$  (PKA). Die PKA-Spektren liegen dazu in barn vor, die Neutronenspektren in  $\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ .

$N_d(g)$ ,  $N_f(g)$  und  $E_{dam}(g)$  stellen die gruppengemittelten Werte der kontinuierlichen Verteilungen  $N_d(T)$ ,  $N_f(T)$  und  $E_{dam}(T)$  in der entsprechenden Energiegruppe  $g'$  (mit einer Breite von  $\Delta E_g$ ) dar:

$$E_{dam}(g') = \frac{1}{\Delta E_{g'}} \int_{g'} E_{dam}(T) dT \quad ; \quad N_{d,f}(g') = \frac{1}{\Delta E_{g'}} \int_{g'} N_{d,f}(T) dT \quad (153)$$

Die folgenden Berechnungen der Schädigungsparameter wurde in einem Codesystem, das im wesentlichen die Kopplung der PKA-Berechnung und der Kaskadenresultate beinhaltet, durchgeführt. Bei der Anbindung und Verknüpfung dieser beiden Bereiche wurde das Ziel verfolgt, den Rechenablauf so weit wie möglich konsistent und kompakt zu formulieren. Im Prinzip sollte es auch möglich sein, Schädigungsfunktionen für ausgewählte Materialien aus BCA-Simulationen separat bereitzustellen, die dann quasi in eine Bibliothek aufgenommen werden können. Das gesamte Codesystem ist in der Übersicht der **ABB. 6.1** dargestellt.



**ABB. 6.1:** Codesystem zur Berechnung von Schädigungsparametern mit BCA-Simulationen.

Ausgehend von dem vorliegenden Neutronenenergiespektrum und dem zu untersuchenden Material werden zunächst mit NJOY alle PKA-Spektren in den jeweiligen Basisisotopen berechnet. Die Aufbereitung des GENDF-Datenfiles wird über eine eigene Routine (PLYGENDF) erledigt, die sowohl flußgemittelte PKA-Spektren als auch individuelle gruppenweise Spektren, wie sie in DISPL benötigt werden, bereitstellt.

Aus diesen können nun die Projektile und deren Energien für die MARLOWE-Simulationen ausgelesen werden. Zudem müssen Kristallmodelle und Materialeigenschaften des zu analysierten Materials bereitgestellt werden.

sierenden Materials zusammengestellt und in eine MARLOWE-Eingabe geschrieben werden. Dann können alle MARLOWE-Kaskaden in vorgegebener Anzahl gestartet werden. Sofern man sich auf eine Materialspezifikation beschränkt, reicht die einmalige Simulation aller PKA's mit ausgewählten Energien bis zur maximal möglichen gemäß der PLYGENDF-Ausgabe.

Zur Auswertung der MARLOWE-Ergebnisse wurde der Code zunächst in der Weise ergänzt, daß eine vollständige Ausgabe aller gewünschten Simulationsresultate in ein sequentielles Datenfile (PDATA-File) geschrieben werden. Von dort können über die PDATA-Prozedur tabellarische Schädigungsdaten erzeugt werden, die dann anschließend interpoliert und in Gruppenform transformiert werden.

DISPL führt dann die eigentliche Schädigungsberechnung durch und verwendet dazu direkt die Ausgaben aus PLYGENDF und PDATA, sowie das in Gruppenform vorliegende Neutronenenergiespektrum. Die Ergebnisse, nämlich Schädigungsenergie- und Verlagerungsquerschnitte sowie  $dpa$ - und  $ddf$ -Raten, liegen zum einen in einer tabellarischen Liste vor, zum anderen sind sie direkt zur Visualisierung aufbereitet.

Während die Schädigungsfunktionen  $E_{dam}$ ,  $N_d$  und  $N_f$  für Be und die Lithiumsilikate aus den MARLOWE-Simulationen bereits im vorigen Kapitel vorgestellt wurden, sollen hier zunächst die Berechnung der PKA-Spektren und dann anschließend die eigentlichen Schädigungsergebnisse zusammengefaßt werden. Abschließend werden die in dieser Arbeit erzielten Resultate mit einfacheren Methoden und insbesondere herkömmlichen Lindhard-NRT-Rechnungen verglichen.

### 6.2 Primary-Knock-On (PKA)-Spektren

Durch elastische Streuung bzw. unelastische Kernreaktionen von Neutronen mit der Energie  $E$  werden unterschiedliche PKA's mit einer definierten Verteilung kinetischer Energien  $T$  erzeugt, die abhängig ist von der Primärenergie der Neutronen, der Art der zugrundeliegenden Kernreaktion und der jeweiligen Reaktionskinematik. Das Energiespektrum der PKA's  $\sigma_{PKA}(E,T)$  ist der bezüglich der Sekundärenergie differentielle Wirkungsquerschnitt. In evaluierten Kerndatenbibliotheken (z.B. ENDF/B-VI, EFF2, FENDL2<sup>1</sup>) liegen im allgemeinen jedoch Winkelverteilungen der sekundären Neutronen vor, aus denen dann aber für einfache Zwei-Teilchen-Reaktionen die Energie des Rückstoßkerns berechnet werden kann.

Die entsprechende nichtrelativistische Formel ergibt sich aus Anwendung der Impuls- und Energieerhaltung. Sie ist identisch mit der Glg. (13) aus Kap. 2.2, wobei hier die explizite  $Q$ -Abhängigkeit betont wird, die ansonsten im inelastischen Faktor  $f$  enthalten ist. Dabei ist  $\theta$  der Winkel im Schwerpunktssystem zwischen einlaufendem Neutron und auslaufendem leichten Sekundärteilchen (das nicht unbedingt ein Neutron sein muß).

---

<sup>1</sup> Evaluated Nuclear Data File; European Fusion File; Fusion Evaluated Nuclear Data Library

$$T(E, E_x, \theta) = \hat{m}_3 E_x + \hat{m}_1 \hat{m}_4 E - 2(E E_x \hat{m}_1 \hat{m}_3 \hat{m}_4)^{1/2} \cos \theta \quad (154)$$

$E_x = \hat{m}_2 E + Q$  totale kinetische Energie der sekundären Teilchen

$Q$  Energie - Masse - Konversion

$\hat{m}_i = \frac{m_i}{m_1 + m_2}$  reduzierte Masse für Teilchen  $i$

Maximale und minimale Rückstoßenergien ergeben sich für  $\theta = 180^\circ$  (Rückstreuung) und  $\theta = 0^\circ$  (Vorwärtsstreuung). Durch die Einführung des  $Q$ -Wertes ist auch eine Behandlung unelastischer Reaktionen möglich. Im Falle der elastischen Streuung hat man  $Q = 0$  und  $\hat{m}_1 = \hat{m}_3, \hat{m}_2 = \hat{m}_4$ , so daß sich ein sehr einfacher Zusammenhang ergibt (vgl. Glg. (13)):

$$T = 2\hat{m}_1 \hat{m}_2 E (1 - \cos \theta) = 4\hat{m}_1 \hat{m}_2 E \sin^2(\theta / 2) \quad (155)$$

Reaktionen, in denen drei oder mehr Teilchen entstehen, lassen eine solch einfache Berechnung der Sekundärenergie nicht zu. Hier benötigt man Korrelationen zwischen Streuwinkel und Energien aller sekundären Teilchen in Abhängigkeit von der Primärenergie. Entsprechende Wirkungsquerschnitte mit korrelierten Energie-Winkel-Verteilungen nennt man DDX-Daten (doppelt-differentielle Wirkungsquerschnitte,  $\sigma(E, T, \cos \theta)$ ) und sind für viele Reaktionen in aktuellen Kerndatenbibliotheken enthalten.

### 6.2.1 Neutroneninduzierte Reaktionen

Für die Schädigungsberechnung sind die Reaktionen heranzuziehen, die nicht vernachlässigbare Anteile zur Schädigung beisteuern. Neben der Größe der Anregungsfunktion spielt dabei auch die Verteilung der Energieüberträge an die PKA's und das zu erwartende einfallende Neutronenspektrum eine wichtige Rolle. Die ursprünglich quasi-monoenergetischen Fusionsneutronen mit 14,1 MeV werden nämlich durch die Wechselwirkung mit den Atomen in den das Plasma umgebenden Materialien moderiert und absorbiert, so daß sich je nach Materialzusammensetzung und Eindringtiefe das Neutronenspektrum auf Kosten des Fusionspeaks zu kleineren Energien verbreitert und die totale Flußdichte abnimmt.

In dieser Arbeit sollen Schädigungswerte im Feststoffblanket des DEMO-Reaktors berechnet werden. Ausgewählte Spezifikationen, basierend auf minimalen Anforderungen für Brutblankets, sind folgender Tabelle zu entnehmen:



TAB. 6.1: Ausgewählte Spezifikationen des DEMO-Fusionsreaktors.

Großer Plasmaradius:	6,3 m
Kleiner Plasmaradius:	1,82 m
Plasmastrom:	20 MA
Fusionsleistung:	2200 MW
Mittlere Neutronenwandbelastung:	2,2 MW/m <sup>2</sup>
Maximale Neutronenwandbelastung:	3,8 MW/m <sup>2</sup>
Mittlere Flächenwärmebelastung:	0,4 MW/m <sup>2</sup>
Anzahl der Blanketsegmente:	32 inboard 48 outboard
Blanket-Abschirmungs-Dicke	1,18 m inboard 1,86 m outboard

Für das keramische Feststoffblanket mit Kugelschüttungen von Li<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub> als Brutmaterial und Be als Neutronenmultiplier ergeben sich so gemäß einer 3D-Transportrechnung (s. [127]) in der Höhe der Torusmittelebene folgende typische Neutronenflußdichten (vgl. ABB. 6.2). Dabei sind die Spektren als Gruppenflüsse in einer 100-Gruppen-Struktur dargestellt, wie sie in der Berechnung der Schädigungsquerschnitte und *dpa*-Werte verwendet werden sollen.

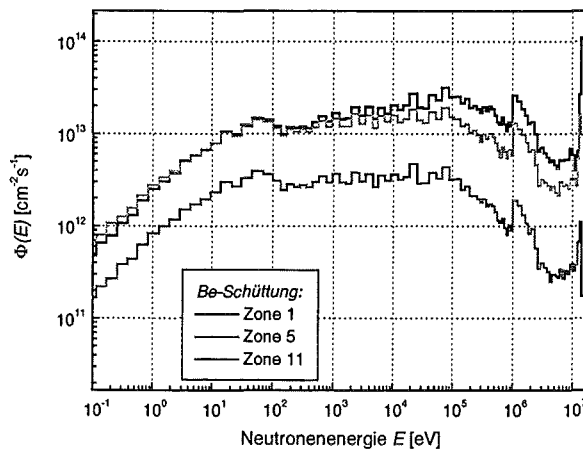


ABB. 6.2: Neutronenenergiespektren im HCPB-Blanket (Gruppenflüsse): Radiale Abhängigkeit im Outboard-Segment auf Höhe der Torusmittelebene (Zone 1 direkt hinter der Ersten Wand, Zone 11 vor der Blanket-rückwand)

Gemeinsames Merkmal dieser Neutronenspektren ist der deutliche Fusionspeak bei 14 MeV, der jedoch schon nach wenigen Zentimetern im Blanket (Zone 1) nur noch etwa 10 % der totalen Neutronenflußdichte ausmacht. Das Moderationsvermögen der leichten Atomkerne, bedingt durch die relativ großen Energieüberträge (gemäß Glg. (154)), ist sehr hoch, so daß auch schnelle Neutronen oberhalb 1 MeV nur einen Anteil von ca. 15 % zum totalen Spektrum beisteuern. Bis hinunter zu etwa 1 eV finden sich dann 98 bis 99 % aller Neutronen, so

daß thermische Neutronen im Fusionsreaktorblanket nur eine sehr untergeordnete Rolle spielen. Die totale Flußdichte im vorderen Blanketbereich (Torusmittelebene, outboard) liegt sowohl im Beryllium als auch in der Brutkeramik bei ca.  $\Phi_{tot} = 1,2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ , wobei die mittlere Neutronenenergie etwa  $\bar{E} = 2,2 \text{ MeV}$  beträgt. Mit zunehmender Tiefe im Blanket (s. TAB. 6.2) sinkt sowohl die totale Neutronenflußdichte auf ca. 1/8 des Maximalwertes, als auch die mittlere Neutronenenergie auf ca. 0,5 MeV.

TAB. 6.2: Neutronenspektren im HCPB-Blanket: Outboard-Segment, Torusmittelebene

Zone	Radiale Tiefe [cm]	Be-Schüttung		Keramik-Schüttung	
		$\Phi_{tot}$ [ $10^{15} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ]	$\bar{E}$ [MeV]	$\Phi_{tot}$ [ $10^{15} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ]	$\bar{E}$ [MeV]
1	2,5 ... 5,5	1,27	2,20	1,19	2,34
2	5,5 ... 8,5	1,24	1,82	1,15	2,01
3	8,5 ... 12,5	1,15	1,52	1,06	1,70
4	12,5 ... 17,5	0,981	1,25	0,897	1,40
5	17,5 ... 22,5	0,788	1,05	0,720	1,17
6	22,5 ... 27,5	0,612	0,903	0,560	1,02
7	27,5 ... 32,5	0,469	0,799	0,423	0,886
8	32,5 ... 37,5	0,352	0,701	0,318	0,807
9	37,5 ... 42,5	0,266	0,630	0,239	0,721
10	42,5 ... 47,5	0,206	0,558	0,184	0,633
11	47,5 ... 52,5	0,167	0,473	0,149	0,543

Naturgemäß liefert die elastische Streuung einen großen Beitrag zur Verlagerungsschädigung, da sie keine Schwelle aufweist und in allen hier untersuchten Materialien über einen hohen Wirkungsquerschnitt verfügt. Die Rückstoßkerne sind Eigenionen, ein Fall, der üblicherweise in *dpa*-Rechnungen vorausgesetzt wird. Schwellenreaktionen (inelastische Streuung, Neutronenvervielfachung, Emission leichter geladener Teilchen) werden weniger stark beitragen, obwohl die leichten geladenen Sekundärteilchen z.T. sehr energetisch sind, insbesondere weil sie bei der Emission aus dem Compoundkern die Coulombbarriere zu überwinden haben. Die beherrschende Brutreaktion in Lithium ( $\text{Li}^6(n,t)\alpha$ ) stellt dazu eine sehr interessante Ausnahme dar. Die Reaktion ist exotherm und weist einen  $1/v$ -Querschnitt bei kleinen Energien auf, so daß sie in diesem Bereich die elastische Streuung an  $\text{Li}^6$  um Größenordnungen übertrifft. Ebenfalls für niedrige Neutronenenergien (thermisch und epithermisch) wichtig wird in vielen Elementen der Strahlungseinfang, also die  $(n,\gamma)$ -Reaktion. Trotz niedrigem Wirkungsquerschnitt werden hochenergetische PKA's (im keV-Bereich) durch den  $\gamma$ -Rückstoß produziert. Tatsächlich findet man in einer typischen Fusionsumgebung nur einen verschwindenden Beitrag zur Verlagerungsschädigung, so daß im folgenden der Strahlungseinfang nicht weiter be-

achtet wird. Wohlgermerkt gilt dies nicht mehr, wenn die thermische Komponente des Spektrum nicht vernachlässigbar ist (etwa in einem thermischen Kernreaktor).<sup>1</sup>

In Beryllium dominiert über den gesamten Energiebereich bis 14 MeV die elastische Streuung über alle anderen Reaktionen. Bereits bei 1,75 MeV setzt dann die (n,2n)-Reaktion ein, die ab 3 MeV mit ca. 0,5 barn die zweitwichtigste Reaktion in Beryllium ist. Die verschiedenen Kanäle dieser Reaktion führen stets zu zwei He<sup>4</sup>-Atomen als Restkerne, die in einer verlässlichen *dpa*-Berechnung integriert werden müssen. Dies zeigt, daß in Materialien kleiner Kernmasse eine strenge Separation zwischen leichten und schweren Reaktionsprodukten nicht sinnvoll ist. Die (n,2n)-Reaktion kann zwar in guter Näherung als Summe sequentieller Zwei-Teilchen- und Zerfallsreaktionen beschrieben werden [128], stellt aber für die PKA-Berechnung eine komplexe Mehrteilchenreaktion dar. In aktuellen Kerndatenbibliotheken liegen aber DDX-Daten der He<sup>4</sup>-Atome vor, so daß eine Auswertung der Spektren und Berechnung von Schädigungsgrößen durch  $\alpha$ -PKA's leicht möglich ist.

Eine weitere Reaktion soll in dieser Arbeit berücksichtigt werden, die (n, $\alpha$ )-Reaktion oberhalb 0,67 MeV. Dabei müssen beide Sekundärteilchen,  $\alpha$  und He<sup>6</sup>, als PKA's gewertet werden. He<sup>6</sup> ist ein  $\beta$ -Strahler mit einer Halbwertszeit von  $\tau = 8,07 \cdot 10^{-3}$  s [129]. Da die Kollisionskaskade selbst für extreme PKA-Energien eine zeitliche Ausdehnung von  $O(10^{-12}$  s) besitzt, kann man innerhalb dieser Zeitspanne He<sup>6</sup> als stabil betrachten und muß nicht den zusätzlichen Rückstoß durch die Elektronenemission integrieren.

Die Tritiumproduktion in Beryllium, über  $Be^9(n,t)Li^7$ , ist von untergeordneter Bedeutung, sowohl für die Tritiumbrutrate im Blanket, als auch für die Verlagerungsschädigung. Analytischen Schädigungsrechnungen [22] zufolge liefert sie einen Anteil von gerade 0,1 % an der totalen *dpa*-Rate.

Die PKA-Produktion in Li<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub> ist gegenüber dem monoatomaren Beryllium gekennzeichnet durch eine Vielzahl möglicher Wechselwirkungen und ebenso vieler unterschiedlicher PKA's. Dabei treten mittelschwere Kerne (aus Reaktionen mit Silizium) bis leichte Kerne (He<sup>4</sup> aus Li<sup>6</sup>(n,t) $\alpha$  und Si<sup>28</sup>(n, $\alpha$ )Mg<sup>25</sup>) auf.

Die Tritiumbrutreaktion in Li<sup>6</sup> zeigt unterhalb etwa 100 keV einen 1/v-Verlauf im Wirkungsquerschnitt, so daß dieser bei thermischen Energien etwa 7000 barn beträgt und den elastischen um etwa vier Größenordnungen übertrifft. Außerdem weist er bei ca. 250 keV eine Resonanz auf. Aufgrund dieser Eigenschaften ist es günstig, Neutronen auf kleine Energien zu

---

<sup>1</sup> Selbst in diesem Falle ist nur in Be ein signifikanter Beitrag zur Verlagerungsschädigung zu erwarten. In Li-Silikaten überwiegt die Li<sup>6</sup>(n,t) $\alpha$ -Reaktion, so daß dort (n, $\gamma$ ) immer einen verhältnismäßig schwachen Einfluß hat (vgl. S. 205)

moderieren, um die Tritiumproduktion zu forcieren. Absorptionsverluste z.B. in  $\text{Li}^7$  treten dann aber in Konkurrenz, so daß eine Anreicherung von  $\text{Li}^6$  vorteilhaft ist. Wegen der exothermen Reaktionswärme von 4,78 MeV treten beide Sekundärteilchen mit vergleichsweise hohen kinetischen Energien auf. Die Tritonen können wegen ihrer geringeren Masse und Kernladung nur relativ wenig Verlagerungen produzieren. Trotzdem ist ihr Einfluß auf die totalen Schädigungsraten, wie man weiter unten sehen wird, recht groß. Da jedoch Simulationsrechnungen bei hohen Primärenergien für dieses leichte Teilchen äußerst zeitaufwendig sind, wurden nur Berechnungen im relevanten Energiebereich durchgeführt. Ansonsten wurden die Resultate gemäß den vorliegenden  $\text{He}^4$ -Daten extrapoliert.

Die elastische Streuung an  $\text{Li}^6$  ist ab etwa 10 keV vergleichbar mit der (n,t)-Reaktion. Oberhalb von 1,75 MeV stehen dann auch inelastische Kanäle offen. Diese führen stets zu einem Aufbruch des Restkerns in Deuterium und Helium. Da aber keine Daten für die Energieverteilung bekannt sind, wird in dieser Arbeit als Restkern  $\text{Li}^6$  mit der vorgegebenen Reaktionskinematik betrachtet. Weitere Reaktionen werden nicht berücksichtigt.

Im schwereren Lithiumisotop  $\text{Li}^7$  übertrifft die elastische Streuung alle anderen Reaktionen. Oberhalb 550 keV können Neutronen auch inelastisch gestreut werden, wobei ab etwa 3 MeV bei Anregungen von höheren Energieniveaus ein Aufbruch des Restkerns in t und  $\text{He}^4$  erfolgt. Wie im Falle von  $\text{Li}^6$  werden jedoch auch hier nur  $\text{Li}^7$ -Atome als PKA's gewertet. Alle weiteren Reaktionen sind, mit Ausnahme von (n, $\gamma$ ) in thermischen Spektren, vernachlässigbar.

Für die schwereren Bestandteile im Orthosilikat,  $\text{O}^{16}$  und  $\text{Si}^{28}$ , ist jeweils die elastische Streuung der größte Partialquerschnitt. In  $\text{O}^{16}$  tritt ab 6,5 MeV dann inelastische Streuung auf, die zum zweitwichtigsten Beitrag anwächst. Höhere Anregungen führen dabei aber stets zur Emission von geladenen Teilchen ( $\alpha$  und p). Trotzdem wird der jeweilige Restkern für die *dpa*-Rechnungen als  $\text{O}^{16}$ -PKA identifiziert. Die (n, $\alpha$ )-Reaktion weist zwar eine relativ geringe Schwelle von 2,4 MeV auf, bleibt aber dann deutlich hinter der inelastischen Streuung zurück, und wird deshalb ebenso wie die (n,p)- und (n,d)-Reaktionen im folgenden nicht berücksichtigt.

Ab 1,3 MeV tritt in  $\text{Si}^{28}$  inelastische Streuung auf, die im Energiebereich zwischen etwa 6 und 14 MeV einen vergleichbar großen Wirkungsquerschnitt aufweist wie die elastische Streuung. Zwei weitere Schwellenreaktionen ab etwa 4 MeV werden in den weiteren Berechnungen verwendet, nämlich (n,p) und (n, $\alpha$ ). Rückstoßkern bei der Wasserstoffproduktion ist  $\text{Al}^{28}$ , das mit einer Halbwertszeit von 2,2 min einen  $\beta$ -Zerfall erleidet [129]. Analog der Begründung für  $\text{He}^6$  in  $\text{Be}^9$  kann auch hier der  $\beta$ -Rückstoß unberücksichtigt bleiben. Zudem wurde der Einfachheit halber und wegen des geringen Anteil der (n,p)-Reaktion die  $\text{Al}^{28}$ -PKA's den  $\text{Si}^{28}$ -PKA's zugeschlagen, da beide Massen gleich sind und die Kernladung nur um -1 abweicht. Im Gegensatz dazu werden die  $\text{Mg}^{25}$ -Rückstoßkerne aus (n, $\alpha$ ) getrennt behandelt.

In den mit  $\text{TeO}_2$  beaufschlagten Keramikkügelchen stellt Tellur trotz seines geringen Gehaltes eine interessante Komponente im PKA-Spektrum dar. Wegen seiner großen Masse sind zwar

die kinetischen Energieüberträge bei elastischer und inelastischer Streuung, die in ENDF/B-VI mit Winkelverteilungen vorliegen, relativ gering, doch die Verlagerungswahrscheinlichkeit im Silikat ist demgegenüber vergleichsweise groß. Deshalb sollen in dieser Arbeit auch Te-PKA aus der breiten Isotopenzusammensetzung (33,9 %  $\text{Te}^{130}$ , 31,7 %  $\text{Te}^{128}$ , 19,0 %  $\text{Te}^{126}$ , 7,1 %  $\text{Te}^{125}$ , 4,8 %  $\text{Te}^{124}$  und weitere) berücksichtigt werden. Die mittlere Masse wird mit 127,6 amu festgesetzt.

Aus den in der evaluierten Kerndatenbibliothek ENDF/B-VI enthaltenen Daten und, für Zwei-Teilchen-Reaktionen, aus der Reaktionskinematik können für die unterschiedlichen Reaktionskanäle die maximalen Rückstoßenergien  $T_{\max}$  für einfallende Neutronen von 14 MeV bestimmt werden. Diese sind in der folgenden Tabelle aufgeführt.

TAB. 6.3: PKA-Erzeugung in Beryllium bzw. Li-Silikaten.

Target	Reaktion	PKA	$T_{\max}$ [MeV]	Target	Reaktion	PKA	$T_{\max}$ [MeV]
$\text{Be}^9$	elast.	$\text{Be}^9$	5,0	$\text{Li}^6$	elast.	$\text{Li}^6$	6,9
$\text{Be}^9$	(n,2n)	$\text{He}^4$	11,2	$\text{Li}^6$	inelast.	$\text{Li}^6$	6,3
$\text{Be}^9$	(n, $\alpha$ )	$\text{He}^4$	11,8	$\text{Li}^6$	(n,t)	$\text{He}^4$	14,1
		$\text{He}^6$	9,6			t	16,2
				$\text{Li}^7$	elast.	$\text{Li}^7$	6,1
				$\text{Li}^7$	inelast.	$\text{Li}^7$	6,0
				$\text{O}^{16}$	elast.	$\text{O}^{16}$	3,1
				$\text{O}^{16}$	inelast.	$\text{O}^{16}$	2,3
				$\text{Si}^{28}$	elast.	$\text{Si}^{28}$	1,9
				$\text{Si}^{28}$	inelast.	$\text{Si}^{28}$	1,8
				$\text{Si}^{28}$	(n,p)	$\text{Al}^{28}$	1,6
				$\text{Si}^{28}$	(n, $\alpha$ )	$\text{Mg}^{25}$	3,5
						$\text{He}^4$	10,6
				Te	elast./inelast.	Te	0,43

### 6.2.2 Energieverteilung der PKA's

Allgemein ergeben sich für elastische Streuung kontinuierliche Spektren der PKA's, die gemäß der Zweikörperkinematik mit jeder Energie bis zur maximal möglichen auftreten können. Geringe Rückstoßenergien sind wegen der Vorwärtsausrichtung der gestreuten Neutronen bevorzugt, so daß die mittleren PKA-Energien vergleichsweise klein sind. Völlig anders stellt sich die Situation für endotherme Reaktionen ( $Q < 0$ ) dar, bei denen wegen der Kernanregung die minimale PKA-Energie z.T. einige keV betragen kann. Die resultierende mittlere PKA-Energie ist dann vergleichsweise groß, und das Spektrum sinkt für kleine Energien stark ab. Handelt es sich, wie z.B. bei der Heliumproduktion, um geladene Sekundärteilchen, so

müssen diese zusätzlich die Coulombbarriere überwinden und weisen deshalb ein zu höheren Energien konzentriertes Spektrum auf.

Die exotherme Tritiumbrutreaktion in  $\text{Li}^6$  produziert wegen  $Q = 4,78$  MeV bereits bei thermischen Neutronenenergien ausgesprochen energetische Helium- und Tritiumatome. So erhält man  $\alpha$ -PKA's mit mindestens 2 MeV Rückstoßenergie bzw. t-PKA's mit mindestens 2,6 MeV. Da zudem der Wirkungsquerschnitt in diesem Energiebereich um Größenordnungen über der elastischen Streuung liegt, wird das PKA-Spektrum vor allem von diesen hochenergetischen Sekundärteilchen beherrscht.

In Sauerstoff überwiegt der Beitrag durch elastische PKA's, die wegen des größeren Wirkungsquerschnittes im Vergleich zu  $\text{Li}^6/\text{Li}^7$  trotz gleicher atomarer Häufigkeit verstärkt auftreten. Inelastisch erzeugte PKA's treten erst bei sehr hohen Neutronenenergien auf und weisen wegen der ausgesprochen hohen Schwelle eher kleinere PKA-Energien auf (Maximalwert bei 14 MeV-Neutronenenergie: 2,3 MeV statt 3,1 MeV bei elastischer Streuung).

Auch in Silizium überwiegt in weiten Bereichen der Anteil elastischer PKA's. Trotzdem wird spätestens ab einer Neutronenenergie von etwa 6 MeV der hochenergetische Ast der Verteilung (oberhalb ca.  $T \approx 200$  keV) bestimmt von den inelastisch gestreuten  $\text{Si}^{28}$ -Atomen und zu einem geringeren Maße von den  $\text{Al}^{28}$ - und  $\text{Mg}^{25}$ -PKA's.  $\text{He}^4$ -Atome aus der  $\text{Si}^{28}(n,\alpha)$ -Reaktion treten dann für diese Neutronenenergien vorrangig ab  $T \approx 2$  MeV auf und bilden den hochenergetischen Abschluß des PKA-Spektrums.

Wegen der nur geringen Konzentration von Te in den Silikatkügelchen ist das PKA-Spektrum an Te gegenüber den Hauptkomponenten verschwindend klein. Da aber andererseits der Wirkungsquerschnitt deutlich größer ist als für die übrigen Elemente, ist der relative Anteil der PKA's mit Energien im keV-Bereich um etwa eine Größenordnung verstärkt, so daß auch diese Verunreinigungs-PKA's, zumindest im angesprochenen Energiebereich, nicht zu vernachlässigen sind. Ihr Anteil in einem über die vorliegende Neutronenflußdichte gemittelten PKA-Spektrum wird im folgendem Abschnitt erläutert.

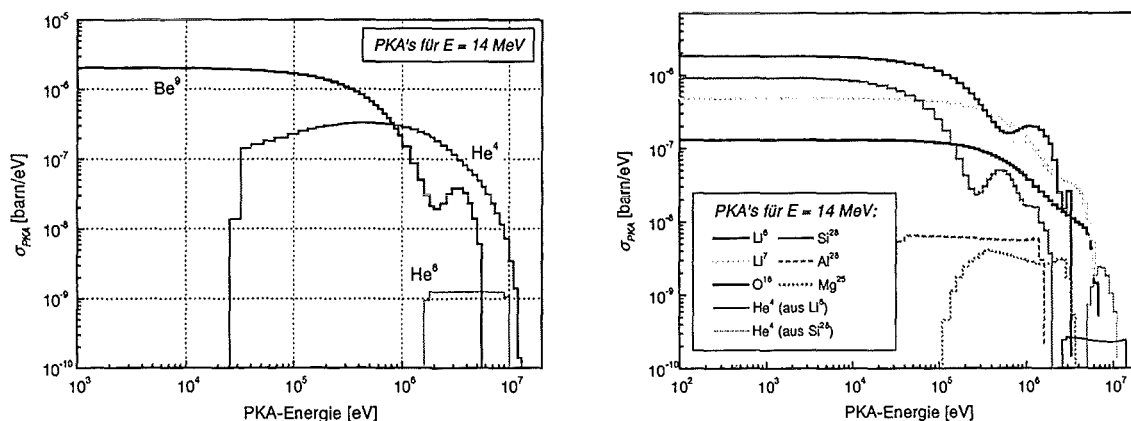


ABB. 6.3: PKA-Spektren für 14 MeV-Neutronen: in Be (links) und  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  (rechts).

Betrachtet man als Beispiel die PKA-Spektren, die durch Neutronen aus dem Fusionspeak (Energiegruppe 95: 14 ... 15 MeV) erzeugt werden (ABB. 6.3), so finden sich die oben angesprochenen qualitativen Unterschiede bestätigt. Wichtige Kenngrößen für die einzelnen PKA's in Beryllium und  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  sind in den beiden folgenden Tabellen aufgeführt. Die minimalen und maximalen PKA-Energien beziehen sich dabei auf die verwendete Gruppenstruktur:

TAB. 6.4: PKA-Daten für 14 MeV-Neutronen in Be

PKA	PKA-Energie [MeV]			Anteil [%]	PKA	PKA-Energie [MeV]			Anteil [%]
	min.	max.	mittl.			min.	max.	mittl.	
Be <sup>9</sup>	0	5,5	0,62	50	Li <sup>6</sup>	0	6,9	1,4	10,2
He <sup>4</sup>	0,025	11,8	2,2	49	Li <sup>7</sup>	0	6,1	1,2	31,5
He <sup>6</sup>	1,6	9,6	5,5	1	O <sup>16</sup>	0	3,1	0,69	44,2
					Si <sup>28</sup>	0	1,9	0,42	9,4
					Al <sup>28</sup>	0,009	1,6	0,75	1,7
					Mg <sup>25</sup>	0,09	3,5	1,7	1,3
					He <sup>4</sup> (Li <sup>6</sup> )	2,6	14,1	8,0	0,2
					t	4,5	16,2	10,3	0,2
					He <sup>4</sup> (Si <sup>28</sup> )	4,5	10,6	8,3	1,3

Man beachte, daß für diese Primärgruppe der (n,t)-Wirkungsquerschnitt in Li<sup>6</sup> um mehr als eine Größenordnung kleiner ist als der elastische. Insofern ist hier ausnahmsweise der Anteil der He<sup>4</sup>- und t-PKA's vergleichsweise gering.

### 6.2.3 Flußgemittelte Spektren der PKA's

Mittelt man die berechneten PKA-Spektren  $\sigma_{PKA}(E,T)$  mit der vorgegebenen energieabhängigen Neutronenflußdichte  $\Phi(E)$ , so erhält man die Energieverteilung der PKA's in einem gegebenen Neutronenenergiespektrum. Daran lassen sich in anschaulicher Weise Aussagen über die Abhängigkeit der resultierenden PKA-Verteilung von der primären Neutronenverteilung gewinnen. Insbesondere erhält man eine Abschätzung, welche PKA's bei welchen Sekundärenergien wesentliche Beiträge zum totalen PKA-Spektrum und damit zur totalen Schädigungsrate liefern werden. Die gemittelten PKA-Spektren hängen dann nur noch von der Sekundärenergie ab:

$$\sigma_{PKA}(T) = \frac{\int \sigma_{PKA}(E, T) \Phi(E) dE}{\int \Phi(E) dE} \quad (156)$$

Für Beryllium erhält man folgende PKA-Spektren unmittelbar hinter der ersten Wand in der Torusmittelebene (Zone 1, outboard):

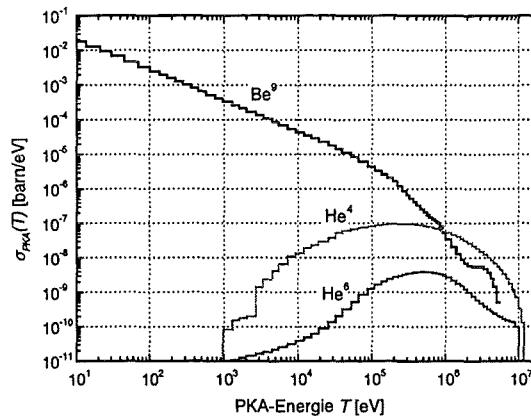


ABB. 6.4: Gemittelttes PKA-Spektrum in Be

Demnach besteht das Spektrum vorrangig aus elastischen PKA's (95,8 %), He<sup>4</sup> liegt zu 4 % vor und He<sup>6</sup> nur zu 0,2 %. Die beiden leichten PKA's bestimmen aber wesentlich den hoch-energetischen Teil des Spektrums. Während die mittlere Be<sup>9</sup>-Energie bei etwa 54,0 keV liegt, beträgt dieser Wert für He<sup>4</sup> bzw. He<sup>6</sup> 1,72 MeV bzw. 1,90 MeV, so daß für das totale PKA-Spektrum ein Mittelwert von etwa 124 keV resultiert.

Etwa 85 % aller PKA weisen Energien unterhalb 100 keV auf, nur 2,6 % liegen oberhalb von 1 MeV. Ab dieser Energie überwiegen dann die leichten PKA's im Spektrum, die in diesem Energiebereich 80 % aller PKA's stellen.

Im hinteren Blanketsegment (Zone 11; radiale Tiefe um 50 cm) ist das PKA-Spektrum deutlich weicher. 99,2 % aller PKA's sind Be<sup>9</sup>-Atome, 0,8 % He<sup>4</sup> und 0,05 % He<sup>6</sup> mit mittleren Energien von 19,6 keV (Be<sup>9</sup>), 1,24 MeV (He<sup>4</sup>) und 1,37 MeV (He<sup>6</sup>). Das totale Spektrum weist nur noch eine mittlere Energie von 30,1 keV auf. Dabei liegen nun 95,5 % aller PKA's unterhalb 100 keV, oberhalb 1 MeV sind es gerade 0,5 %.



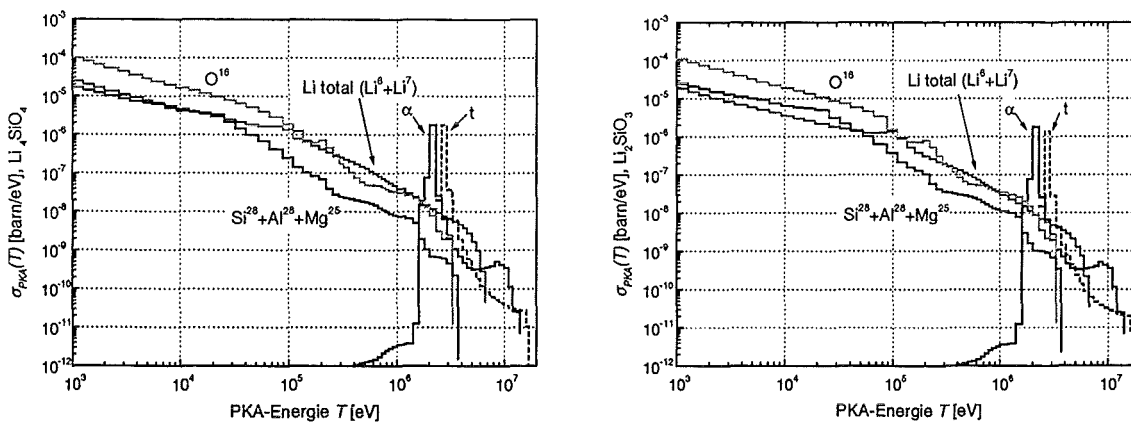


ABB. 6.5: Gemittelttes PKA-Spektrum in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  (links) und  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  (rechts).

Die gemittelten PKA-Spektren in der Keramik-Schüttung (Zone 1) zeigen, bedingt durch die unterschiedliche chemische Zusammensetzung der beiden Hauptphasen,  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  und  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ , leichte Unterschiede in der relativen Häufigkeit der einzelnen Spezies (s. TAB. 6.5).

TAB. 6.5: Zusammensetzung der PKA-Spektren (Zone 1) in den Li-Silikaten [%].

Silikat	$\text{Li}^6$	$\text{Li}^7$	$\text{Li}(\text{tot})$	$\text{O}^{16}$	$\text{Si}^{28}$	$\text{Al}^{28}$	$\text{Mg}^{25}$	$\text{He}^4(\text{Li}^6)$	t	$\text{He}^4(\text{Si}^{28})$
$\text{Li}_4\text{SiO}_4$	4,9	14,7	19,7	46,7	9,1	0,1	0,1	12,1	12,1	0,1
$\text{Li}_2\text{SiO}_3$	3,6	11,2	14,8	52,8	13,7	0,2	0,1	9,1	9,1	0,1

TAB. 6.6: Mittlere Energien (Zone 1) der PKA-Komponenten [keV].

$\text{Li}^6$	$\text{Li}^7$	$\text{Li}(\text{tot})$	$\text{O}^{16}$	$\text{Si}^{28}$	$\text{Al}^{28}$	$\text{Mg}^{25}$	$\text{He}^4(\text{Li}^6)$	t	$\text{He}^4(\text{Si}^{28})$
300	275	280	72,6	50,2	669	1540	2010	2630	7480

Die Verteilung der PKA's ist charakterisiert durch einen großen Anteil niederenergetischer Kerne, deren Hauptbeitrag durch  $\text{O}^{16}$  geliefert wird (zu 60 bis 75 % unterhalb etwa 80 keV). Dies ist, wie der überproportionale Beitrag von  $\text{Si}^{28}$ , bedingt durch den im Vergleich zu den Lithiumisotopen erhöhten Wirkungsquerschnitt für elastische Streuung. Im Energiebereich oberhalb von 1 MeV finden sich noch 27 % aller PKA's in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  bzw. 21 % in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ . Dabei verschwinden aber  $\text{Si}^{28}$  (mit  $\text{Al}^{28}$ ) und  $\text{O}^{16}$  schon sehr bald, so daß im wesentlichen die leichten PKA's, Li-Isotope,  $\text{He}^4$  und t, den Hochenergie-Anteil prägen. Nur  $\text{Mg}^{25}$  liefert noch etwa 1 bis 2 % des totalen PKA-Spektrums im Energiebereich von 2,3 MeV bis etwa 3,7 MeV. Oberhalb davon liegen hauptsächlich Li-PKA's vor, die dann von  $\text{He}^4$  und t abgelöst werden.

Die leichten Sekundärteilchen,  $\text{He}^4$  und t, sind besonders markante PKA's in den Silikaten, denn bei etwa 2 MeV führen sie zu zwei benachbarten, ausgeprägten Maxima in der PKA-Verteilung. Diese rühren von der  $\text{Li}^6(n,t)\alpha$ -Reaktion bei Neutronenenergien bis in den keV-

Bereich her. In diesen Peaks befinden sich immerhin etwa 18 bzw. 24 % (für Meta- bzw. Orthosilikat) aller PKA's. Oberhalb der maximalen PKA-Energie für Li-Atome (7,4 MeV) treten dann vorrangig He<sup>4</sup>-Kerne aus der Si<sup>28</sup>(n,α)Mg<sup>25</sup>-Reaktion hinzu.

Das im äußeren Blanketbereich deutlich weichere Neutronenspektrum führt nur teilweise wie in Beryllium zu einer ebensolchen Veränderung des PKA-Spektrums. Denn einerseits werden die Anteile der inelastisch erzeugten PKA's reduziert, andererseits erhöht sich der Anteil von He<sup>4</sup> und t im Spektrum bedingt durch die exotherme (n,t)-Reaktion in Li<sup>6</sup>. Konkret setzt sich das Spektrum gemäß TAB. 6.7 aus den einzelnen Spezies zusammen. Die mittleren PKA-Energien (s. TAB. 6.8) sind entsprechend herabgesetzt mit Ausnahme der Produkte aus Li<sup>6</sup>(n,t).

TAB. 6.7: Zusammensetzung der PKA-Spektren (Zone 11) in den Li-Silikaten [%].

Silikat	Li <sup>6</sup>	Li <sup>7</sup>	Li(tot)	O <sup>16</sup>	Si <sup>28</sup>	Al <sup>28</sup>	Mg <sup>25</sup>	He <sup>4</sup> (Li <sup>6</sup> )	t	He <sup>4</sup> (Si <sup>28</sup> )
Li <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub>	3,2	10,7	13,9	41,1	7,1	-	-	19,0	19,0	-
Li <sub>2</sub> SiO <sub>3</sub>	2,7	8,2	10,9	48,3	11,1	-	-	14,9	14,9	-

TAB. 6.8: Mittlere Energie (Zone 11) der PKA-Komponenten [keV].

Li <sup>6</sup>	Li <sup>7</sup>	Li(tot)	O <sup>16</sup>	Si <sup>28</sup>	Al <sup>28</sup>	Mg <sup>25</sup>	He <sup>4</sup> (Li <sup>6</sup> )	t	He <sup>4</sup> (Si <sup>28</sup> )
114	104	107	24,3	19,3	532	1230	2000	2610	5870

Das totale Spektrum ist also noch mehr geprägt von den He<sup>4</sup>- und t-Atomen im Energiebereich von 2,0 bis 2,6 MeV, die nun einen Anteil von 30 bis 38 % (in Li<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub> bzw. Li<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub>) ausmachen.

In den mit TeO<sub>2</sub> beaufschlagten Li<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub>-Proben liegt Te in einer Konzentration von etwa 0,15 at% vor (bzw. 0,3 at% in Li<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>). Wegen des vergleichsweise großen Wirkungsquerschnittes erwartet man einen verstärkten Beitrag zum PKA-Spektrum. Tatsächlich beträgt dieser in Li<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub> etwa 0,26 %, in Li<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub> etwa 0,52 % und nimmt relativ schwach mit der Tiefe im Blanket ab. Die mittleren Te-Energien betragen 28 keV in Zone 1 bzw. 6,5 keV in Zone 11.

### 6.3 Schädigungsparameter

Die im vorigen Kapitel berechneten PKA-Spektren in Beryllium und Li<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub> (bzw. Li<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>) erlauben es nun, zusammen mit den MARLOWE-Resultaten für Schädigungsenergie und Defektanzahl die gewünschten Schädigungsparameter zu berechnen.

Dabei kennzeichnen  $\sigma_{dam}(E)$  und  $\sigma_D(E)$  das untersuchte Material hinsichtlich seines Verhaltens bezüglich neutroneninduzierter Verlagerungsschädigung. Die in dieser Arbeit ermittelten Querschnitte sind für unterschiedliche Neutronenspektren geeignet, sofern deren thermische Komponente hinreichend klein ist. Die in diesem Energiebereich, je nach Element bedeutende (n, $\gamma$ )-Reaktion führt nämlich zu relativ hohen Beiträgen zu den Schädigungsquerschnitten, so z.B. für  $Be^9$  für Neutronen unterhalb einigen eV. Andererseits dominiert die (n,t)-Reaktion in  $Li^6$  unterhalb einigen keV wegen ihres  $1/\nu$ -Verlaufes alle anderen Reaktionen in den Li-Silikaten. Deshalb ist hier die (n, $\gamma$ )-Komponente auch bei thermischen Energien bedeutungslos.

Schädigungsenergie- und Verlagerungsquerschnitte werden, den durchgeführten MARLOWE-Rechnungen zufolge, nicht nur für reine Materialien (mit statischem Kristallgitter), sondern auch für erhöhte, blanketrelevante Temperaturen und lokal inhomogene Materialzusammensetzungen bereitgestellt. Die Schädigungsraten für Defekte bzw. Fehlorderungen erhält man dann als entsprechende Reaktionsraten des jeweiligen Neutronenspektrums.

Die Schädigungsquerschnitte  $\sigma_{dam}$  und  $\sigma_D$  sind in Abhängigkeit von der Neutronenenergie gegeben und erlauben deshalb eine Abschätzung, in welchem Maße bestimmte Neutronen zur Verlagerungsschädigung beitragen. Da üblicherweise Bestrahlungen mit einem breiten Spektrum von Neutronenenergien vorgenommen werden, ist erst die Berechnung der zugehörigen *dpa*-Werte vorzunehmen, um z.B. Vergleiche zwischen verschiedenen Bestrahlungsbedingungen zu ermöglichen.

Vergleicht man dagegen die über das jeweilige Neutronenspektrum gemittelten PKA-Spektren, bzw. noch besser mit zusätzlicher Wichtung durch die zugehörigen Schädigungsfunktionen (entweder  $N_d$  oder  $E_{dam}$ ), so läßt sich sehr einfach der Effekt unterschiedlicher Bestrahlungsbedingungen abschätzen. Deshalb berechnet man die  $W(T)$ -Funktion ([130, 131]), hier beispielhaft für die Defektanzahl  $N_d$

$$W(T) = \frac{1}{dpa/s} \int \sigma_D(E, T) \Phi(E) dE \quad (157)$$

$$\text{mit } \sigma_D(E, T) = \int_0^T \sigma_{PKA}(E, T') N_d(T') dT'$$

Eine der obigen Gleichung äquivalente Formulierung verwendet das flußgemittelte Spektrum  $\sigma_{PKA}(T)$ :

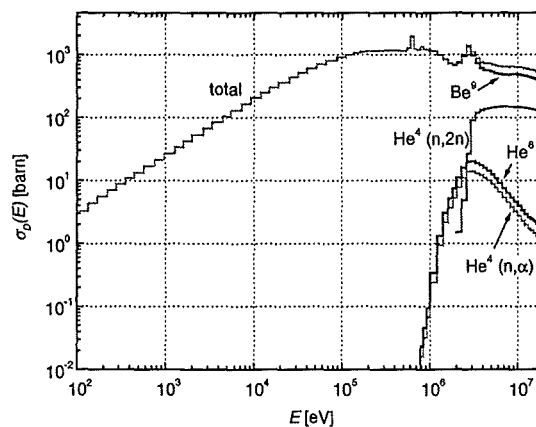
$$W(T) = \frac{\int_0^T \sigma_{PKA}(T') N_d(T') dT'}{\int_0^{T_{\max}} \sigma_{PKA}(T') N_d(T') dT'} \quad (158)$$

Auch in diesem Fall ist der Nenner die *dpa*-Rate und zeigt eine alternative Möglichkeit zu deren Berechnung.

Die  $W(T)$ -Funktion bezeichnet offensichtlich den Anteil an der Gesamtschädigung, der durch PKA's mit Energien bis zu  $T$  aufgebracht wird. Insbesondere ist dann die Energie  $T_{1/2}$  mit  $W(T_{1/2}) = 0,5$  eine charakteristische Energie für die PKA-abhängige Verlagerungsschädigung.

### 6.3.1 Beryllium

Die folgende **ABB. 6.6** zeigt den Verlagerungsquerschnitt in Beryllium mit den Partialquerschnitten der verschiedenen PKA's. Der zugehörige Schädigungsenergiequerschnitt ist dazu proportional mit einem schwach energieabhängigen Faktor, der einer gemittelten effektiven Verlagerungsschwelle entspricht und ca. 42,7 eV beträgt (d.h.  $E_d = 17,1$  eV im NRT-Modell, vgl. S. 6).



**ABB. 6.6:** Verlagerungsquerschnitte in Be: Totaler Querschnitt und Partialbeiträge verschiedener PKA's.

Deutlich erkennt man den überragenden Anteil der elastisch erzeugten PKA's am totalen Verlagerungsquerschnitt. Während das Spektrum der  $\text{Be}^9$ -PKA's bei kleinen Energien einen nahezu konstanten Verlauf aufweist, steigt die Zahl der durch sie erzeugten Defektatome mit steigender PKA-Energie stark an. Dieses Verhalten schlägt sich dann in  $\sigma_D$  nieder. Im Bereich etwa oberhalb 100 keV flachen die Schädigungsfunktionen merklich ab (vgl. **ABB. 5.22**, S. 133), so daß der resultierende Verlauf von  $\sigma_D$  von der Energieabhängigkeit des elastischen Streuquerschnitts herrührt.

Ab etwa 2 MeV tragen auch die Schwellreaktionen mit ihren leichten PKA's ( $\text{He}^4$ ,  $\text{He}^6$ ) zur Schädigung bei. Oberhalb 4 MeV sind es immerhin über 10 % am totalen Querschnitt. Ihr Beitrag spiegelt in seiner Energieabhängigkeit praktisch identisch den nuklearen Wirkungsquerschnitt wieder, da die Schädigungsfunktionen der dort mit hohen Energien auftretenden PKA's relativ schwach energieabhängig sind.

Ganz allgemein kann man konstatieren, daß für Neutronen oberhalb etwa 100 keV die zu erwartende Verlagerungsschädigung besonders effektiv ist und eine Energieabhängigkeit wie der totale Neutronen-Wirkungsquerschnitt zeigt. Schädigungsfunktionen sind in dieser Hinsicht von untergeordneter Bedeutung.

Anhand der Neutronenflußdichte im DEMO-Feststoffblanket (Torusmittelebene, outboard, Zone 1) können fusionstypische Schädigungsraten und ihre Charakterisierungen aufgezeigt werden. Die integrale Flußdichte beträgt in diesem Fall  $1,27 \cdot 10^{15} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ . Sie erzeugt in reinem Beryllium (statisches Kristallgitter) eine *dpa*-Rate von  $7,86 \cdot 10^{-7} \text{ s}^{-1}$  (entsprechend 24,8 *dpa/a*). Direkte 14 MeV-Neutronen liefern in dieser radialen Tiefe 8,2 % der Verlagerungsrate, schnelle Neutronen ( $E > 100 \text{ keV}$ ) tragen insgesamt mit 82,5 % bei. Damit wird bestätigt, daß für diese Energien die Verlagerungsschädigung vergleichsweise effektiv ist, denn der Anteil dieser Neutronen am Spektrum beträgt nur etwa 53 %.

Bezüglich den beteiligten PKA's verteilt sich die *dpa*-Rate zu 95,7 % auf  $\text{Be}^9$ , 4,1 % auf  $\text{He}^4$  und 0,2 % auf  $\text{He}^6$ . Dies entspricht fast exakt den jeweiligen Anteilen am PKA-Spektrum, wobei sich offensichtlich zwei konkurrierende Effekte gegenseitig kompensieren. Zum einen erzeugen die leichten PKA's bei gleicher Energie weniger Defekte als  $\text{Be}^9$ -PKA's, zum anderen weist ihre Verteilung aber weitaus höhere Energien auf.

Dieser Sachverhalt wird deutlich an den  $W(T)$ -Funktionen, die in ABB. 6.7 aufgetragen sind. Während der unelastische Anteil (aus  $(n,2n)$  und  $(n,\alpha)$ ) erst bei sehr hohen PKA-Energien einsetzt, wird die Gesamtschädigung vom elastischen Anteil dominiert, der schon bei kleinen PKA-Energien signifikant zur Schädigung beiträgt. Bei etwa 70 keV wird  $W(T) = 0,5$  erreicht, ein klarer Hinweis auf die durch Sättigungseffekte bei hohen PKA-Energien stark reduzierte *dpa*-Effektivität leichter Kerne. Diese PKA's - und dazu zählen auch  $\text{Be}^9$  - weisen bei hoher Energie  $T$  eine immer stärker werdende Diskrepanz zu  $E_{dam}$  auf. Insofern nimmt die Schädigung anders als z.B. in Strukturmaterialien, bei entsprechend hohen Energien praktisch nicht mehr zu. Obwohl also der Anteil hochenergetischer PKA's in Beryllium beträchtlich ist (15 % mit  $T > 100 \text{ keV}$ , 2,6 % mit  $T > 1 \text{ MeV}$ ), ist deren Beitrag zur *dpa*-Rate zwar sehr hoch, aber nicht beherrschend (ca. 40 % für  $T > 100 \text{ keV}$ , 5 % für  $T > 1 \text{ MeV}$ ).

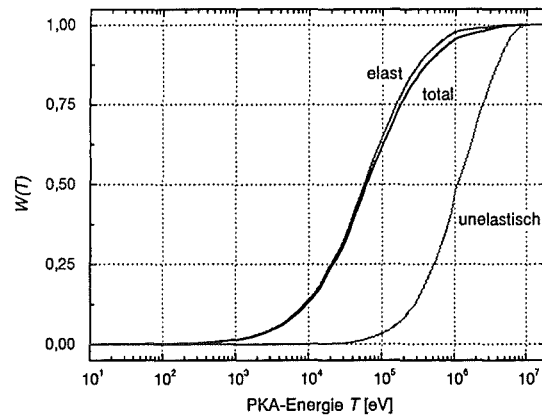


ABB. 6.7:  $W(T)$ -Funktion in Be (Zone 1): Total und Beiträge aus elastischer Streuung bzw.  $(n,2n)$  und  $(n,\alpha)$  (unelastisch).

Die bisher vorgestellten  $dpa$ -Resultate sind zwar absolut gesehen nur für die extreme Belastung im innersten, plasmanahen Blanketbereich gültig, die qualitativen Aussagen lassen sich aber auch auf tiefere Blanketschichten übertragen. Selbst in Zone 11 ( $\Phi_{tot} = 1,67 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ) ändert sich die Zusammensetzung der  $dpa$ -Rate nach PKA's nur analog dem vorliegenden PKA-Spektrum. Demnach liefern jetzt  $\text{Be}^9$ -PKA's 98,5 % und  $\text{He}^4$ -PKA's 1,4 % (bei Anteilen im Spektrum von 99,2 % bzw. 0,8 %). Aufgrund des weicheren Spektrums wird nunmehr nur noch ca. 71 % der  $dpa$ -Rate von Neutronen oberhalb 100 keV aufgebracht. Auch die  $W(T)$ -Funktion ist merklich zu kleineren PKA-Energien verschoben, die 50 %-Marke wird nun schon bei ca. 45 keV erreicht.

Auffallendster Unterschied ist natürlich die mit wachsender radialer Tiefe deutlich sinkenden  $dpa$ -Werte (s. TAB. 6.9). Normiert man diese auf einen Fluß von  $10^{15} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ , so zeigt sich, daß neben der verringerten integralen Flußdichte vor allem auch das weichere PKA-Spektrum zur Abschwächung beiträgt. Man beachte in diesem Zusammenhang die Diskrepanz zwischen den Zonen 1 und 2: während die totale Flußdichte um gerade 2,5 % sinkt, beträgt der Verlust in der  $dpa$ -Rate schon 7,5 %.

TAB. 6.9:  $dpa$ -Raten in Be: Normierte Werte beziehen sich auf  $\Phi = 10^{15} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ; Differenz zwischen 900 K und 0 K.

Zone	$\Phi_{tot}$ [ $10^{15} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ]	dpa [ $10^{-7} \text{ s}^{-1}$ ] bei 0 K		dpa [ $10^{-7} \text{ s}^{-1}$ ] bei 900 K		Differenz [%]
		absolut	normiert	absolut	normiert	
1	1,27	7,86	6,19	6,78	5,34	-13,7
2	1,24	7,28	5,87	6,29	5,07	-13,6
3	1,15	6,41	5,57	5,54	4,82	-13,6
4	0,981	5,20	5,30	4,49	4,58	-13,7
5	0,788	3,96	5,03	3,42	4,34	-13,6
6	0,612	2,94	4,80	2,54	4,15	-13,6

Zone	$\Phi_{\text{tot}}$ [ $10^{15} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ]	dpa [ $10^{-7} \text{ s}^{-1}$ ] bei 0 K		dpa [ $10^{-7} \text{ s}^{-1}$ ] bei 900 K		Differenz [%]
		absolut	normiert	absolut	normiert	
7	0,469	2,17	4,63	1,87	3,99	-13,8
8	0,352	1,55	4,40	1,34	3,81	-13,5
9	0,266	1,14	4,29	0,985	3,70	-13,5
10	0,206	0,862	4,18	0,747	3,63	-13,3
11	0,167	0,709	4,25	0,614	3,68	-13,4

In der Be-Schüttung des Blankets können Temperaturen bis 900 K erreicht werden. Wie aus den MARLOWE-Simulationen bereits bekannt darf man dabei eine merkliche Defektreduzierung erwarten. Tatsächlich zeigt  $\sigma_D$  eine über die Neutronenenergie uneinheitliche Absenkung gegenüber dem Querschnitt bei 0 K (vgl. ABB. 6.8). Besonders kräftige Einbußen erkennt man oberhalb von 0,1 MeV (bis zu -17 % bei ca. 0,5 MeV). In diesem Energiebereich werden vorrangig  $\text{Be}^9$ -PKA's erzeugt, für deren Projektilenergie die Schädigungseffizienz besonders deutlich sinkt (nämlich  $T \approx 10 \text{ keV} \dots 100 \text{ keV}$ , vgl. S. 142). Für noch höhere Neutronenenergien werden dann immer mehr hochenergetische PKA's erzeugt, deren Defektausbeute wieder ansteigt. Die resultierenden *dpa*-Raten in den unterschiedlichen Blankettiefen sind TAB. 6.9 zu entnehmen.

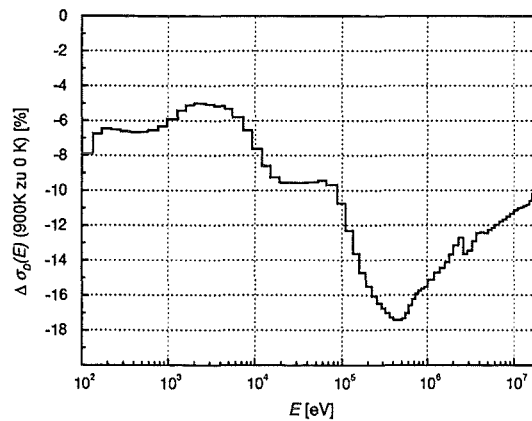
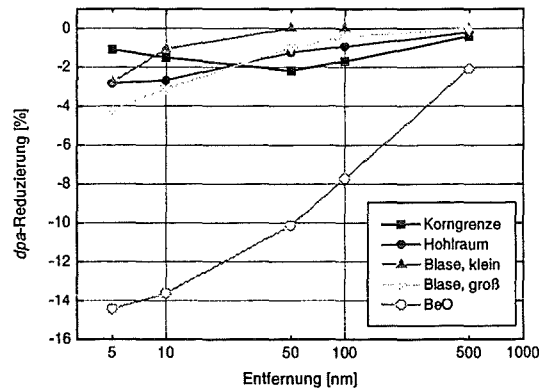


ABB. 6.8: Differenz der totalen Verlagerungsquerschnitte in Be bei 900 K und 0 K.

Offensichtlich wird über das Neutronenspektrum gemittelt eine Reduzierung von ca. 13,5 % erreicht. Wegen der verstärkten Defokussierung von Kaskadenatomen im thermisch gestörten Kristallgitter ist die Defektausbeute für höchste PKA-Energien jedoch verbessert, so daß z.B. der Anteil der leichten He-PKA's von 4,3 % in Zone 1 auf 4,6 % in Zone 11 ansteigt.

Schädigungsraten in der unmittelbaren Nähe von lokalen Inhomogenitäten sind aufgrund der Mittelung über das PKA-Spektrum und deren isotrope Ausbreitung gegenüber den in den MARLOWE-Simulationen gezeigten Maximaleffekten weniger stark beeinflusst. Die Reduzie-

zung bezüglich den Werten im homogenen Material betragen nur maximal 4 % und im Mittel 2 % (bis zu einem Abstand von etwa 100 nm).



**ABB. 6.9:** Reduzierung der *dpa*-Rate in der Nähe lokaler Inhomogenitäten (Be): Für Start der PKA's in Abstand von Korngrenzen, Hohlräumen, Helium-gefüllten Blasen (klein: intragranulare Blasen, groß: Kornoberflächenblasen) und BeO-Einschlüssen.

Die *dpa*-Reduktion ist, bis auf Korngrenzenübergänge, um so ausgeprägter, je dichter die Kaskaden an der Gitterstörung initiiert werden. Lediglich an Korngrenzen wächst der Effekt mit steigendem Abstand und erreicht bei einigen hundert Å ein Maximum (-2 %). Wird das PKA-Spektrum in größerer Blankettiefe weicher, so kann man aufgrund der expliziten Energieabhängigkeit der Defektausbeute an diesen Übergängen erwarten, daß die Defektreduzierung kleiner ausfällt. Dies ist zwar relativ zu den Werten aus Zone 1 zu beobachten, doch ist die Modifizierung bezüglich der jeweils vorliegenden *dpa*-Rate im homogenen Material praktisch zu vernachlässigen.

Im Gegensatz zu den geringen Effekten an Korngrenzen, Hohlräumen und Gasblasen zeigen die *dpa*-Resultate beim Übergang an BeO-Einschlüssen signifikante Änderungen. Der *dpa*-Referenzwert (Zone 1) in BeO beträgt dabei  $5,49 \cdot 10^{-7} \text{ s}^{-1}$ , d.h. 30 % weniger als in Be. Dies führt bezüglich dem Referenzwert in Be zu einer durchschnittlichen Reduzierung von ca. 10 % in einer Schichtdicke von 100 nm. Immerhin noch etwa 6 % sind es bis zu 500 nm.

Bei erhöhten Temperaturen schwächen sich die durch die Kristallsymmetrie bedingten Eigenschaften ab. Dies bedeutet, daß die Modifikationen der Kaskadendefektproduktion an Korn-, Hohlraum- und Gasblasenübergängen praktisch verschwinden, wobei nur die zusätzliche Abbremsung in der Gasphase erhalten bleibt. An Phasenübergängen werden lediglich die Oszillationen der Defektausbeute eliminiert, während ansonsten der stetige Übergang zwischen den unterschiedlichen *dpa*-Raten in den beiden Phasen erhalten bleibt.



### 6.3.2 Lithiumorthosilikat

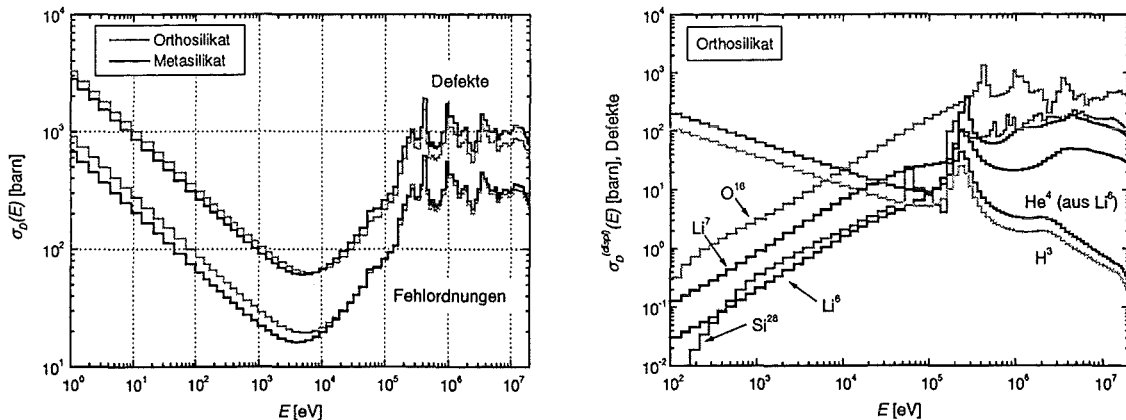
In den polyatomaren Gittern der Silikate müssen neben Zwischengitteratomen zusätzlich auch Fehlbesetzungen auf regulären Gitterplätzen identifiziert werden. Dabei sind die partiell besetzten Gitterlagen der Li-Atome im Orthosilikat von entscheidender Bedeutung. Wegen der abstandsabhängigen Rekombinationswahrscheinlichkeit kann ein großer Anteil von Zwischengitteratomen beliebiger Spezies dort formal rekombinieren. Während also deshalb innerhalb von Kaskaden erzeugte Gitterfehlstellen unbesetzt bleiben, verringert sich die Zahl freier Zwischengitteratome.

Nun ist dieses Schema für Li-Atome durchaus angemessen. Li-Atome, die im Verlauf der Kaskade in der Nähe eines eigenen Gitterplatzes landen, können, statt mit einer Leerstelle im O- oder Si-Subgitter, dort rekombinieren, falls dieser Gitterplatz zufällig unbesetzt sein sollte. Die Wahrscheinlichkeit für einen solchen forcierten Annihilationsvorgang wird abstandsabhängig bestimmt, so daß nur in unmittelbarer Nähe zum Defektatom eine mit der partiellen Belegung des Gitterplatzes konforme Leerstelle auftauchen kann. Ansonsten sinkt die Rekombinationswahrscheinlichkeit exponentiell mit dem Abstand.

Für andere Atome scheint dagegen eine Identifizierung solcher Rekombination weniger sinnvoll zu sein. Vielmehr können nur reguläre Fehlstellen im Li-Subgitter Rekombinationsstellen für O- und Si-Atome sein. Eine formale Zuordnung solcher Atome zu einer Li-Lage führt also nicht in jedem Fall zu einer herkömmlichen Fehlbesetzung (Fehlorderungsdefekt), sondern muß als Identifizierung eines Defektatoms auf einem Zwischengitterplatz angesehen werden.

Zusammenfassend führen also eigentliche Li-Annihilationen auf partiell besetzten Li-Gitterlagen zu keiner Schädigungswirkung in den Silikaten. Sie werden deshalb zurecht aus der Defektidentifizierung eliminiert. Dagegen müssen O- und Si-Atome, die formal mit solchen Gitterplätzen rekombinieren, zur Defektausbeute addiert werden. Sie bilden jedoch nicht, wie auf regulären Leerstellen, Fehlorderungsdefekte, sondern bleiben quasi als Zwischengitteratome im Gitter. Ihre Zahl wird infolgedessen zur Anzahl der Defektatome (und damit zur  $dpa$ -Rate) addiert. Ein analoger Betrag muß dann von der Zahl der Fehlorderungen (d.i. die  $ddf$ -Rate) subtrahiert werden. Die Summe beider Defekttypen bzw. ihrer Schädigungsraten bleibt konstant und stellt ein Strahlenschädigungsmaß dar, daß auch kaskadeninduzierte Fehlorderungen in polyatomaren Materialien berücksichtigt.

Für die beiden Schädigungstypen Gitterdefekte und Gitterfehlorderungen („displacement“ und „disorder“) sind in **ABB. 6.10** (links) die entsprechenden Verlagerungsquerschnitte  $\sigma_D^{(displ)}$  und  $\sigma_D^{(dis)}$  in  $Li_4SiO_4$  und  $Li_2SiO_3$  aufgetragen.



**ABB. 6.10:** Verlagerungsquerschnitte in Li-Silikaten: Totale Querschnitte für Defekte bzw. Fehlorderungen (links). Partialquerschnitte einzelner PKA's zu  $\sigma_D^{(displ)}$  in  $Li_4SiO_4$  (rechts).

Charakteristisches Merkmal dieser Kurven ist der steile Anstieg zu kleinen Energien und die in diesem Bereich überaus hohen Querschnitte. Dabei handelt es sich um den Beitrag aus  $Li^6(n,t)\alpha$ , die bis in den keV-Bereich hinein die Verlagerungsschädigung dominiert. Wegen des stark sinkenden Anteils dieser PKA's mit höheren Energien durchlaufen  $\sigma_D^{(displ)}$  und  $\sigma_D^{(dis)}$  ein Minimum um 4 keV bis 5 keV und steigen dann, bedingt im wesentlichen durch  $O^{16}$ -PKA's ebenso deutlich wieder an. Ab etwa 200 keV flachen dann die Querschnitte ab und zeigen die Resonanzstruktur der Neutronenwirkungsquerschnitte in den einzelnen Elementen. Die Partialquerschnitte von  $Al^{28}$  und  $Mg^{25}$ , die in **ABB. 6.10** (rechts) nicht eingezeichnet sind, weisen erst ab etwa 7 MeV vergleichbare Werte wie der von  $Li^6$  auf.

Wegen der unterschiedlichen Beiträge der einzelnen PKA's zum Gesamtspektrum in den beiden Silikaten und infolgedessen auch zu den totalen Verlagerungsquerschnitten, weichen diese leicht voneinander ab. Die Differenzen (s. **ABB. 6.11**) spiegeln dabei den Übergang von  $He^4$  und t aus  $Li^6$  (größerer Anteil in  $Li_4SiO_4$ ) zu vorrangig  $O^{16}$  (größerer Anteil in  $Li_2SiO_3$ ) wieder. Die Resonanzstruktur bei hohen Energien rührt von den einzelnen Resonanzen der Partialquerschnitte ( $Si^{28}$ ,  $Li^6$  und  $Li^7$ ) her.

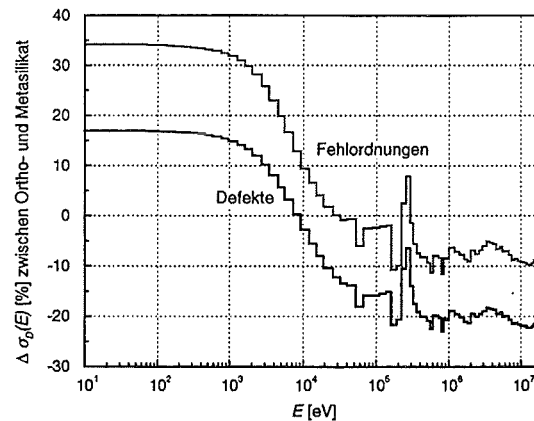


ABB. 6.11: Differenz der totalen Verlagerungsquerschnitte in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  bzw.  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ .

Im stärksten Neutronenfluß direkt hinter der Ersten Wand des Feststoffblankets ( $\Phi_{\text{tot}} = 1,19 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ) werden die in TAB. 6.10 aufgeführten Schädigungsraten erzielt. Hierbei tragen im Orthosilikat die oben erläuterten Zuordnungen von Si- und vor allem O-Atomen im Li-Subgitter einen Beitrag von etwa 36 % zur totalen  $dpa$ -Rate (absolut:  $2,28 \cdot 10^{-7} \text{ s}^{-1}$ ) bei. Das Metasilikat weist aufgrund seiner definierten Kristallstruktur eine um mehr als 19 % erhöhte  $dpa$ -Rate auf, jedoch einen etwas verringerten  $ddf$ -Faktor von 31,1 % (gegenüber 35,6 % im Orthosilikat).

TAB. 6.10: Schädigungsraten in Li-Silikaten: im DEMO-Feststoffblanket (outboard, Torusmittelebene).

Silikat	$dpa [10^{-7} \text{ s}^{-1}]$	$dpa [\text{a}^{-1}]$	$ddf [10^{-7} \text{ s}^{-1}]$	$ddf [\% \text{ von } dpa]$
$\text{Li}_4\text{SiO}_4$	6,34	20,0	2,25	35,6
$\text{Li}_2\text{SiO}_3$	7,55	23,8	2,35	31,1

Aufgrund der charakteristischen Energieabhängigkeit der Verlagerungsquerschnitte zeigt das  $dpa$ -Profil (ebenso  $ddf$ ) einen Verlauf (am Beispiel der  $dpa$ -Rate in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ , ABB. 6.12), der zum einen von den  $\text{He}^4$ - und t-PKA's im niederenergetischen Bereich und von starken Beiträgen im hochenergetischen Bereich (vorrangig durch  $\text{O}^{16}$ -PKA's) bestimmt ist. Die beiden Silikate zeigen dabei bis auf leichte Differenzen praktisch dasselbe Verhalten. Unterhalb von 10 keV werden zunächst fast 13 % der Schädigung eingebracht, oberhalb von 100 keV steigt die kumulierte  $dpa$ -Rate dann extrem an. Im Fusionsreaktor beträgt der Anteil etwa 16 %, da hier, im Gegensatz zu Beryllium,  $\sigma_D^{(\text{displ})}$  und  $\sigma_D^{(\text{dis})}$  unverändert hoch bleiben.

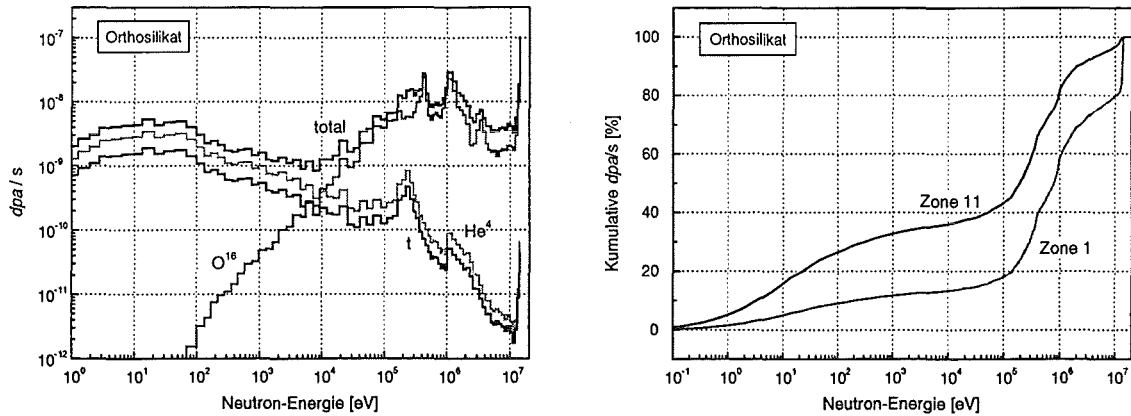


ABB. 6.12:  $dpa$ -Rate in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ : Beitrag aus Primärgruppen und wesentlichen PKA's (links). Kumulative  $dpa$ -Rate in Zone 1 und 11 (rechts).

Bezüglich der Beiträge einzelner PKA's stellt man fest, daß  $\text{O}^{16}$  das für die Schädigung in den Silikaten dominierende PKA darstellt, was bereits aus dem Anteil am totalen PKA-Spektrum abzulesen war. Diese PKA-Anteile werden unter Berücksichtigung der effizienteren Schädigung durch schwerere PKA's qualitativ für alle vorliegenden PKA's bestätigt. Demnach liefert  $\text{He}^4$  aus der Tritiumbrutreaktion immerhin um 9 % in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  und um 6 % in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  der totalen Schädigungsraten, für Tritium sind es 4 bzw. 3 %. Hierbei ist auffällig, daß diese leichten PKA's für die Erzeugung von Fehlordnungsdefekten weniger geeignet sind, denn in der  $ddf$ -Rate ist der jeweilige Beitrag merklich kleiner. Umgekehrt verhält es sich mit den schwereren PKA's, die effektiver Fehlordnungsdefekte erzeugen können.

TAB. 6.11: Partialbeiträge einzelner PKA's zur totalen  $dpa$ -Rate in Li-Silikaten [%]: DEMO-Feststoffblanket, Outboard, Torusmittelebene.

Silikat	$\text{Li}^6$	$\text{Li}^7$	Li(tot)	$\text{O}^{16}$	$\text{Si}^{28}$	$\text{Al}^{28}$	$\text{Mg}^{25}$	$\text{He}^4(\text{Li}^6)$	t	$\text{He}^4(\text{Si}^{28})$
$\text{Li}_4\text{SiO}_4$	4,0	11,8	15,8	53,7	13,4	1,2	1,0	9,5	5,2	0,1
$\text{Li}_2\text{SiO}_3$	2,8	8,3	11,1	56,2	18,8	1,7	1,4	6,6	4,0	0,1

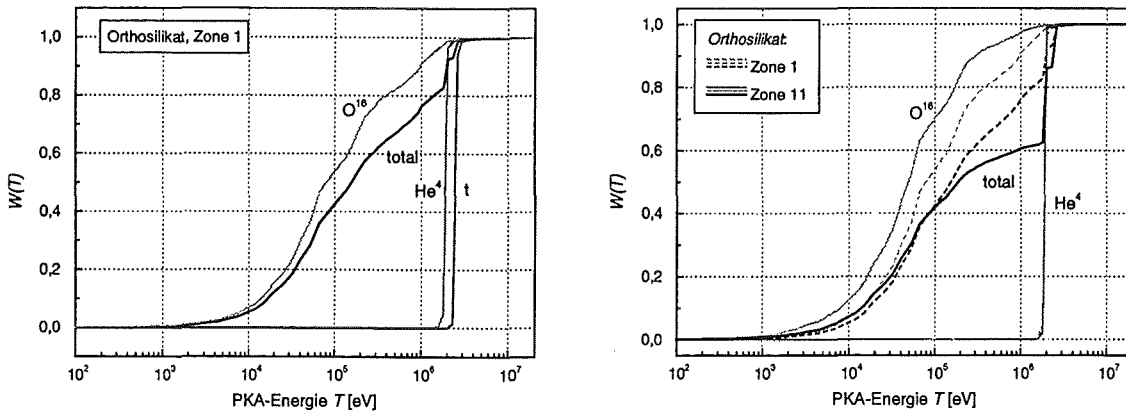
TAB. 6.12: Partialbeiträge einzelner PKA's zur totalen  $ddf$ -Rate in Li-Silikaten [%]: DEMO-Feststoffblanket, Outboard, Torusmittelebene.

Silikat	$\text{Li}^6$	$\text{Li}^7$	Li(tot)	$\text{O}^{16}$	$\text{Si}^{28}$	$\text{Al}^{28}$	$\text{Mg}^{25}$	$\text{He}^4(\text{Li}^6)$	t	$\text{He}^4(\text{Si}^{28})$
$\text{Li}_4\text{SiO}_4$	4,0	11,9	15,9	56,3	14,0	1,3	1,1	8,1	3,3	<0,1
$\text{Li}_2\text{SiO}_3$	2,7	8,1	10,8	58,0	19,7	1,7	1,5	5,8	2,3	<0,1

Anders als in Beryllium prägen also die unelastisch erzeugten PKA's entscheidend das Schädigungsverhalten in den Silikaten. Beispielhaft für beide Silikate und beide Schädigungsarten stehen die folgenden Zahlenwerte für die  $dpa$ -Rate in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ . Demnach tragen auch die Kerne aus inelastischer Streuung insgesamt mit etwa  $5,4 \cdot 10^{-8} dpa/s$  bei, was einem Anteil von et-

wa 8,5 % an der totalen  $dpa$ -Rate entspricht. In der Summe liegt also der Beitrag aller nicht elastisch erzeugten PKA's bei mehr als 25 %.

Dieser hohe Anteil wirkt dann entscheidend auf die  $W(T)$ -Funktion in den Silikaten ein, indem der Beitrag großer Rückstoßenergien verhältnismäßig stark ist. Die Folge ist ein hoher  $T_{1/2}$ -Wert um etwa 190 keV. Inwieweit die beiden Hauptkomponenten (durch  $\text{He}^4$  und  $t$  bzw.  $\text{O}^{16}$ ) den Verlauf von  $W(T)$  bestimmen, läßt sich aus **ABB. 6.13** ablesen. Offenbar steuern bis einige  $10^4$  eV elastische  $\text{O}^{16}$ -PKA's wesentlich zum Verlauf bei. Oberhalb davon treten dann alle übrigen PKA's vermehrt in Erscheinung, erst ab 2 MeV leisten zunächst  $\text{He}^4$ -Atome, dann Tritium, noch einmal einen markanten Beitrag zur Kurve, die dort einen Zuwachs von ca. 10 % (durch  $\text{He}^4$ ) und 5 % (durch  $t$ ) aufweist.



**ABB. 6.13:**  $W(T)$ -Funktionen in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ : Total und Beiträge wichtiger PKA's in Zone 1 (links) und Zone 11 (rechts).

Te-Verunreinigungen in den Silikaten führen zu vernachlässigbar kleinen Modifikationen der Schädigungsraten (weniger als  $\pm 1$  %). Dieses Ergebnis war für  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  bereits an den entsprechenden Kaskadensimulationen abzulesen. Im Metasilikat erwartet man zunächst, bedingt durch nun partiell unbesetzte Li-Lagen, eine etwas verringerte  $dpa$ -Rate und analog vergrößerte  $ddf$ -Rate. Tatsächlich erhält man eine Differenz zwischen 2 und 4 %, sofern man uneigentliche Rekombinationen auf partiell unbesetzte Li-Lagen zuläßt. Schließt man diese aber, wie oben erläutert, aus, so gewinnt man gerade diese Differenz wieder zurück. Bei also praktisch unveränderten Schädigungsraten tragen Te-PKA's in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  mit ca. 0,4 % bei, in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  mit ca. 0,9 %, was im einen Fall dem Anteil am PKA-Spektrum entspricht, im anderen Fall eine zusätzliche Anhebung bedeutet.

Schädigungsraten ( $dpa$  und  $ddf$ ) für die beiden Silikate in verschiedenen Blankettiefen sind in **TAB. 6.13** aufgeführt. Offenbar führt das insgesamt weichere PKA-Spektrum (mit jedoch höheren Anteilen aus  $\text{Li}^{(n,t)\alpha}$ ) zu einer zusätzlichen, gegenüber der Flußerniedrigung noch verstärkten Reduzierung der Schädigungsraten (vgl. die auf  $10^{15} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  normierten Werte). Da

dies wegen des dort geringeren Einflusses der Tritiumbrutreaktion in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  noch ausgeprägter ist, verringert sich die Differenz der Schädigungsraten zwischen den beiden Silikaten, so daß z.B. im hinteren Blanketbereich die *dpa*-Rate in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  nur noch um etwa 9 % gegenüber der in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  erhöht ist.

Den dominierenden Einfluß der Brutreaktion auf die Verlagerungsschädigung in größerer Blankettiefe (analog dem Anteil am PKA-Spektrum) dokumentiert z.B. das kumulative *dpa*-Profil (s. **ABB. 6.12**, rechts). Für Neutronenenergien bis etwa 10 keV, die vorrangig über  $\text{Li}^6(n,t)\alpha$  leichte PKA's mit hohen Energien erzeugen, steigt der Anteil an der totalen *dpa*-Rate bis auf etwa 36 % (Zone 11) in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ . Ähnlich hohe Werte erhält man auch in der *ddf*-Rate (ca. 30 %) und im Metasilikat (28 % bzw. 23 %). Auch die  $W(T)$ -Funktion in dieser Blankettiefe (vgl. **ABB. 6.13**, rechts) wird im hochenergetischen Abschnitt durch die  $\text{He}^4$ - und die  $t$ -Kurve bestimmt. Während die anderen Komponenten des PKA-Spektrums weicher werden und damit die zugehörige  $W(T)$ -Funktion zu kleineren Energien verschoben wird (s.  $\text{O}^{16}$ ), bleiben die Kurven der leichten Sekundärteilchen nahezu unverändert, dehnen aber ihren Einfluß auf die totale  $W(T)$ -Funktion aus. Diese Effekte kompensieren sich, so daß  $T_{1/2}$  sogar leicht ansteigt (auf etwa 220 keV).

**TAB. 6.13:** *dpa*-Raten in Li-Silikaten (0 K): Normierte Werte beziehen sich auf  $\Phi_{\text{tot}} = 10^{15} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ . Differenz: zwischen  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  und  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .

Zone	$\Phi_{\text{tot}}$ [ $10^{15} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ]	$\text{Li}_4\text{SiO}_4$ <i>dpa</i> [ $10^{-7} \text{ s}^{-1}$ ]		$\text{Li}_2\text{SiO}_3$ <i>dpa</i> [ $10^{-7} \text{ s}^{-1}$ ]		Differenz [%]
		absolut	normiert	absolut	normiert	
1	1,19	6,34	5,33	7,55	6,35	19,2
2	1,15	5,87	5,10	6,94	6,04	18,3
3	1,06	5,18	4,89	6,07	5,73	17,2
4	0,897	4,23	4,72	4,90	5,47	15,8
5	0,72	3,29	4,57	3,77	5,24	14,6
6	0,56	2,51	4,48	2,85	5,09	13,4
7	0,423	1,86	4,39	2,09	4,93	12,5
8	0,318	1,38	4,34	1,54	4,84	11,4
9	0,239	1,02	4,28	1,13	4,73	10,6
10	0,184	0,773	4,20	0,850	4,62	9,96
11	0,149	0,614	4,12	0,670	4,50	9,12

**TAB. 6.14:** *ddf*-Raten in Li-Silikaten (0 K): Prozentangabe der *ddf*-Rate bezieht sich auf die entsprechende *dpa*-Rate (s. TAB. 6.13).

Zone	$\Phi_{\text{tot}}$ [ $10^{15} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ]	$\text{Li}_4\text{SiO}_4$ <i>ddf</i>		$\text{Li}_2\text{SiO}_3$ <i>ddf</i>		Differenz [%]
		[ $10^{-7} \text{ s}^{-1}$ ]	%	[ $10^{-7} \text{ s}^{-1}$ ]	%	
1	1,19	2,25	35,5	2,35	31,1	4,3
2	1,15	2,08	35,3	2,15	31,0	3,7
3	1,06	1,82	35,1	1,87	30,9	2,9
4	0,897	1,47	34,9	1,50	30,7	2,0
5	0,72	1,14	34,6	1,15	30,5	1,1
6	0,56	0,861	34,3	0,863	30,3	0,2
7	0,423	0,633	34,0	0,630	30,1	-0,5
8	0,318	0,467	33,9	0,461	29,9	-1,3
9	0,239	0,344	33,7	0,337	29,9	-2,0
10	0,184	0,259	33,5	0,252	29,6	-2,7
11	0,149	0,205	33,4	0,200	29,9	-2,4

In den Silikaten bei blankettyptischen Temperaturen (1180 K) erwartet man, ausgehend von den MARLOWE-Ergebnissen, durchaus variable Änderungen in den Schädigungsraten. Während nämlich im Orthosilikat keine wesentliche zusätzliche Asymmetrie in das Gitter eingebracht wird und wegen der günstigeren Simultankonstellationen mehrerer Targetatome für weite PKA-Energiebereiche sogar erhöhte Defektzahlen möglich sind, ähnelt das Temperaturverhalten im Metasilikat dem in Beryllium. Auch hier führen defokussierende Gitterstörungen zu einer globalen leichten Defektreduzierung.

Gerade die charakteristische Abhängigkeit der Defektausbeuten vom PKA-Typ in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  ist Ursache für eine massiv von der Neutronenenergie abhängige Differenz der Schädigungsquerschnitte (s. ABB. 6.14, links). Im Niederenergiebereich dominieren die hochenergetischen leichten PKA's aus der Tritiumbrutreaktion den Verlauf von  $\sigma_D$ , so daß dort die Defekterhöhung für diese Projektile voll durchschlägt. Zu immer höheren Energien bewirken die nun beherrschenden schwereren PKA's eine schwächere Zunahme (sogar Abnahme um 70 keV), die bei höheren Neutronenenergien (und demzufolge auch höheren PKA-Energien) wieder ansteigt. Das lokale Maximum (bei etwa 250 keV) rührt von dem höheren Anteil an Li-PKA's (vgl. die Partialquerschnitte von  $\sigma_D$  in ABB. 6.10 (rechts)) her, die relativ zu den schwereren PKA's höhere Zuwächse bei 1180 K bewirken.

Im Metasilikat sind die Abweichungen weniger stark ausgeprägt (ABB. 6.14, rechts), qualitativ hat man aber ein ähnliches Bild wie im Orthosilikat. Allgemein ist die Reduzierung von  $\sigma_D^{(dis)}$  größer als die von  $\sigma_D^{(displ)}$ . He<sup>4</sup>- und t-PKA's bei hohen Energien produzieren im thermischen Kristall mehr Defekte, aber weniger Fehlordnungen, was sich in den Differenzkurven unterhalb einigen keV bestätigt. Die Defektreduzierung ist im Vergleich zu  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  schwach

PKA- und energieabhängig, so daß oberhalb etwa 10 keV die Differenzen nur noch schwach variieren (mit Überlagerungen der Partialbeiträge einzelner PKA's wie in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ ).

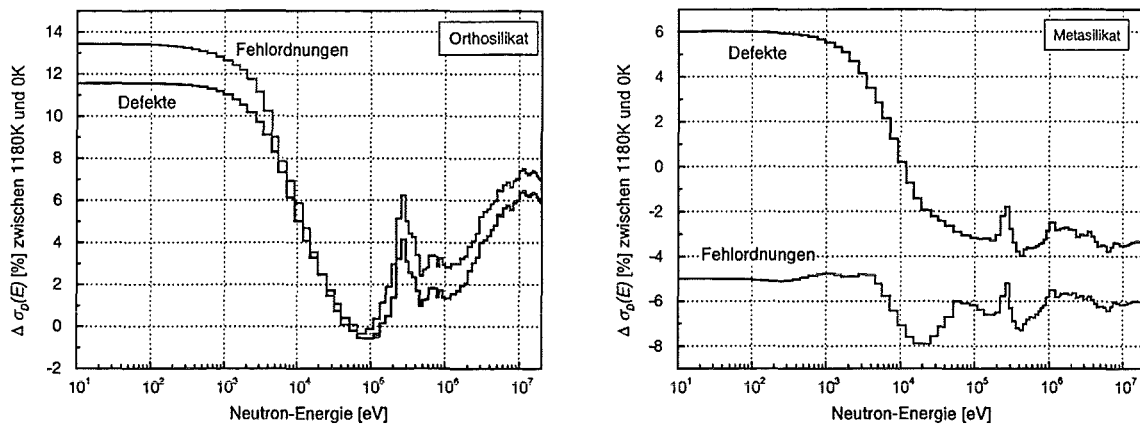


ABB. 6.14: Differenz der totalen Verlagerungsquerschnitte für Defekte bzw. Fehlordnungen: in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  (links) und  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  (rechts).

Die Schädigungsraten in unterschiedlichen Blanketzone für beide Silikate bei 1180 K sind in TAB. 6.15f. zusammengefaßt. Sie zeigen eine leichte Zunahme von etwa 3 % bzw. 4 % in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  und eine Abnahme von ca. 2 % bzw. 6 % in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  in Zone 1 (für *dpa* bzw. *ddf*). In größerer radialer Tiefe weichen diese Differenzen zu etwas positiveren Werten ab, mit Ausnahme der *ddf*-Rate in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ , wo im Durchschnitt kein Trend auszumachen ist. Auch hier zeigt sich ganz allgemein der spürbare Einfluß des jeweiligen PKA-Spektrums in den unterschiedlichen Blanketbereichen, so daß die Energieabhängigkeit der obigen Kurven (in ABB. 6.14) zum Tragen kommt.

TAB. 6.15: Schädigungsraten in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  bei 1180 K:  $\Delta$  ist Differenz von Werten bei 1180 K zu denen bei 0 K.

Zone	$\Phi_{\text{tot}}$ [ $10^{15} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ]	$\text{Li}_4\text{SiO}_4$ <i>dpa</i>		<i>ddf</i>	
		[ $10^{-7} \text{ s}^{-1}$ ]	$\Delta$ [%]	[ $10^{-7} \text{ s}^{-1}$ ]	$\Delta$ [%]
1	1,19	6,54	3,2	2,35	4,4
2	1,15	6,07	3,4	2,17	4,2
3	1,06	5,37	3,7	1,91	4,7
4	0,897	4,40	4,0	1,55	5,3
5	0,72	3,43	4,2	1,20	4,9
6	0,56	2,62	4,5	0,908	5,5
7	0,423	1,94	4,4	0,668	5,5
8	0,318	1,45	4,9	0,494	5,8
9	0,239	1,07	5,4	0,365	6,0
10	0,184	0,814	5,3	0,275	6,2
11	0,149	0,647	5,4	0,218	6,3



TAB. 6.16: Schädigungsraten in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  bei 1180 K:  $\Delta$  ist Differenz von Werten bei 1180 K zu denen bei 0 K.

Zone	$\Phi_{\text{tot}}$ [ $10^{15} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ]	$\text{Li}_2\text{SiO}_3$ <i>dpa</i>		<i>ddf</i>	
		[ $10^{-7} \text{ s}^{-1}$ ]	$\Delta$ [%]	[ $10^{-7} \text{ s}^{-1}$ ]	$\Delta$ [%]
1	1,19	7,38	-2,3	2,21	-6,1
2	1,15	6,79	-2,1	2,02	-6,0
3	1,06	5,95	-1,9	1,76	-5,9
4	0,897	4,82	-1,7	1,41	-5,9
5	0,72	3,71	-1,5	1,08	-6,1
6	0,56	2,81	-1,4	0,811	-6,0
7	0,423	2,06	-1,3	0,591	-6,1
8	0,318	1,52	-1,1	0,433	-6,0
9	0,239	1,12	-0,8	0,317	-5,9
10	0,184	0,843	-0,8	0,237	-6,0
11	0,149	0,669	-0,1	0,188	-6,0

Während in Beryllium wegen der hohen Gittersymmetrie Fokussierungseigenschaften zu merklichen Modifikationen der Schädigungsraten führen, ist dies in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  nur sehr eingeschränkt der Fall. Insofern zeigen die Simulationen an Korngrenzenübergängen beispielhaft auf, daß lokale Inhomogenitäten derselben Phase kaum Effekte in der *dpa*- bzw. *ddf*-Rate verursachen können. Phasenübergänge zwischen  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  und  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  führen dagegen zu deutlichen Defektänderungen. Wegen des hohen molaren Gehalts von  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  in den  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ -Kügelchen des HCPB-Blankets müssen neben den Anteilen der Fremdphase (Metasilikat) auch die der Phasenübergänge in den Schädigungsrechnungen berücksichtigt werden.

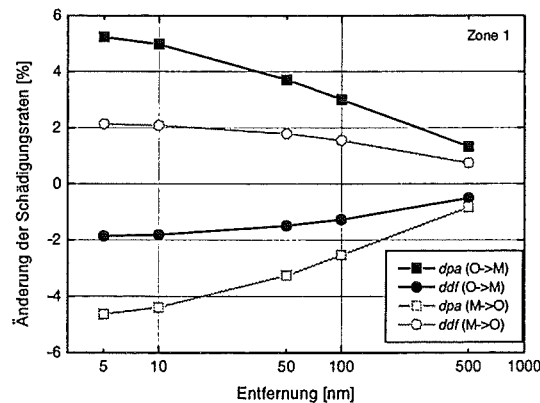


ABB. 6.15: Änderung der Schädigungsraten beim Phasenübergang: von  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  (O) nach  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  (M) und umgekehrt.

Die folgenden Berechnungen beziehen sich zunächst auf die innerste Brutzone (Zone 1). Für Übergänge von Ortho- nach Metasilikat (O->M) erhöht sich die *dpa*-Rate bis zu einem Ab-

stand von 100 nm zwischen 5 % und 3 % gegenüber dem Wert in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ . Dagegen sinkt die *ddf*-Rate um ca. 1,5 %. Obwohl beide Referenzwerte in homogenem  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  größer sind als in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ , weicht also die *ddf*-Differenz in eine völlig unerwartete Richtung ab. Tatsächlich wirken sich hier die unterschiedlichen Beiträge der verschiedenen PKA's aus. Denn die *ddf*-Rate durch  $\text{He}^4$ - und t-PKA's ist auf einer relativen Basis in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  kleiner als in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ , so daß aufgrund des hohen Anteils dieser PKA's an der Schädigungsrate und ihrer großen Reichweite (bei Energien oberhalb 2 MeV in der Größenordnung von 7  $\mu\text{m}$ ) dieser Einfluß, nämlich Reduzierung der *ddf*-Rate, im Gesamtergebnis dominiert.

Beim umgekehrten Übergang (M->O) erniedrigt sich die *dpa*-Rate (gegenüber dem Wert in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ ) zwischen 4,5 % und 2,5 % (bis zu einem Abstand von 100 nm), die *ddf*-Rate erhöht sich um etwa 2 %. Auch hier liegt die Ursache für das komplementäre Vorzeichen im Einfluß der leichten PKA's.

Deren Einfluß auf die Schädigungsraten verstärkt sich noch in größerer radialer Tiefe, indem nämlich noch mehr Defekte und noch weniger Fehlordnungen produziert werden. Andererseits weichen *dpa* und *ddf* in den beiden Silikaten immer weniger voneinander ab. Der Nettoeffekt ist dann eine unverändert hohe Differenz in der *dpa*-Rate, aber ein verringerter Effekt (absolut reduziert um 0,5 % bis 1 %) auf die *ddf*-Rate.

#### 6.4 Vergleiche mit anderen dpa-Rechnungen

\* Die in dieser Arbeit berechneten Schädigungsquerschnitte für Beryllium und Li-Silikate basieren auf BCA-Simulationen mit dem Code MARLOWE. Zur adäquaten und realistischen Beschreibung fusionsrelevanter Verlagerungsschädigung wurden physikalische Größen, Materialmodellierung und Defektidentifizierung wesentlich modifiziert und erweitert. Dadurch bedingt wurde eine Neuformulierung des kinematischen Modells, zusammen mit der Behandlung quasisimultaner Stöße, notwendig. Die Ergebnisse der Kaskadensimulationen zeigten bereits wesentliche Differenzen zur Lindhard'schen Partitionstheorie und dem darauf basierenden NRT-*dpa*-Konzept.

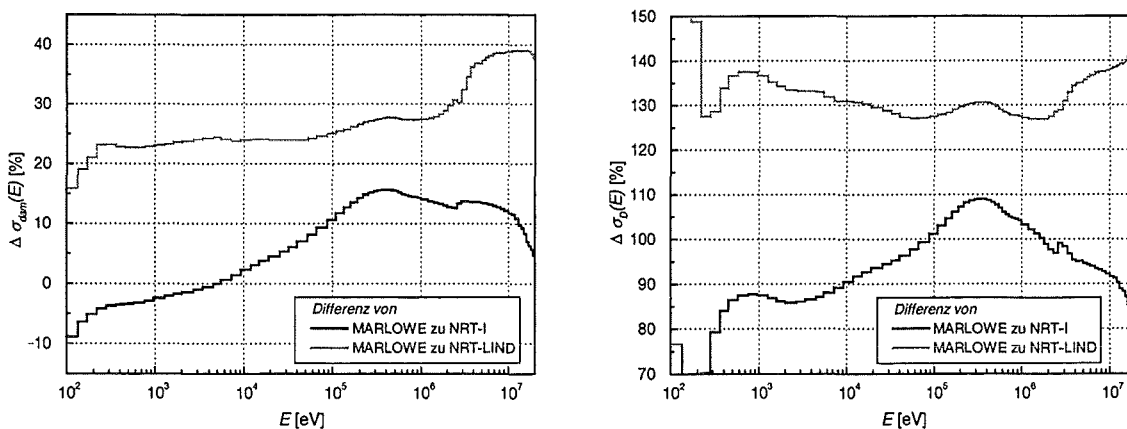
Die Berechnung der Schädigungsfunktionen  $E_{dam}$  und  $N_d$  im NRT-Modell ist, wie bereits ausgeführt, zudem durch die Bedingung eingeschränkt, daß damit nur identische Atompaare behandelt werden dürfen. Eine Erweiterung auf im Grunde beliebige Kombinationen zweier Atome ist jedoch möglich. Im einfachsten Fall geschieht dies rein formal anhand der Parametrisierung von  $E_{dam}$  (s. Glg. (3)), indem die Materialgrößen  $Z_i$  und  $M_i$  durch die entsprechenden Atom-Target-Kombinationen ersetzt werden. Eine andere Möglichkeit besteht darin, die Lindhard-Integralgleichung selbst für alle zu behandelnden Fälle separat zu lösen (s. z.B. [132, 133]). Die zugehörigen Partial-Schädigungsquerschnitte können dann entsprechend der jeweiligen atomaren Häufigkeit der beteiligten Partneratome summiert werden (s. Glg. (151)).

Dieses Schema wird im Schädigungscode SPECOMP/SPECTER [7, 8] eingesetzt, mit dem einige der folgenden Vergleichsrechnungen durchgeführt wurden. SPECOMP verwendet die NRT-Lindhard-Theorie, um für beliebige polyatomare Verbindungen, die als Mischung aus Elementen definiert werden, Verlagerungsquerschnitte  $\sigma_D$  bereitzustellen. Diese können dann in einer Bibliothek gleichartiger Querschnitte für SPECTER aufgenommen werden. SPECTER wiederum berechnet, basierend u.a. auf Bibliotheken für PKA's (aus ENDF/B-V) und  $\sigma_D$  (Elemente und Verbindungen), integrierte Schädigungsgrößen (insbesondere  $dpa$ -Werte) für ein spezifiziertes Neutronenspektrum und eine bestimmte Bestrahlungsdauer.

Im folgenden soll nun untersucht werden, welche globalen Änderungen in den Querschnitten und in den daraus resultierenden Schädigungsraten zu erwarten sind, wenn man die in dieser Arbeit erzielten Ergebnisse für die Schädigungsfunktionen  $E_{dam}$  und  $N_d$  betrachtet. Deshalb werden stets identische oder zumindest vergleichbare Kerndaten (PKA-Spektren) verwendet. Lediglich  $E_{dam}$  und  $N_d$  können dann entweder aus MARLOWE-Simulationen oder analytischen Theorien (Lindhard) ausgewählt werden.

### 6.4.1 Beryllium

In Beryllium läßt sich sehr leicht  $\sigma_{dam}$  vergleichen, da die Berechnung von  $E_{dam}$  im Lindhard-Modell gerade für monoatomare Targets abgeleitet ist. Insbesondere betrifft dies Eigenionen des Targetmaterials, also den elastischen Beitrag des PKA-Spektrums, der in Beryllium dominiert. Überdies hängt  $\sigma_{dam}$  nicht von der spezifischen Verlagerungsschwelle  $E_d$  ab, die einen besonders sensitiven Faktor im NRT-Modell darstellt. Vergleichswerte zu den aktuellen Ergebnissen (MARLOWE) basieren auf der originalen Lindhard-Schädigungsenergie (NRT-LIND) bzw. auf einer verbesserten analytischen Form derselben (NRT-I, s. [118]).



**ABB. 6.16:** Differenz der Schädigungsquerschnitte in Be zu bisherigen Resultaten: MARLOWE: diese Arbeit, NRT-Lind: mit Lindhard-Theorie, NRT-I: mit verbesserte Energiepartition [118]; beide NRT-Resultate für  $\sigma_D$  verwenden  $E_d = 31$  eV.

In **ABB. 6.16** (links) sind die erzielten Abweichungen in  $\sigma_{dam}$  aufgetragen. Offensichtlich führt die Anwendung des aktuellen BCA-Modells zu einer merklichen Erhöhung von  $\sigma_{dam}$  gegenüber der Lindhard-Theorie. Sie beträgt im allgemeinen um 25 %, steigt jedoch oberhalb einigen MeV auf fast 40 % an, da hier die Abweichung vom Lindhard-Plateau (s. S. 7) besonders stark ist. Im verbesserten Lindhard-Modell (NRT-I) werden ähnliche elektronische Bremsquerschnitte und interatomare Potentiale wie in MARLOWE verwendet. Deshalb sind bezüglich dieser Kurve die Abweichungen weniger stark; maximal sind es ca. 15 % bei einigen hundert keV, da dort vermehrt  $\text{Be}^9$ -PKA's mit Energien im Bereich von 10 bis 100 keV erzeugt werden, deren  $E_{dam}$  besonders stark gegenüber NRT-I erhöht sind (s. S. 133ff.). Für sehr hohe Neutronenenergien überwiegen dann Channellingeffekte der hochenergetischen Kaskaden, so daß der Zuwachs immer kleiner ausfällt. Die negative Differenz unterhalb einigen keV rührt vorrangig von dem verstärkten Auftreten sehr langsamer PKA's ( $T < 10$  eV) her, die in MARLOWE nicht berücksichtigt werden. Andererseits tragen diese zur Defekterzeugung praktisch nicht bei, so daß ihre Vernachlässigung im Rahmen der hier durchgeführten Schädigungsrechnungen nicht relevant ist.

Standardwert für  $E_d$  im NRT-Modell ist 31 eV (z.B. in SPECTER). Da dieser Wert deutlich höher ist als die mittlere Verlagerungsschwelle aus den MARLOWE-Simulationen (ca. 17 eV), ergibt sich für das MARLOWE-Resultat ein massiv erhöhter  $\sigma_D$  (vgl. **ABB. 6.16**, rechts). Die Differenz bezüglich des NRT-I-Querschnittes beträgt durchschnittlich 90 % mit einer Energieabhängigkeit, die im wesentlichen die von  $\sigma_{dam}$  widerspiegelt mit leichten Abweichungen, die sich auf den Beitrag von  $E_d$  (abhängig von PKA-Typ und -Energie) zurückführen lassen. Ein ähnliches Verhalten auf höherem Niveau (um 130 %) zeigt die Differenz zu NRT-LIND, wobei offensichtlich besonders bei kleinen Primärenergien die immer geringer werdende Schwelle  $E_d$  zu einem noch stärkeren Zuwachs von  $\sigma_D$  führt.

Aufgrund dieser Diskrepanz liefern die verschiedenen Ansätze extrem unterschiedliche *dpa*-Raten. Ein instruktiver Vergleich ergibt sich für das MARLOWE-Resultat, wenn dort nur die aktuelle  $E_{dam}$  verwendet und  $E_d = 31$  eV gesetzt wird. Das Ergebnis dieser Berechnung (NRT-MARLOWE) ist zusammen mit den übrigen *dpa*-Resultaten in **TAB. 6.17** aufgeführt.

**TAB. 6.17:** *dpa*-Raten in Be (0 K): DEMO-Feststoffblanket, Outboard, Torusmittelebene. Modelle, s. Text.

Zone	MARLOWE		NRT-MARLOWE		NRT-I		SPECTER		NRT-LIND
	<i>dpa</i> <sup>(1)</sup>	$\Delta$ <sup>(2)</sup>	<i>dpa</i> <sup>(1)</sup>	$\Delta$ <sup>(2)</sup>	<i>dpa</i> <sup>(1)</sup>	$\Delta$ <sup>(2)</sup>	<i>dpa</i> <sup>(1)</sup>	$\Delta$ <sup>(2)</sup>	<i>dpa</i> <sup>(1)</sup>
1	7,86	130	4,39	29	3,90	14	3,55	4	3,41
11	0,709	129	0,393	27	0,351	14	0,313	1	0,309

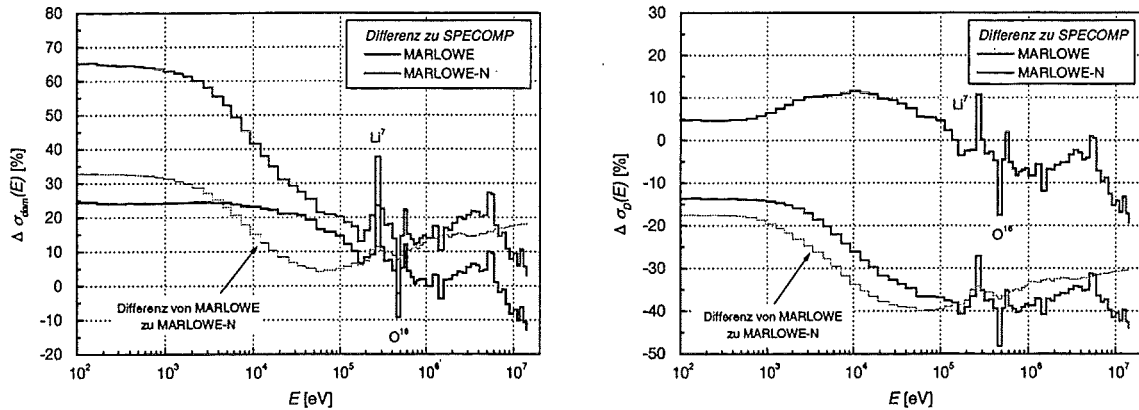
<sup>(1)</sup> in  $10^{-7} \text{ s}^{-1}$ ; <sup>(2)</sup> Abweichung zu NRT-LIND in %

Während also global eine *dpa*-Rate erreicht wird, die ca. 130 % größer ist als im NRT-LIND-Modell, führt schon die BCA-Methodik selbst, ohne Berücksichtigung von Defektausbeuten aus der Simulation, zu einem Zuwachs von fast 30 %. Dabei treten lediglich leichte Abweichungen zwischen unterschiedlich harten PKA-Spektren (am Beispiel der Zonen 1 und 11 des DEMO-Blankets) zutage, da die größten Differenzen nur für den kleinen Anteil sehr hochenergetischer PKA's zu verzeichnen sind. Die drei auf analytischen Schädigungsrechnungen basierenden Resultate weichen nur moderat voneinander ab. SPECTER stützt sich auf die Theorie von NRT-LIND, verwendet aber PKA-Daten auf ENDF/B-V. Tatsächlich sind nicht die veränderten Kerndaten ursächlich für die leichte Differenz der beiden Resultate, sondern die vereinfachte Anwendung der NRT-Formel für  $E_{dam}$  in SPECTER. Diese liefert nur für  $Z_1 = Z_2$  den korrekten Lindhard-Faktor  $k$ , ansonsten werden für leichte PKA's zu kleine Parameter berechnet (z.B. für  $\text{He}^4$  in  $\text{Be}^9$  um über 35 %), so daß deren Schädigungsenergie die NRT-Lindhard-Funktionen überschätzt.

### 6.4.2 $\text{Li}_4\text{SiO}_4$

Die aktuellen Ergebnisse für  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ , die auf einer detaillierten und realistischen Modellierung des Materials und seiner charakteristischen kristallinen Eigenschaften beruhen, werden im folgenden mit Resultaten aus SPECOMP/SPECTER-Berechnungen verglichen. Zusätzlich wurden Schädigungsparameter bestimmt, die mit einem einfachen BCA-Modell entwickelt wurden. Dieses Modell entspricht in wesentlichen Zügen der vorliegenden Version 13 von MARLOWE. Demnach stehen hier nur abgeschirmte Coulomb-Potentiale (im speziellen AMLJ) und ein vereinfachtes BCA-Kinematikmodell zur Verfügung. Außerdem sind Annihilationen auf partiell besetzten Li-Gitterlagen nicht erlaubt und keine Bindungsenergien verwendet worden.

Offensichtlich erlaubt dieses Modell, im folgenden mit MARLOWE-N bezeichnet, eine Zwischenstufe zwischen SPECOMP/SPECTER und dem aktuellen Ergebnis zu beschreiben. Darin sind wichtige kristalline Eigenschaften enthalten (gegenüber der analytischen Lindhard-Theorie), andererseits fehlt aber der offensichtlich beherrschende ionische Charakter von  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .



**ABB. 6.17:** Differenz von MARLOWE-basierten Schädigungsquerschnitten zu SPECOMP-Resultaten in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ : MARLOWE: diese Arbeit; MARLOWE-N: einfaches BCA-Modell. Zusätzlich ist die Differenz beider MARLOWE-Resultate eingezeichnet.

Der Effekt auf den totalen Schädigungsenergiequerschnitt  $\sigma_{dam}$  gegenüber SPECOMP ist ähnlich wie in Be eine weitgehend beträchtliche Erhöhung (s. **ABB. 6.17**, links). Diese ist besonders ausgeprägt für Energien unterhalb einigen keV und erreicht dort über 65 % für den MARLOWE-Querschnitt bzw. 25 % für MARLOWE-N. Ansonsten nehmen die Differenzen merklich ab und liegen oberhalb 100 keV bei durchschnittlich +17 % bzw. +4 % (für MARLOWE bzw. MARLOWE-N). Bis auf wenige Ausnahmen liegen beide BCA-Ergebnisse oberhalb von SPECOMP. Die lokalen Extrema rühren dabei von der Li-Resonanz um 250 keV und oberhalb dieser Energie vorrangig von Abweichungen im  $\text{O}^{16}$ -Partialquerschnitt her. Insbesondere der auffallend niedrige Wert bei ca. 450 keV wird durch eine  $\text{O}^{16}$ -Resonanz verursacht.

Überhaupt sind die Veränderungen in den Partialquerschnitten z.T. erheblich, besonders die Beiträge aus  $\text{Li}^6$  und  $\text{Li}^7$ . Sie liegen für die aktuellen MARLOWE-Resultate ca. 40 % bis 90 % oberhalb von SPECOMP (vgl. **ABB. 6.18**, a). Insofern sind die markanten Erhöhungen bei niedrigen Neutronenenergien auf die Änderungen in den  $\text{He}^4$ - und t-Beiträgen zurückzuführen. Betrachtet man diese genauer, so fällt auf, daß die Differenz zu SPECOMP kleiner ausfällt, als aus den separaten Partialquerschnitten zu erwarten wäre. Dies ist durch eine Unzulänglichkeit des SPECOMP-Codes hinsichtlich der Behandlung leichter Elemente bedingt. SPECOMP berechnet für das totale PKA-Spektrum eine einzige Schädigungsfunktion, nämlich die der Eigenionen. Während dieses Verfahren für schwerere Elemente durch eine vernünftige Näherung darstellt, versagt es jedoch dann entscheidend, wenn die Massenunterschiede zwischen verschiedenen PKA's eines Elementes sehr groß sind. Infolgedessen überschätzt der SPECOMP-Querschnitt in diesem Energiebereich den mit einer korrekten Anwendung des NRT-Modells ermittelten Beitrag. Die aktuellen Partialquerschnitte für Beiträge aus  $\text{O}^{16}$  und  $\text{Si}^{28}$  weichen dagegen nur um etwa  $\pm 15\%$  von SPECOMP ab (vgl. **ABB. 6.18**, b), auch ein Hinweis darauf, daß für die schwereren PKA's die Lindhard-Theorie besser geeignet ist.

Im Vergleich der beiden MARLOWE-Querschnitte (in ABB. 6.17, links) zeigt sich, daß im Bereich, wo  $\text{He}^4$  und  $t$  dominieren, die aktuelle Auswertung um bis zu 33 % oberhalb von MARLOWE-N liegt. Offensichtlich ist für die leichten PKA's die zusätzliche ionische Ladung in MARLOWE von größerer Bedeutung als für die schwereren PKA's. Auch steigt im neuen ionischen Modell  $E_{dam}$  mit höherer PKA-Energie stärker an als im einfachen, abgeschirmten Modell. Diese beiden Eigenschaften erklären dann die Absenkung der Differenzkurve auf minimal +4 %, wo schwere PKA's mit kleinen Energien bestimmend sind, und den stetigen Anstieg auf bis zu +18 %, wenn die mittleren PKA-Energien zunehmen.

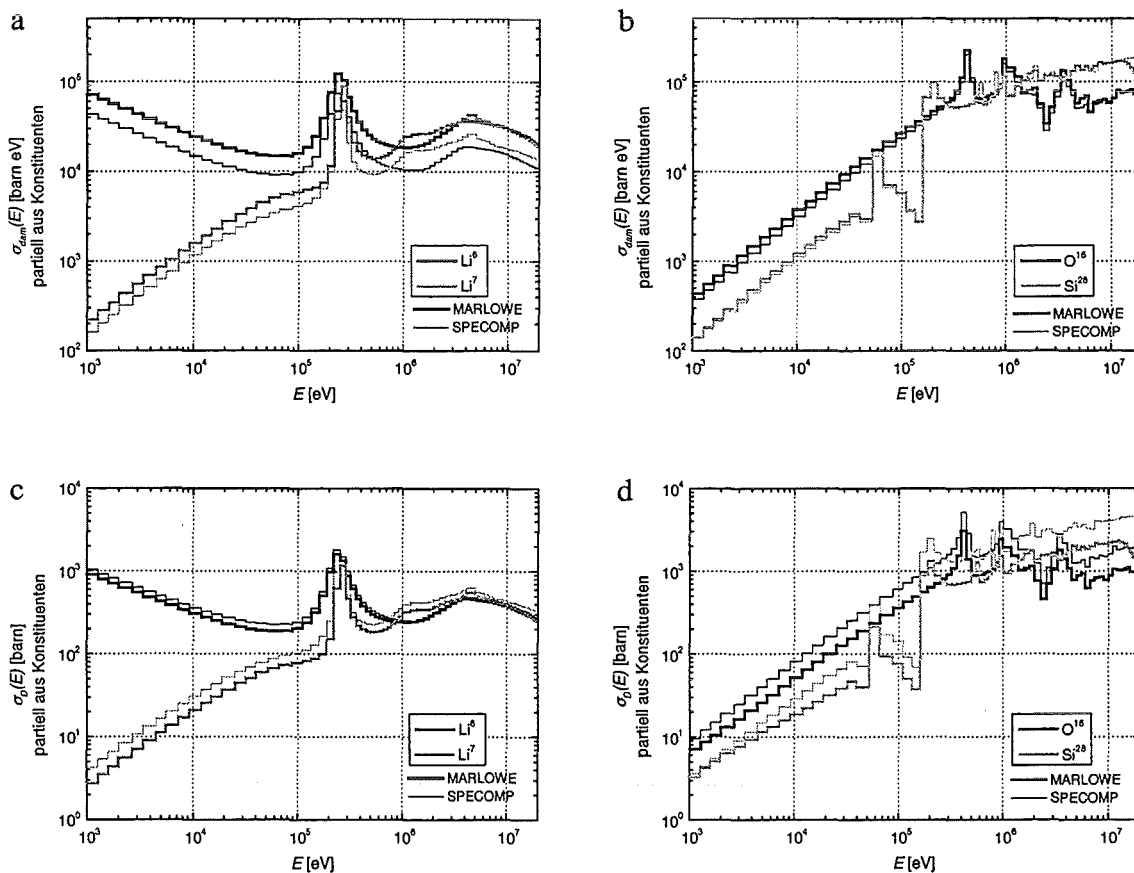


ABB. 6.18: Partialbeiträge für Schädigungsquerschnitte aus Konstituenten des  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ ; Vergleich von aktuellen Ergebnissen mit SPECOMP-Resultaten.

Während beide BCA-Rechnungen für  $\sigma_{dam}$  höhere Werte als SPECOMP ausweisen und MARLOWE stets MARLOWE-N übertrifft, zeigen die Verlagerungsquerschnitte ein komplementäres Verhalten (ABB. 6.17, rechts). Zwar wird qualitativ die Energieabhängigkeit der Differenz zu SPECOMP bestätigt, jedoch kommt nun MARLOWE unterhalb von MARLOWE-N zu liegen und ist zudem kleiner als SPECOMP. Obwohl also die kinetischen Energieüberträge innerhalb des  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ -Gitters mit Berücksichtigung der ionischen Ladungen massiv erhöht sind, ist die Defektausbildung drastisch reduziert, so daß  $\sigma_D(\text{MARLOWE})$  um mindestens 12 % und bis zu 40 % (oberhalb 100 keV) kleiner ausfällt als in SPECOMP. In diesem

Fall werden die dominierenden Abweichungen von den schwereren PKA's, O<sup>16</sup> bis Si<sup>28</sup>, aufgebracht, während ansonsten die Reduktion bei etwa 10 bis 30 % liegt (s. ABB. 6.18, c, d).

Der MARLOWE-N-Querschnitt variiert weniger stark und liegt größtenteils in einem Intervall von ±10 % um den SPECOMP-Querschnitt. Deshalb darf man in diesem BCA-Modell letztendlich ähnliche Schädigungsraten erwarten wie in SPECOMP. Im Vergleich zum aktuellen BCA-Modell zeigt sich auch hier die charakteristische Abhängigkeit der Differenz von der Neutronenenergie, was letztlich, wie in  $\sigma_{dam}$ , auf das jeweilige PKA-Spektrum zurückzuführen ist. Für Neutronenenergien, bei denen Li<sup>6</sup>(n,t) $\alpha$  die beherrschende Kernreaktion in Li<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub> ist, beträgt also die Differenz zwischen MARLOWE und MARLOWE-N etwa -17 %, die oberhalb von 10 keV auf durchschnittlich -34 % ansteigt.

Die in den bisherigen Ausführungen erläuterte komplexe Abhängigkeit der totalen Schädigungsquerschnitte von denen der einzelnen Konstituenten finden ihre Bestätigung in der effektiven Verlagerungsschwelle. Dabei soll nach dem Defektatom spezifiziert werden, d.h. man berechnet für die beiden MARLOWE-Resultate

$$E_d(Atom) = \frac{\kappa}{2} \sigma_{dam}(Atom) / \sigma_D(Atom) \quad , \quad \kappa = 0,8, \quad (159)$$

wobei sich die Querschnitte auf Energieüberträge und Defekte der jeweiligen Spezies beziehen. Hierbei wird zweckmäßigerweise über alle Neutronenenergien und alle PKA's gemittelt. Für SPECOMP sind  $E_d(Atom)$  als Eingabeparameter fixiert. Eine Zusammenstellung dieser Schwellen für die verschiedenen Berechnungen zeigt folgende Tabelle:

**TAB. 6.18:** Verlagerungsschwellen in Li<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub> für Defektspezies [eV].

Defekt	MARLOWE	MARLOWE-N	SPECOMP
Li	33	16	10
O	19	21	30
Si	112	23	25

Während also MARLOWE-N qualitativ die SPECOMP-Schwellen bestätigt, führt MARLOWE zu einem gegensätzlichen Verhalten. Zum einen sind nun offenbar O-Verlagerungen gegenüber denen von Li-Atomen begünstigt, zum anderen ist die Ausbildung von Si-Defekten massiv beeinträchtigt. Dies ist insbesondere eine Konsequenz der stabilen Bindung im [SiO<sub>4</sub>]-Tetraeder, die die Freisetzung des zentralen Si-Ions erschwert und zu vermehrten korrelierten Rekombinationen führt.

In TAB. 6.19 sind dpa-Raten für die verschiedenen Modelle aufgeführt. Dazu wurde zwei weitere Rechnungen durchgeführt (SP-MARLOWE bzw. SP-MARLOWE-N), die  $E_{dam}$  ent-



weder aus der aktuellen MARLOWE-Rechnung oder dem vereinfachten BCA-Modell verwenden, aber  $E_d$  gemäß den Vorgaben in SPECOMP. Die Ergebnisse zeigen den Einfluß aller in den Code eingebrachten Änderungen, ohne aber deren Defektausbeuten.

TAB. 6.19:  $dpa$ -Raten in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  (0 K): DEMO-Feststoffblanket, Outboard, Torusmittelebene. Modelle, s. Text.

Zone	MARLOWE		MARLOWE-N		SP-MARLOWE		SP-MARLOWE-N		SPECOMP
	$dpa^{(1)}$	$\Delta^{(2)}$	$dpa^{(1)}$	$\Delta^{(2)}$	$dpa^{(1)}$	$\Delta^{(2)}$	$dpa^{(1)}$	$\Delta^{(2)}$	$dpa^{(1)}$
1	6,34	-37	9,35	-7	13,20	31	11,0	+9	10,1
11	0,614	-31	0,877	-2	1,31	47	1,05	+18	0,893

<sup>(1)</sup> in  $10^{-7} \text{ s}^{-1}$ ; <sup>(2)</sup> Abweichung zu SPECOMP in %

Da  $\sigma_{dam}$  im MARLOWE-Modell den SPECOMP-Querschnitt stark übertrifft, führt SP-MARLOWE zu einer um mindestens 30 % erhöhten  $dpa$ -Rate. Die Differenz steigt in größerer Blankettiefe an bedingt durch die nun allgemein geringeren Neutronenenergien im weicheren Spektrum. MARLOWE-N liefert, wie erwartet, eine nahezu identische Schädigungsrate, während das aktuelle Ergebnis eine Differenz von -37 % aufweist. Auch in diesen Modell erhöht sich der  $dpa$ -Wert im weicheren Neutronenspektrum relativ zum Vergleichswert aus SPECOMP.

Bedingt durch die großen Abweichungen der individuellen Verlagerungsschwellen für die einzelnen Konstituenten ist auch die Defektzusammensetzung zwischen den verschiedenen Modellen sehr unterschiedlich (s. TAB. 6.20).

TAB. 6.20: Zusammensetzung der  $dpa$ -Rate in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  nach Defektspezies [%].

	MARLOWE	MARLOWE-N	SP-MARLOWE	SP-MARLOWE-N	SPECOMP
Li	35	56	57	73	67
O	57	36	26	21	25
Si	8	8	17	6	8

In SPECOMP werden vorrangig Li-Defekte ausgewiesen. Unter Verwendung derselben  $E_d$ -Werte, aber  $E_{dam}$  aus MARLOWE, erhält man eine um mehr als 30 % erhöhte Defektrate (SP-MARLOWE), wobei der Haupteffekt von einer starken Erhöhung des Si-Defektanteils herrührt. Während nämlich in SPECOMP die effektiv übertragene kinetische Energie auf Si-Atome nach der Lindhard-Theorie berechnet und zusätzlich mit der atomaren Häufigkeit von Si in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  gewichtet wird, zeigen die MARLOWE-Resultate demgegenüber merklich höhere Schädigungsenergien. Dies ist ein Hinweis darauf, daß die oft geübte Praxis, Schädigungsfunktionen in polyatomaren Materialien durch gewichtete Summen der elementaren Schädigungsfunktionen zu gewinnen, wie hier in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  nur sehr ungenaue Resultate liefert. Im

konkreten Fall wird der Anteil, der auf Si übertragen wird, offenbar drastisch unterschätzt, so daß der Si-Defektanteil unverhältnismäßig klein ausfällt.

Lediglich durch die hohe Verlagerungsschwelle des Si, die im Resultat MARLOWE berücksichtigt ist, sinkt der Anteil der Si-Defekte wieder auf das Maß von SPECOMP. Andererseits zeigt MARLOWE den überragenden Einfluß der partiell besetzten Li-Gitterlagen im Zusammenspiel mit teilweise abgeschirmten Coulomb-Potentialen, die nicht nur zu einer globalen Reduzierung der *dpa*-Rate führen (beinahe -40 % gegenüber SPECOMP), sondern auch die Defektzusammensetzung in drastischer Weise ändern. Demnach werden hauptsächlich O-Defekte erzeugt (zu mehr als 50 %), in völligem Kontrast zu allen anderen Rechnungen. Dabei muß bemerkt werden, daß die Li-Annihilationsrate auf eigenen Gitterlagen relativ hoch ist, größer noch als die Li-*dpa*-Rate. Insofern ist der Nettoeffekt im wesentlichen bestimmt durch diese Annihilationen, einer speziellen Charakteristik im  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ -Gitter. Tatsächlich zeigen die durchgeführten Analysen mit variierenden ionischen Ladungen (s. Kap. 5.3.2, S. 110ff.), daß das Coulomb-Potential alleine eine vergleichbar hohe Defektreduzierung bewirken kann. Letztlich kompensieren sich also zumindest teilweise die einzelnen im Rahmen dieser Arbeit implementierten Modifikationen in MARLOWE.

Im einfacheren BCA-Modell (SP-MARLOWE-N) mit SPECOMP-Verlagerungsschwellen nimmt zwar die totale *dpa*-Rate gegenüber SPECOMP nur moderat zu, jedoch ist der Li-Anteil merklich verstärkt (+18 %), absolut gesehen ist er sogar größer als in SP-MARLOWE. Offensichtlich führt die Verwendung abgeschirmter repulsiver Potentiale stets zu einer bevorzugten Energieabgabe an das Li-Subgitter als dem leichtestem Element in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ . Infolgedessen verringern sich auch die absoluten O- und Si-Anteile in etwa demselben Ausmaß (-10 %). Unter Berücksichtigung der Defektausbeuten, die direkt aus MARLOWE-N stammen, anstelle der durch SPECOMP-Schwellen ermittelten Werte, verringert sich die totale *dpa*-Rate um 15 %, wobei der Li-Anteil separat betrachtet um ca. 35 % sinkt, der O-Anteil dagegen sogar um nahezu 50 % ansteigt. Daraus läßt sich ableiten, daß SPECOMP erkennbar ungünstig gewählte Verlagerungsschwellen verwendet. Der Code überschätzt die Li-Defekterzeugung, und umgekehrt unterschätzt er die Produktion von O-Defekten. Doch liegen die verwendeten Schwellen zufälligerweise so, daß die totale Defekterzeugung nur schwach von der realistischeren Berechnung in MARLOWE-N abweicht.

### **6.5 Ergebnisse der Schädigungsrechnungen und Schlußfolgerungen**

Das in dieser Arbeit entwickelte Modell zur realistischen Beschreibung der Verlagerungsschädigung leichter mono- und polyatomarer Materialien wurde auf die speziellen Bestrahlungsbedingungen im DEMO-Fusionsreaktor angewendet. Untersucht wurden Beryllium und  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  im HCPB-Feststoffblanket.

Für die Fusionsneutronen mit 14,1 MeV stehen eine Vielzahl von Reaktionskanälen offen, deren Rückstoßkerne bzw. Sekundärteilchen ein charakteristisches Energiespektrum aufweisen. Davon werden diejenigen für Verlagerungsschädigung interessant, bei denen Masse, Energie und Häufigkeit im Spektrum in geeignetem Verhältnis stehen. Konkret werden in dieser Arbeit für Beryllium die PKA's  $\text{He}^4$ ,  $\text{He}^6$  und  $\text{Be}^9$ , für die Lithiumsilikate  $\text{t}$ ,  $\text{He}^4$ ,  $\text{Li}^6$ ,  $\text{Li}^7$ ,  $\text{O}^{16}$ ,  $\text{Mg}^{25}$ ,  $\text{Al}^{28}$  und  $\text{Si}^{28}$  betrachtet. In allen untersuchten Materialien tragen unelastische Reaktionen in z.T. erheblichem Maße zum totalen PKA-Spektrum bei. Insbesondere der hochenergetische Teil ist davon wesentlich geprägt.

Schädigungsfunktionen zur Beschreibung der kaskadeninduzierten Defektausbildung ( $E_{dam}$ ,  $N_d$  und in den Lithiumsilikaten  $N_p$ ) wurden aus BCA-Simulationen mit dem modifizierten MARLOWE-Code ermittelt. Die zugehörigen Schädigungsquerschnitte ( $\sigma_{dam}$ ,  $\sigma_D$  für Defekte und Fehlorderungen) konnten dann in einem Codesystem, das im wesentlichen die Kopplung zwischen der PKA-Berechnung und den MARLOWE-Ausgaben bereitstellt, berechnet werden. In Be überwiegt dabei der Partialbeitrag der elastisch erzeugten PKA's, erst bei sehr hohen Neutronenenergien liefern die Helium-PKA's einen Anteil von ca. 10 %. Die Querschnitte in den Li-Silikaten sind von zwei klar getrennten Bereichen geprägt; unterhalb einigen keV von  $\text{He}^4$  und  $\text{t}$  aus der Tritiumbrutreaktion in  $\text{Li}^6$ , oberhalb davon größtenteils von  $\text{O}^{16}$ . Deshalb ist der Beitrag der  $\text{Li}^6(\text{n,t})$ -Reaktion von eminenter Bedeutung, wenn man z.B. Bestrahlungen mit langsamen (oder gar thermischen Neutronen) vornimmt oder verschiedene  $\text{Li}^6$ -Anreicherungen in Brutkeramiken diskutiert.

Gegenüber dem herkömmlichen Lindhard-NRT-Konzept liefert das in dieser Arbeit entwickelte neue Modell eine markante Erhöhung von  $\sigma_{dam}$ , die im Falle von Be durchschnittlich ca. 30 % beträgt, in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  getrennt für Nieder- bzw. Hochenergieabschnitt ca. 65 % bzw. 17 %.

Bedingt durch die besondere Berücksichtigung kristalliner Eigenschaften weicht  $\sigma_D$  noch drastischer und in gegensätzlicher Richtung von bisherigen Daten ab. Bezüglich Lindhard-NRT erhält man in Be eine Zunahme um etwa 130 %, in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  eine Abnahme zwischen ca. 12 und 40 %.

Basierend auf diesen verbesserten Querschnitten wurden Schädigungsraten ( $dpa/s$  und  $ddf/s$ ) in beiden Materialien im HCPB-DEMO-Blanket berechnet. Dabei sind diese nicht nur von der integralen Neutronenflußdichte abhängig, sondern auch, wegen des jeweils charakteristischen Kaskadenverhaltens einzelner PKA's, vom Energiespektrum der Neutronen und letztlich von der Zusammensetzung des PKA-Spektrums. Im Bereich der höchsten Neutronenbelastung des Outboard-Blankets ( $\Phi \approx 1,2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ) erhält man die in folgender Tabelle aufgeführten Schädigungsraten für statische Kristallgitter:

**TAB. 6.21:** Maximale Schädigungsraten bei 0 K in Be und Li-Silikaten: mit Beimischungen von 2 wt% SiO<sub>2</sub> bzw. 5 wt% SiO<sub>2</sub> und 2 wt% TeO<sub>2</sub>.

[10 <sup>-7</sup> s <sup>-1</sup> ]	Be	Li <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub>	Li <sub>2</sub> SiO <sub>3</sub>	Li <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub> +SiO <sub>2</sub>	Li <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub> +SiO <sub>2</sub> +TeO <sub>2</sub>
<i>dpa</i>	7,86	6,34	7,55	6,43	6,53
<i>ddf</i>	-	2,25	2,35	2,26	2,27

Der Anteil unelastisch erzeugter Schädigung in Be beträgt etwa 4,3 %, wohingegen es in Li<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub> mehr als 25 % sind. Dabei liefert Li<sup>6</sup>(n,t) alleine schon nahezu 15 %.

Die Ausbildung einer zweiten Gleichgewichtsphase in Li<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub> mit überstöchiometrischem SiO<sub>2</sub>-Gehalt führt dort zu einer um ca. 20 % erhöhten *dpa*-Rate und ca. 4 % erhöhten *ddf*-Rate. Entsprechend der bei zusätzlichen 2 wt% SiO<sub>2</sub> vorliegenden molaren Zusammensetzung von 92,2 % Li<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub> und 7,8 % Li<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub> ergeben sich so nur marginal erhöhte Defektraten im Phasengemisch. Bei weiterer Zugabe von 3 wt% SiO<sub>2</sub> und 2 wt% Tellurdioxid (ca. 84,5 mol% Li<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub>, 15,5 mol% Li<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>) steigen die Defektraten analog dem größeren Metasilikatanteil etwas stärker, ca. 3 % in *dpa* und 1 % in *ddf*.

Bei erhöhten Temperaturen, wie sie typisch für das Feststoffblanket im DEMO-Fusionsreaktor sind, führen thermischen Schwingungen der Gitteratome zu einer Störung der strengen Kristallsymmetrie und sorgen so, vor allem in Be, für defokussierende Bedingungen. Entsprechend sinkt in diesem Material die *dpa*-Rate um etwa 13 %. In Li<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub> erhält man dagegen sogar eine Steigerung von 3 bis 4 % sowohl in der *dpa*- als auch in der *ddf*-Rate, eine Konsequenz der über weite PKA-Energien erhöhten Verlagerungswahrscheinlichkeit innerhalb der Kollisionskaskade. Aufgrund der höheren Gittersymmetrie in Li<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub> sinken dort die Raten um 2 bzw. 6 % (*dpa* bzw. *ddf*). Zusammenfassend spielen offenbar thermische Schwingungen in den Silikaten eine untergeordnete Rolle, im Gegensatz zu Beryllium, wo Channelling im hcp-Gitter von großer Bedeutung für die Defektausbildung ist.

**TAB. 6.22:** Maximale Schädigungsraten bei 900 K in Be bzw. 1180 K in Li-Silikaten: mit Beimischungen von 2 wt% SiO<sub>2</sub> bzw. 5 wt% SiO<sub>2</sub> und 2 wt% TeO<sub>2</sub>. Differenzen beziehen sich auf 0 K (TAB. 6.21).

[10 <sup>-7</sup> s <sup>-1</sup> ]	Be	Li <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub>	Li <sub>2</sub> SiO <sub>3</sub>	Li <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub> +SiO <sub>2</sub>	Li <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub> +SiO <sub>2</sub> +TeO <sub>2</sub>
<i>dpa</i>	6,78	6,54	7,38	6,61 (+2,8 %)	6,67 (+2,4 %)
<i>ddf</i>	-	2,35	2,21	2,34 (+3,6 %)	2,33 (+2,8 %)

Schädigungsraten in unmittelbarer Nähe zu lokalen Inhomogenitäten, wie Korngrenzen, Hohlräumen, Gasblasen oder Fremdphaseneinschlüssen, konnten basierend auf Simulationen mit der erweiterten Targetmodellierung in MARLOWE berechnet werden. Die aus den MARLOWE-Simulationen zu erwartenden maximalen Effekte werden aufgrund der notwendigen Mittelung über alle PKA's und alle Richtungen reduziert. Außerdem sorgen selbst minimale

thermische Schwingungen durch Störung der Gittersymmetrie für einen letztlich vernachlässigbar kleinen Effekt. In Be erwartet man wegen der guten Channelling-Eigenschaften im statischen Kristallgitter eine mittlere Reduktion der *dpa*-Raten um etwa 2 % bis zu einem Abstand von 100 nm von der Flächenstörung im Gitter. Lediglich beim Übergang an BeO-Einschlüssen ist die Reduzierung deutlich größer, da der *dpa*-Referenzwert in BeO um 30 % unterhalb von Be liegt. So beträgt hier die Differenz durchschnittlich etwa -10 % bis zu 1.000 nm.

In den Li-Silikaten können gemittelte Effekte an Kristallstörungen der reinen Phasen praktisch nicht beobachtet werden. An Phasenübergängen der beiden Gleichgewichtsphasen  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  und  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  treten jedoch merkliche Modifikationen der Schädigungsraten auf. Die *dpa*-Rate weicht bis zu einem Abstand von 100 nm um etwa 4 % von der jeweils reinen Phase ab, die *ddf*-Rate dagegen um 1,5 %, wobei das Vorzeichen wegen der besonderen Defektausbildung der leichten PKA's umgedreht ist.

Zur Beurteilung der Vergleichbarkeit von Bestrahlungsexperimenten mit den zu erwarteten Schädigungsraten in Fusionsreaktoren wie DEMO kann zunächst die  $W(T)$ -Funktion herangezogen werden. Sie beschreibt den Anteil der Schädigung, der durch PKA's mit Energien bis  $T$  erzeugt wird. Insofern ist sie ein gutes Maß, um die Härte des PKA-Spektrums zu bemessen. Dieses ist deshalb so bedeutend, da PKA's unterschiedlicher Energie unterschiedlich große Kaskaden erzeugen, mithin zu verschieden ausgedehnten geschädigten Materialzonen führen. In den hier untersuchten leichtatomigen Materialien sättigt sich die Schädigungswirkung hochenergetischer PKA's relativ schnell ab. Außerdem ist ihre mittlere Reichweite im Material ausgesprochen groß. Konsequenz dieser beiden Charakteristiken ist, daß die  $W(T)$ -Funktion für hinreichend große  $T$  nahe bei 1 liegt und dann nur noch äußerst schwach ansteigt. Die eventuell beobachtbaren Differenzen in diesem Energiebereich sind deshalb von untergeordneter Bedeutung. Außerdem weist die Kaskadenmorphologie zum einen lange, nahezu geradlinige Ketten mit wenigen, weit separierten Punktdefekten auf, zum anderen in großer Entfernung vom Start der PKA-Trajektorie eine herkömmliche dichte Baumstruktur der dort erzeugten Zwischengitteratome und Leerstellen.

Wegen der teilweise großen Massenunterschiede der PKA's kann die  $W(T)$ -Funktion alleine nicht die jeweils charakteristischen Defektmorphologien beschreiben. Dazu gehört zum Beispiel in Be die enger separierten Punktdefektpaare durch He-induzierte Kaskaden, ebenso wie die erheblich abweichenden effektiven Verlagerungsschwellen. In  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  treten diese Unterschiede ebenso auf, zusätzlich findet man leicht variierende Defektdichten innerhalb der geschädigten Materialzone, verschieden stark ausgeprägtes Clustern von Leerstellen und atomaren Fehlordnungen, sowie einen dedizierten Fehlordnungsgrad in Abhängigkeit vom primären Teilchen.

Gerade die in polyatomaren Materialien möglichen Gitterfehlbesetzungen, die zu chemischer Unordnung und anschließendem zusätzlichem Aufbruch des Kristallgitters führen können, müssen sorgfältig untersucht werden. So zeigt sich in den hier vorgestellten DEMO-relevanten Schädigungsraten ein hoher Anteil von etwa 30 bis 35 % der *dpa*-Rate, der zu Fehlordnungen in den einzelnen Subgittern der Lithiumsilikate führt. Zudem sorgt das partiell besetzte Li-Subgitter in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  für zusätzliche Li-Annihilationen, während ein großer Anteil von O- und Si-Zwischengitteratomen sich dort stabilisieren. Während also der Anteil der Li-Defektatome nur etwa 35 % ausmacht, führen Li-Fehlordnungen von 43 % zu einer starken Schädigung der Silikattetraeder. Offenbar sollte in polyatomaren Materialien neben der Angabe der *dpa*-Rate auch die der *ddf*-Rate obligatorisch sein. Beide Werte, eventuell separiert nach einzelnen Defektspezies, sind besser geeignet, die Verlagerungsschädigung adäquat zu quantifizieren.

Gerade in den Li-Silikaten erkennt man nun, daß verschiedene PKA's durchaus unterschiedlich relative *ddf*-Beiträge leisten. Speziell beträgt die *ddf*-Rate der leichten PKA's  $\text{He}^4$  und  $t$  bei den vorherrschenden Energien von 2 bis 2,6 MeV nur 30 % bzw. 22 %, während für alle anderen PKA's dieser Werte bei etwa 36 bis 37 % liegt. Überdies ist der Anteil der positiv geladenen Fehlordnungen um etwa 5 % höher als für schwerere PKA's.

Diese qualitativen wie quantitativen Differenzen müssen nun zusätzlich zum Vergleich von *dpa*- und *ddf*-Raten bzw. der  $W(T)$ -Funktion in die Beurteilung unterschiedlicher Bestrahlungsbedingungen einfließen. Gerade die in Lithiumkeramiken mit hoher  $\text{Li}^6$ -Anreicherung dominierende (n,t)-Reaktion sorgt für einen kritischen Beitrag zur Verlagerungsschädigung. Während Bestrahlungen mit schnellen Neutronen vorrangig  $\text{O}^{16}$ , aber ebenso signifikante Anteile weiterer PKA's erzeugen, produzieren langsame, epithermische und vor allem thermische Neutronen praktisch ausschließlich  $\text{He}^4$  und  $t$  mit mindestens 2 MeV kinetischer Energie. Obwohl also durch weichere Neutronenspektren bei entsprechend hoher Flußdichte eine ähnlich hohe Verlagerungsrate wie in DEMO erreicht werden kann, ist die zugehörige *ddf*-Rate deutlich kleiner.

Neben der Bewertung unterschiedlicher Bestrahlungsbedingungen spielen Materialspezifikationen eine weitere bedeutende Rolle. Während substitutionelle Verunreinigungsgehalte bis möglicherweise wenige at% nur einen sehr geringen bis vernachlässigbaren Einfluß auf die Verlagerungsschädigung haben, können Gefügemerkmale wenigstens lokal zu differenzierten Schädigungsraten führen. Aus den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Kaskadensimulationen kann geschlossen werden, daß Flächenstörungen der reinen Phasen eine generelle Absenkung der Schädigungsraten bewirken, mithin die intrakaskadische Ausheilung verstärken. Bereits vor sekundärer Punktdefektmigration mit Anlagerung und Ausheilung an Defektzentren (wie zum Beispiel Flächendefekte), ist also schon in der Kollisionskaskade ein defektmindernder Einfluß zu erkennen. In feingranularen, polykristallinen Materialzonen, ebenso wie im Bereich hoher Mikroporosität können so die Schädigungsraten merklich abgesenkt

sein, beschreiben also die dort verminderte Defektausbildung besser als ein universaler  $dpa$ -Parameter nach Art des NRT-Modells.

Da die Gittersymmetrie ein bedeutender Faktor in diesen Schädigungsbetrachtungen darstellt, können thermische Schwingungen der Gitteratome bei erhöhten Temperaturen und die thermische Gitterexpansion zu wesentlich anderen Resultaten Anlaß geben. Gerade in hochsymmetrischen Kristallen, z.B. dem hexagonalen Beryllium, können bereits bei Zimmertemperatur deutliche Defekteinbußen erwartet werden. Außerdem verringert sich der Ausheilungseffekt an Gitterstörungen, wie Korngrenzen und Poren. Andererseits bewirkt die Dichtereduzierung durch thermische Expansion des Kristalls bei steigender Temperatur wieder eine leichte Erhöhung der Schädigungsraten.

In Festkörpern geringerer Kristallsymmetrie, wie im monoklinen  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ , spielt die Umgebungstemperatur eine vergleichsweise unbedeutende Rolle. Hier kann sogar im Gegenteil durch Dichtereduzierung des Materials und günstigere Energieverteilung innerhalb der Kollisionskaskade die Defektrate ansteigen. Die charakteristische Besonderheit des  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ -Gitters, nämlich partiell besetzte Li-Gitterplätze, ist ausschlaggebend für eine deutliche Abnahme von Li-Defekten, da vermehrte Annihilationen im Li-Subgitter möglich sind.

Fremdphasen müssen in einer genauen Analyse ebenfalls berücksichtigt werden. Zum einen kann dort wesentlich veränderte Defektausbildung stattfinden, zum anderen gibt es entlang der Phasengrenze eine dünne Zone, deren Schädigungsrate geprägt ist von der Nachbarschaft der Fremdphase. Im in dieser Arbeit untersuchten System  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ - $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  können offenbar solche Effekte bei einer feinen intragranularen Ausscheidung von Metasilikat durchaus beträchtlich sein. Wegen der stark energieabhängigen Differenz der Verlagerungsquerschnitte der beiden Phasen erhält man dabei je nach Bestrahlung ein anderes Verhältnis beider Schädigungsraten: für langsame Neutronen eine Absenkung, für schnelle eine Erhöhung im Metasilikat.

## 7 ZUSAMMENFASSUNG

Die hochenergetische und intensive Neutronenbelastung in plasmanahen Komponenten eines (d,t)-Fusionsreaktors stellt eine große Herausforderung für die Funktionalität und Integrität der verwendeten Materialien dar. Zur Beschreibung und Quantifizierung der Strahlenbelastung eignen sich die Schädigungsparameter im Rahmen des *dpa*-Konzepts. Sie kombinieren die Wahrscheinlichkeit für die Produktion eines primären Rückstoßkerns (PKA) in einer neutroneninduzierten Kernreaktion mit der Anzahl der in der sich anschließenden Kaskade von Gitteratomverlagerungen erzeugten stabilen Defekte. Üblicherweise werden solche Parameter und Schädigungsraten mit dem etablierten NRT-Lindhard-Modell berechnet.

Ziel dieser Arbeit war es, für leichtatomige, mono- und polyatomare Materialien im Blanket eines (d,t)-Fusionsreaktors, insbesondere Beryllium und Lithiumorthosilikat  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ , verlässliche Schädigungsparameter zu berechnen. Auf der Basis des *dpa*-Konzepts ist dazu eine genaue Beschreibung des primären Defektzustands von Kollisionskaskaden notwendig. Diese Beschreibung kann aber nicht über das NRT-Modell gewonnen werden, da dieses wegen Einschränkungen der fundamentalen Energiepartitions-Theorie nach Lindhard und modellbedingter Unzulänglichkeiten streng nur für mittelschwere Eigenionen mit vergleichsweise geringen Energien in monoatomaren, amorphen Festkörpern gültig ist. Die Simulation von Kollisionskaskaden auf der Basis der binären Stoßapproximation (BCA), wie sie im MARLOWE-Code zur Verfügung steht, wurde als Methode ausgewählt, um den skizzierten Anforderungen gerecht zu werden, da sie eine flexible Anpassung der benötigten Wechselwirkungen, hohe Modellierungsfähigkeit von Materialeigenschaften, schnelle Kaskadensimulationen in statistisch ausreichender Zahl und eine logische und natürliche Erweiterung des NRT-Modells gestattet. Die in solchen Simulationen bestimmten Schädigungsfunktionen stellen dann die dominierenden Eingabeparameter zur Berechnung von Schädigungsraten für Gitterdefekte (*dpa*) und Gitterfehlordnungen (*ddf*) dar.

MARLOWE selbst mußte umfassend modifiziert und erweitert werden. Dazu gehörte 1.) die Implementierung der zugrundeliegenden Physik für Projektil-Target-Wechselwirkungen bei hohen Primärenergien. Insbesondere wurden unabgeschirmte Coulomb-Potentiale neu in das BCA-Konzept eingeführt mit weitreichenden Konsequenzen im Targetmodell und letztlich der Behandlung binärer Stöße. Weiterhin wurden 2.) lateral begrenzte Layer in das Kristallmodell von MARLOWE aufgenommen, die als ein wichtiger Beitrag zur Untersuchung inhomogener Strukturen angesehen werden können. Insgesamt waren zusätzliche Korrekturen im Kristallmodell nötig, die zu einer signifikanten Verbesserung der Präzision in der Kristallpropagation führten. Im Kernbereich der Simulation wurde 3.) das inelastische BCA-Kollisionsmodell eingeführt und auf die Einbindung attraktiver Potentiale erweitert, sowie ein neues Schema für die Behandlung quasisimultaner Stöße aufgestellt. Dieses war durch die Implementierung von ionischen Potentialen, aber auch allgemein zur genaueren Beschreibung von niederenergetischen Kollisionen, nötig geworden. Schließlich wurden 4.) Routinen zur



Defektidentifizierung und -charakterisierung für die Beurteilung von räumlichen Korrelationen und potentiellen Defektagglomeraten zusammengestellt.

Mit dem modifizierten MARLOWE-Code wurden zunächst umfangreiche Kaskadensimulationen in Be und  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  durchgeführt, um in Parameteranalysen den Einfluß des in dieser Arbeit entwickelten Modells, sowie unterschiedlicher Simulationsparameter zu testen. Mit Referenzdaten für die untersuchten Materialien und einer Zusammenstellung geeignet gewählter Parameter konnten dann Schädigungsdaten, nämlich Schädigungsenergie, Anzahl von Defekten und Fehlern, für reine, homogene Materialien mit statischem Kristallgitter bestimmt werden. Zusätzlich wurden solche auch für blankettypische Temperaturen, mit Verunreinigungen und für die bei überstöchiometrischem  $\text{SiO}_2$ -Gehalt vorliegende Metasilikatphase abgeleitet werden. Neben der Auswertung schädigungsrelevanter Kaskadenresultate war es auch möglich, detaillierte Einsicht in die Kaskadenentwicklung und in die Ausbildung von Defekten zu gewinnen. Schließlich wurden auch ausgewählte Kombinationen von lokalen Inhomogenitäten simuliert, sowohl Korngrenzen als auch Hohlräume, Gasblasen und Phasengrenzen.

Mit den Ergebnissen dieser Kaskadensimulationen, und im Falle der lokal inhomogenen Gefüge durch geeignete Extrapolationen, konnten dann Schädigungsrechnungen durchgeführt werden. Dazu wurden alle neutroneninduzierten Reaktionen, die bis 14 MeV einen Beitrag zur Verlagerungsschädigung leisten können, berücksichtigt, wobei insbesondere auch leichte PKA's wie  $\text{He}^4$  und Tritium beitragen. Neben der *dpa*-Rate wurde in den Lithiumsilikaten auch die *ddf*-Rate berechnet.

Die wesentlichen Ergebnisse dieser Arbeit lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- Die Erweiterungen zur adäquaten Behandlung von hochenergetischen Kollisionskaskaden wurden erfolgreich in MARLOWE implementiert. Die speziellen Anforderungen teilweise abgeschirmter Coulombpotentiale, nämlich unendliche Reichweite und attraktive Wechselwirkung, konnten in die BCA mit überschaubaren Simulationszeiten integriert werden. Die Kristall- bzw. Targetmodellierung wurde entscheidend erweitert durch die Einführung lateral begrenzter Layer, die lokale inhomogene Strukturen einer BCA-Simulation zugänglich machen können. Somit ist der Code in der nun vorliegenden Fassung geeignet, Kollisionskaskaden auch in anderen leichten Materialien und heterogenen Gefügen realistisch zu simulieren.
- Das neue MARLOWE-Modell wurde auf fusionsrelevante Simulationen in Beryllium und  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  angewendet. Dabei konnten qualitative wie quantitative Differenzen zur NRT-Lindhard-Theorie beobachtet und deren Ursachen identifiziert werden. Insbesondere ist das Schädigungsverhalten (Gitterdefekte als auch Gitterfehlern) nicht nur eine Funktion der Schädigungsenergie, sondern hängt in charakteristischer Weise vom Typ und der Energie des jeweiligen PKA's ab. Materialeigenschaften, vor allem atomare Bindungen und kristalline Struktur, spielen eine beherrschende Rolle, insbesondere für das hoch-

symmetrische hcp-Gitter des Be. Je stärker die Gittersymmetrie gestört ist, z.B. durch thermische Gitterschwingungen, um so besser wird zumindest qualitativ das NRT-Verhalten reproduziert.

In den polyatomaren Lithiumsilikaten sorgt das Coulomb-Potential für eine markante Verschiebung des Defektspektrums zu O-Defekten. Zusätzlich können Gitterfehlordnungen einen hohen relativen Beitrag liefern und zum Aufbruch der Silikattetraeder führen. Neben der atomaren Zusammensetzung muß vorrangig auf die kristalline Struktur bzw. die Ausbildung von Gleichgewichtsphasen wie im System  $\text{Li}_4\text{SiO}_4 + \text{SiO}_2$  geachtet werden. Lokal inhomogene Strukturen führen in beiden Materialien (Be und  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ ) generell zu einer abstandsabhängigen Reduzierung der Defektausbeute, eventuell überlagert durch Channeling-bedingte Oszillationen.

- Aus den Schädigungsfunktionen der BCA-Simulationen und den PKA-Spektren der für die Verlagerungsschädigung relevanten Reaktionen wurden die Parameter des *dpa*-Konzepts berechnet. Allgemein erhält man deutlich erhöhte Schädigungsenergiequerschnitte, die zugehörigen Verlagerungsquerschnitte sind jedoch in charakteristischer Weise abhängig von PKA-Typ und -Energie. In polyatomaren Materialien wurde zusätzlich zur totalen *dpa*-Rate die Aufteilung in Defektspezies und ebenso die *ddf*-Rate bestimmt, da sowohl nichtstöchiometrische Zwischengitteratome als auch Gitterfehlordnungen einen massiven Einfluß auf die Materialveränderungen im primären Defektzustand haben. Für die höchste Neutronenbelastung in einem DEMO-Reaktor, auf Höhe der Torusmittelebene im äußeren Blanketsegment, wurden folgende Schädigungsraten in dem hier erarbeiteten Modell (bei blankettyptischen Temperaturen) berechnet: in Be 21,4 *dpa/a*, in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  20,6 *dpa/a* (35 % Li, 57 % O, 8 % Si) und 7,1 *ddf/a* (43 % Li, 44 % O, 13 % Si), in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  23,2 *dpa/a* (44 % Li, 49 % O, 7 % Si) und 7,4 *ddf/a* (35 % Li, 50 % O, 15 % Si).

Die Ergebnisse aus dieser Arbeit lassen den Schluß zu, daß *dpa*-Parameter auf Basis des hier entwickelten Modells berechnet werden können, die eine verlässlichere Beschreibung der Verlagerungsschädigung als Maß für die primäre Schädigung eines Festkörpers unter Bestrahlung liefern können. Jedoch sollte zur Beurteilung von Bestrahlungsexperimenten im Hinblick auf die Vergleichbarkeit mit (d,t)-Fusionsneutronen nicht nur die totalen *dpa*-Raten oder akkumulierten *dpa*-Werte betrachtet werden. Zusätzlich zur *dpa*-Rate wird in polyatomaren Materialien auch die *ddf*-Rate als ein wichtiger Bestrahlungsparameter vorgeschlagen, da beide Schädigungsraten zusammen erst genauere Aussagen über Gitterschäden ermöglichen. Ebenso ist es wegen der Diversität der in Erscheinung tretenden PKA's nicht ausreichend, nur die über alle PKA's integrierten Parameter zu vergleichen (z.B. die  $W(T)$ -Funktion). Erstes Prinzip muß es sein, die zugrundeliegenden PKA-Spektren in Bezug auf Zusammensetzung und Energieverteilung zu begutachten. Deren jeweilige Kollisionskaskaden führen zu unterschiedlichen Defektmorphologien, Schädigungsvolumina und Fehlord-

nungsquoten. In besonderem Maße betrifft dies die Bewertung von Li-Keramiken mit unterschiedlichen Li<sup>6</sup>-Anreicherungen, mit der man bei Bestrahlungen in thermischen Spektren die *dpa*-Rate über Helium- und Tritium PKA's nominell steuern kann. Andererseits sorgt das Sättigungsverhalten der hier untersuchten leichten PKA's bei hohen Energien (einige hundert keV/amu) dafür, daß in diesem Bereich die Energieverteilung der PKA's und demzufolge auch die Energien der Neutronen eine vergleichsweise kleine Rolle spielen; das Ausmaß der Verlagerungsschädigung bestimmen dann in erster Linie die integrierten partiellen Neutronenwirkungsquerschnitte.

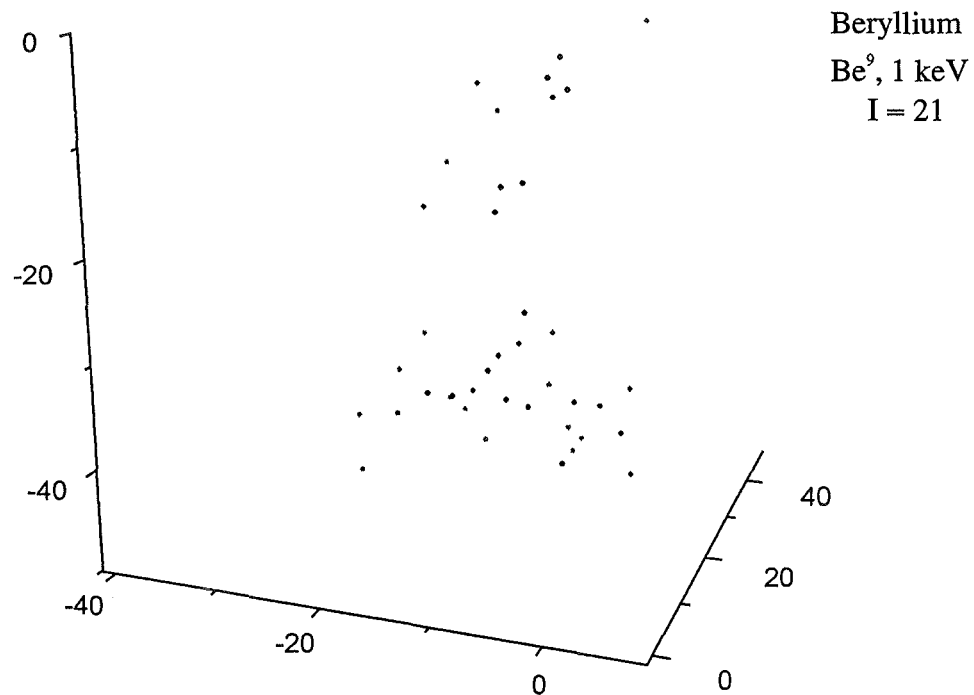
Neben dem kritischen Vergleich von PKA-Beiträgen in unterschiedlichen Bestrahlungsbedingungen können auch, wie diese Arbeit gezeigt hat, Materialspezifikationen bereits für die *dpa*-Schädigung bedeutsam sein. Während substitutionelle Verunreinigungsgehalte noch wenig Einfluß haben, außer eventuell schwere Ionen bei einigen Atomprozent (z.B. Te in Li<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub>), müssen vorrangig Phasensegregationen, stöchiometrische Verschiebungen und Kristallmodifikationen genau bekannt sein, um fundierte *dpa*-Vergleiche vornehmen zu können. Zudem konnte gezeigt werden, daß ausgedehnte Flächenstörungen reiner Phasen (Korngrenzen), Volumendefekte wie Hohlräume und Gasblasen und ebenso Kontaktzonen zweier unterschiedlicher Phasen lokal zu einer leichten Modifizierung der *dpa*-Rate führen können.

Das vorliegende BCA-Modell in MARLOWE kann, wie bereits erwähnt, auch für andere leichte polyatomare Materialien in Fusionsumgebungen angewendet werden. Dazu wird lediglich eine möglichst umfassende Datenbasis wichtiger Materialeigenschaften (vor allem der Kristallstruktur) benötigt. Die BCA-Modellierung ist so flexibel, daß Erweiterungen sich prinzipiell recht einfach einbauen lassen. So scheint auch eine Untersuchung von interkaskadischen Phänomenen, wie Kaskadenüberlapp oder Kaskaden in bereits geschädigten Materialzonen, durchaus auch im Rahmen der BCA durchführbar zu sein. Darüber hinaus können BCA-Simulationen hoher Präzision wertvolle Informationen und Eingabeparameter für weitergehende Computersimulationen der anschließenden Defektentwicklung liefern.

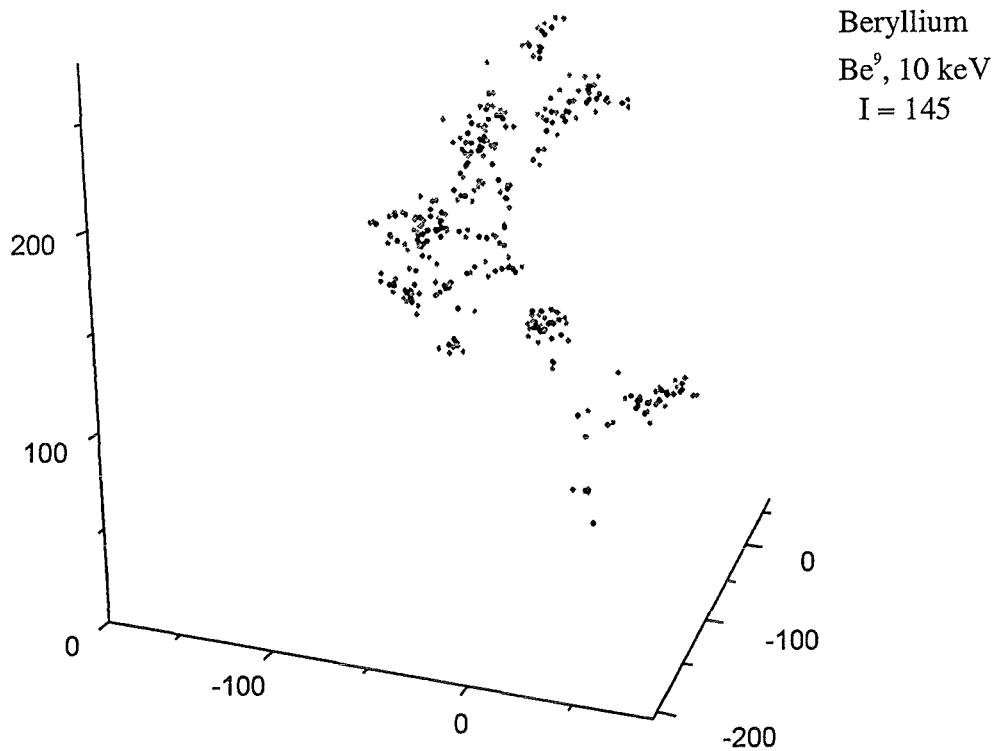
## 8 ANHANG: Typische Kaskadenstrukturen

In diesem Anhang werden einige ausgewählte, typische Kaskadenstrukturen aus den Marlowe-Simulationen vorgestellt. Die Positionen von Zwischengitterdefekten (helle Punkte) und Gitterleerstellen (dunkle Punkte) bzw. Gitterfehlbesetzungen werden dabei in dreidimensionalen, isometrischen Schaubildern eingetragen. Die Dimensionen dieser Kaskadenstrukturen können aus den Achsenbeschriftungen in Ångstrom ( $1 \text{ \AA} = 0,1 \text{ nm}$ ) abgeleitet werden.

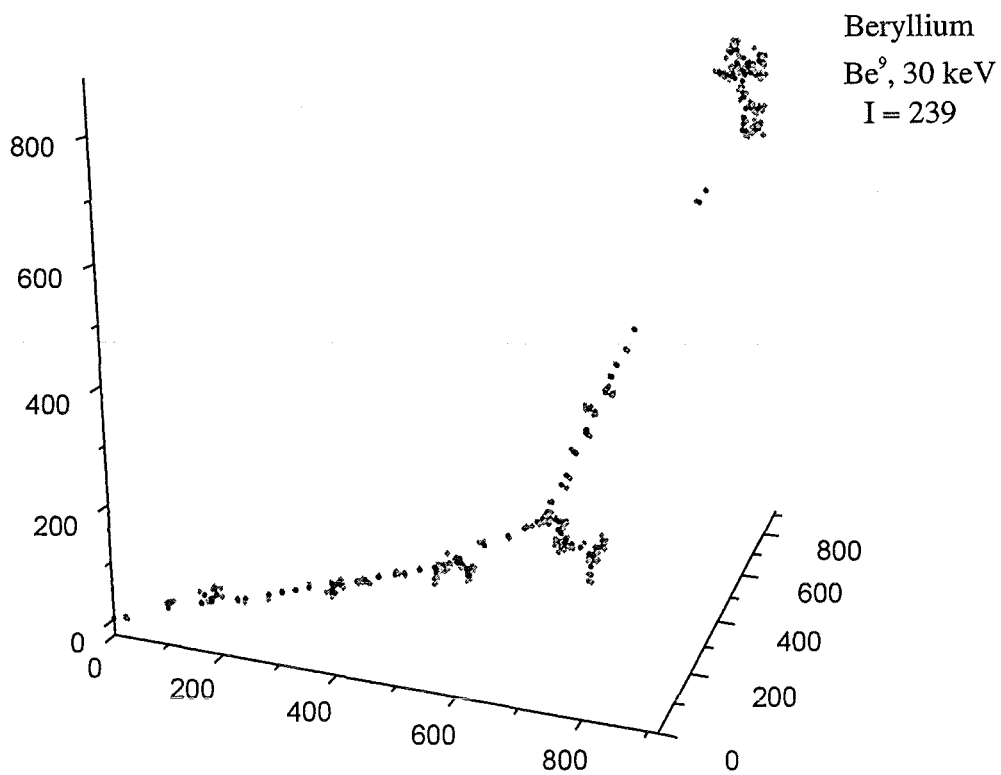
An jeder Kaskadenabbildung ist das Targetmaterial, das primäre Projektil und dessen Energie, sowie die Anzahl der Gitterdefektatome (I), der Gitterleerstellen (V) und der Gitterfehlbesetzungen (D) vermerkt. Während in den Kaskaden bis einschließlich **ABB. 8.24** das PKA jeweils von der Position (0;0;0) startet, variiert die z-Koordinate der Startorte in den übrigen Kaskaden (vgl. die jeweilige Bildunterschrift).



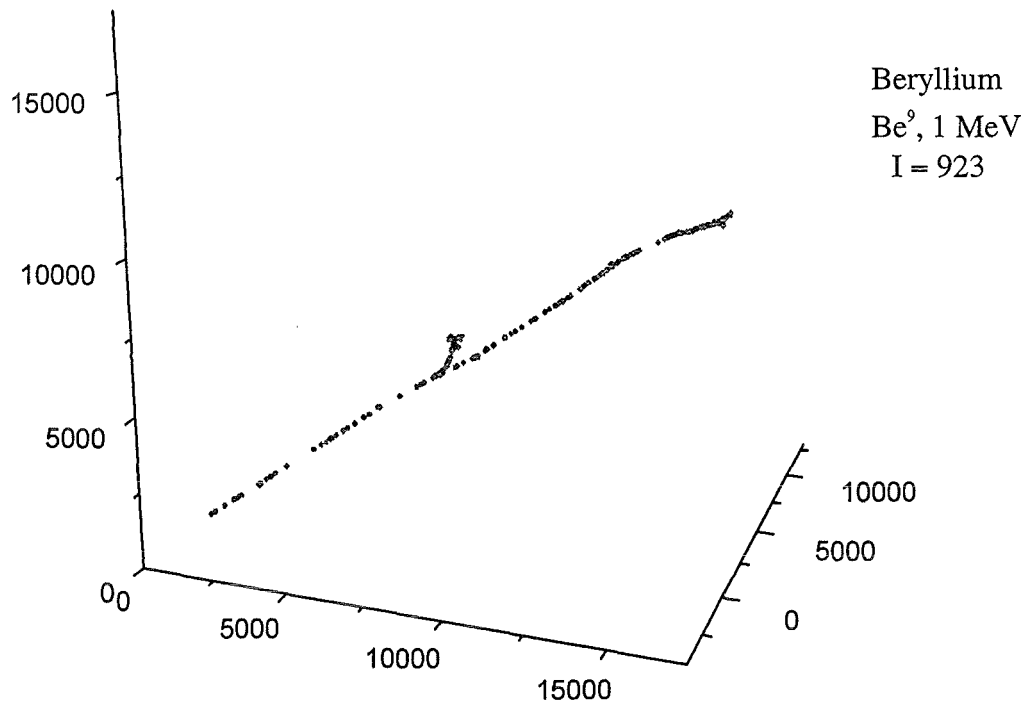
**ABB. 8.1:** 1 keV-Be<sup>+</sup>-Kaskade in Be: Leerstellen entlang der Projektiltrajektorien, Defektatome an der Peripherie.



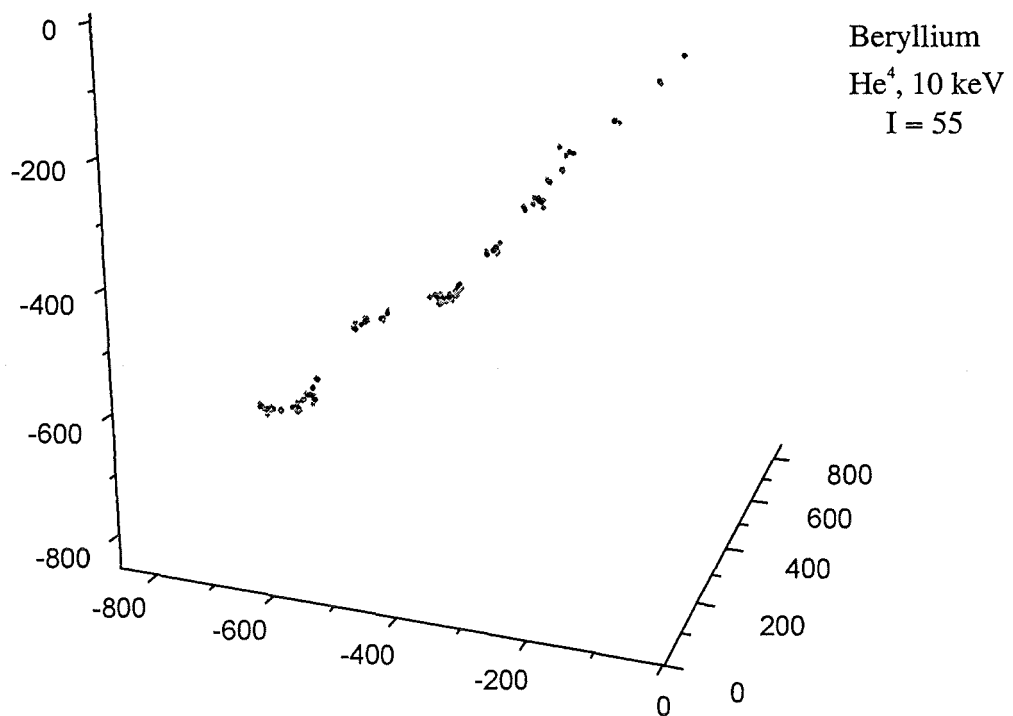
**ABB. 8.2:** 10 keV-Be<sup>9</sup>-Kaskade in Be: Durch hochenergetische Kaskadenatome bilden sich Verästelungen, die bereits eine Subkaskadenstruktur erahnen lassen.



**ABB. 8.3:** 30 keV-Be<sup>9</sup>-Kaskade in Be: Die erhöhte Defektproduktion entlang der PKA-Trajektorie wird durch hochenergetische Be-Atome verursacht. Außerdem kann eine Channelling-Phase identifiziert werden, die schließlich zu einer Defektanhäufung führt.



**ABB. 8.4:** 1 MeV-Be<sup>+</sup>-Kaskade in Be: Langgezogener Kaskadenschlauch, an dessen Beginn zunächst keine Defekte erzeugt werden. Eine Subkaskade (durch 55 keV-Atom) ist klar zu erkennen.



**ABB. 8.5:** 10 keV-He<sup>4+</sup>-Kaskade in Be: Bereits bei kleinen Energien sind jetzt schon lange Kaskadenschläuche zu erwarten.

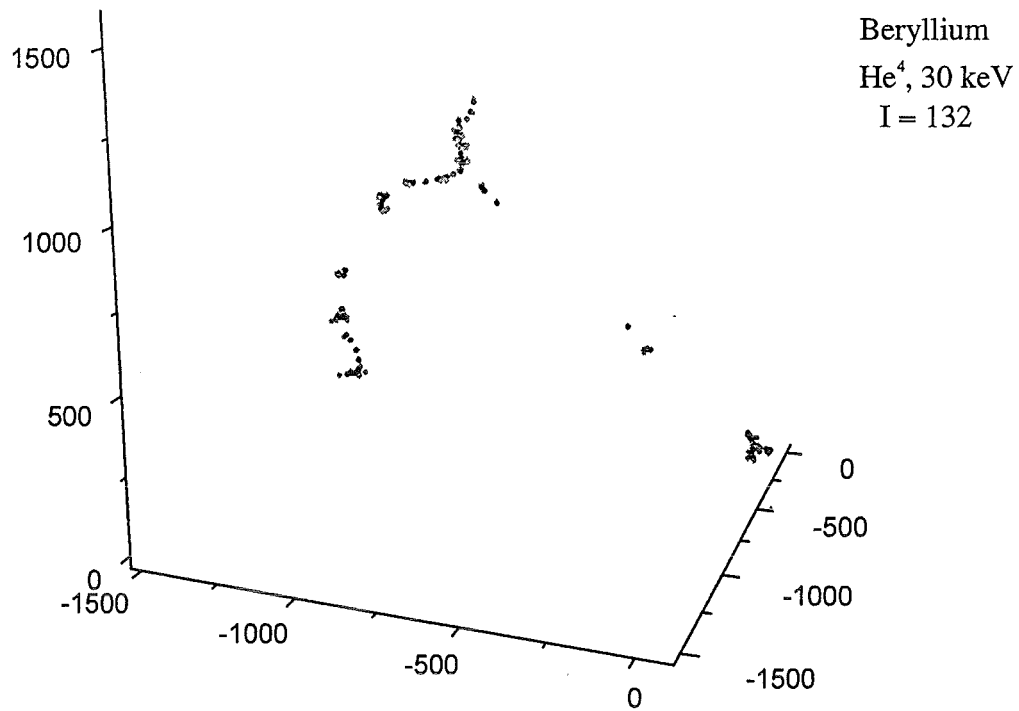


ABB. 8.6: 30 keV-He<sup>4</sup>-Kaskade in Be: Eine Defektanhäufung bereits in der frühen Phase der PKA-Trajektorie durch ein Be-Atom mit 1,6 keV. Ein zweites Atom mit 2,9 keV verursacht die Verzweigung in zwei Äste.

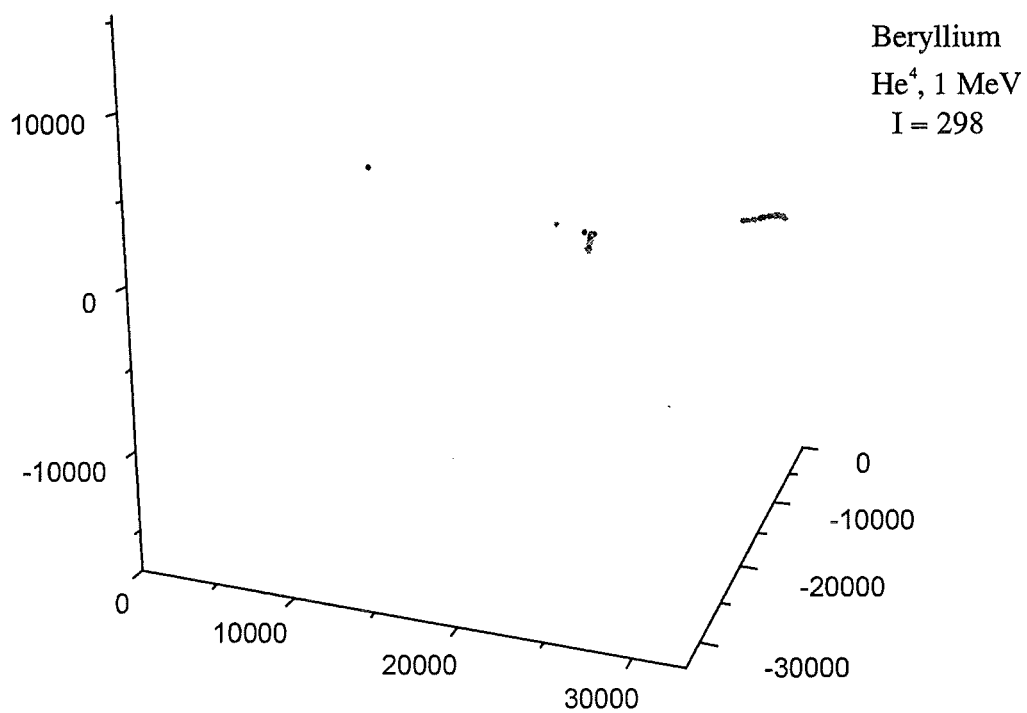
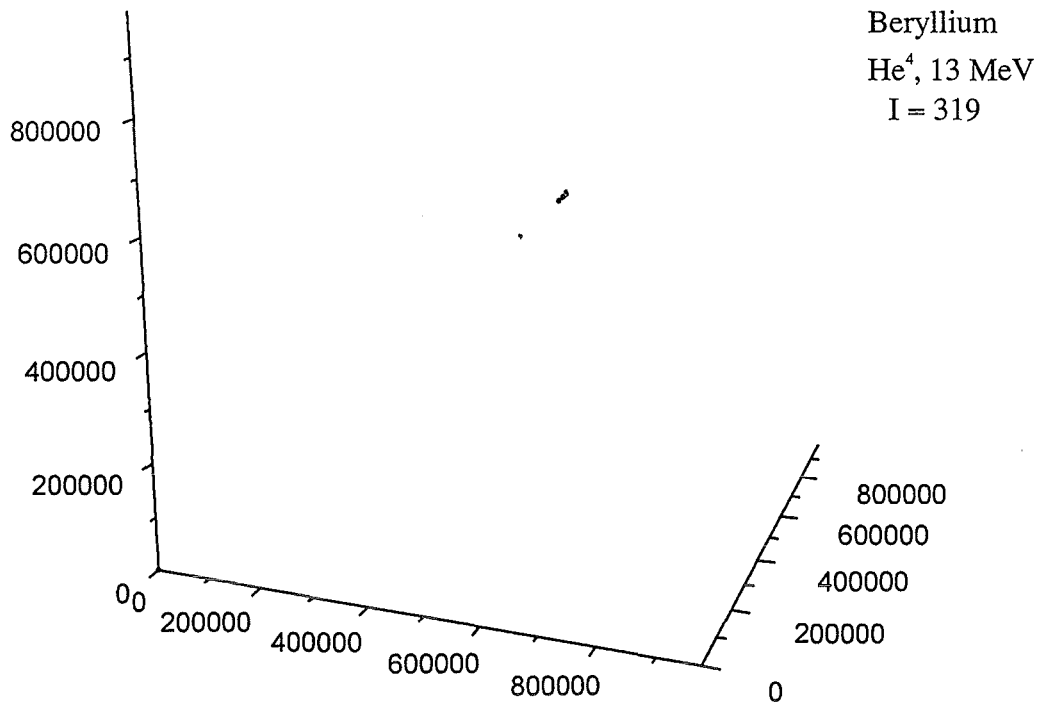
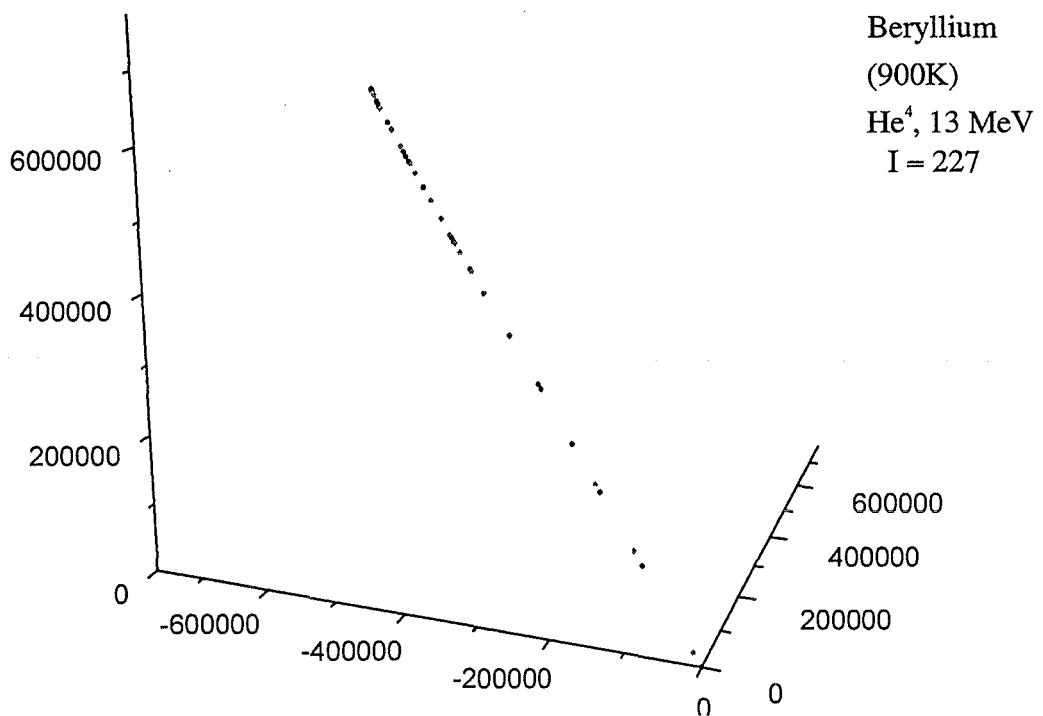


ABB. 8.7: 1 MeV-He<sup>4</sup>-Kaskade in Be: Starkes Channelling führt zu weit separierten Defektanhäufungen.

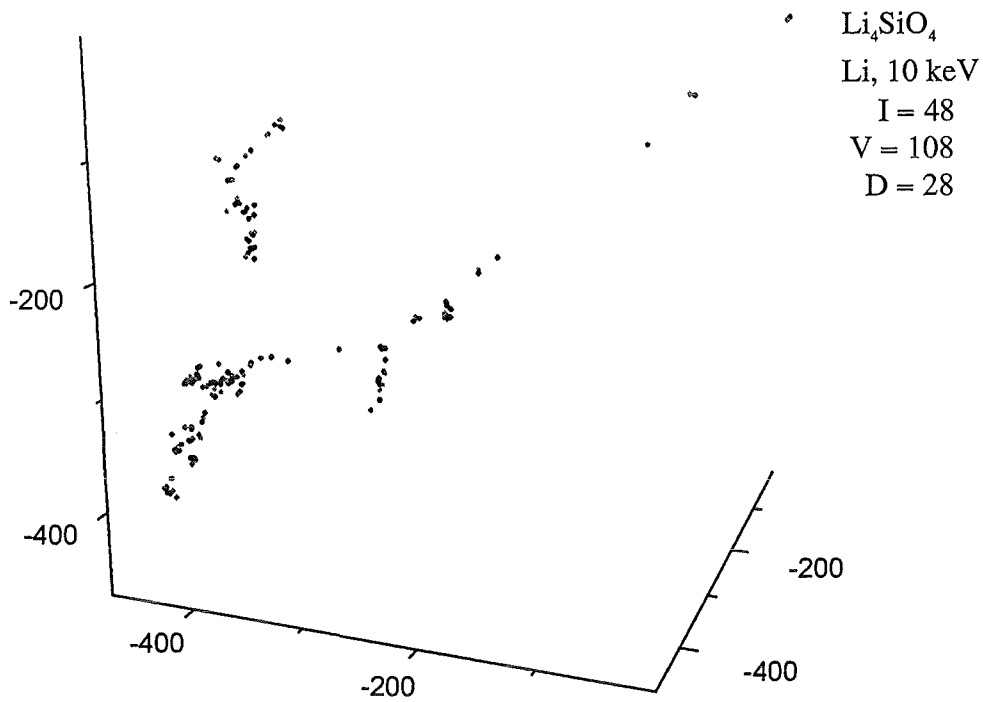


**ABB. 8.8:** 13 MeV-He<sup>4</sup>-Kaskade in Be: Extremes Channelling sorgt für eine Defekterzeugung, die ca. 100  $\mu\text{m}$  von dem PKA-Startort entfernt ist. Lediglich zwei Be-Atome werden innerhalb der ersten 5 ps verlagert.

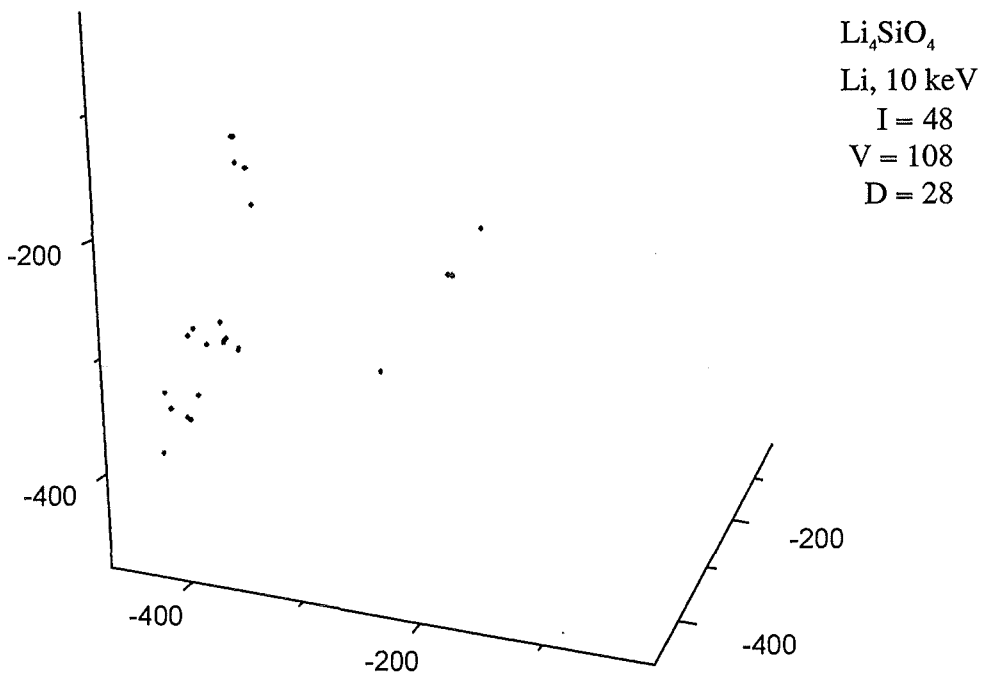


**ABB. 8.9:** 13-MeV-He<sup>4</sup>-Kaskade in Be (900 K): Gegenüber dem statischen Kristall ist das Channelling stark unterdrückt, so daß entlang der Trajektorie kontinuierlich Verlagerungen von Be-Gitteratomen auftauchen.





**ABB. 8.10:** 10 keV-Li-Kaskade in Li<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub>; Position von Leerstellen und Zwischengitteratomen. Während das PKA nach links oben läuft, erzeugt ein Sauerstoff-Rückstoßatom mit 3 keV die Teilstruktur links unten.



**ABB. 8.11:** 10 keV-Li-Kaskade in Li<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub>; Positionen der zugehörigen Fehlbesetzungen. Diese liegen vorrangig in den dichten Strukturen der Defektproduktion.

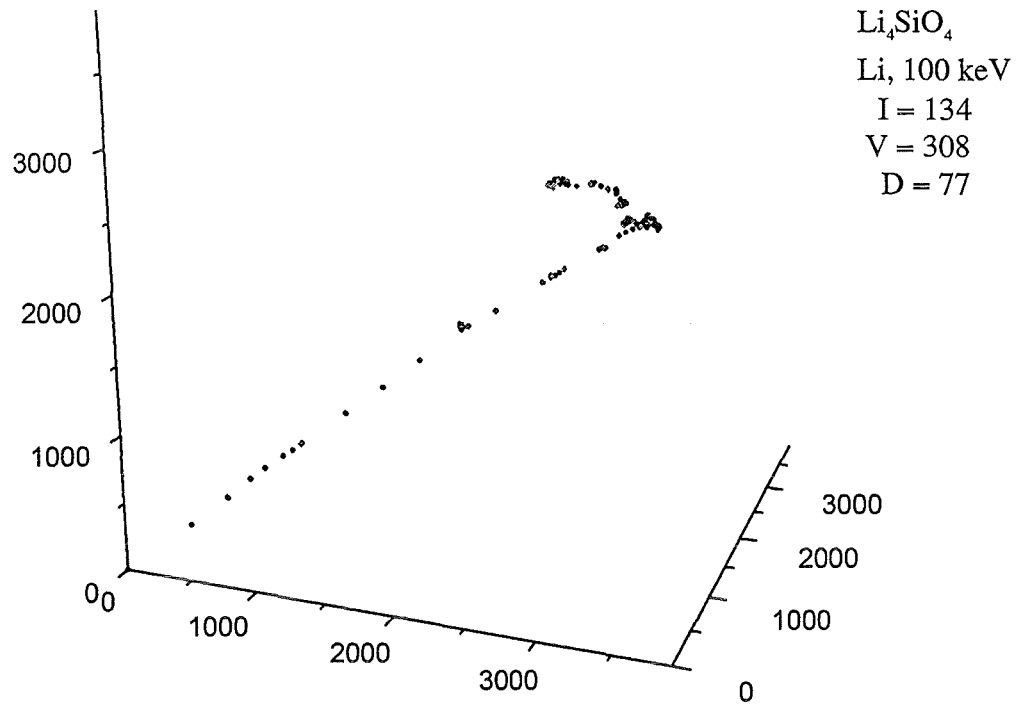


ABB. 8.12: 100 keV-Li-Kaskade in Li<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub>: Eine deutliche Längsstreckung ist zu erkennen.

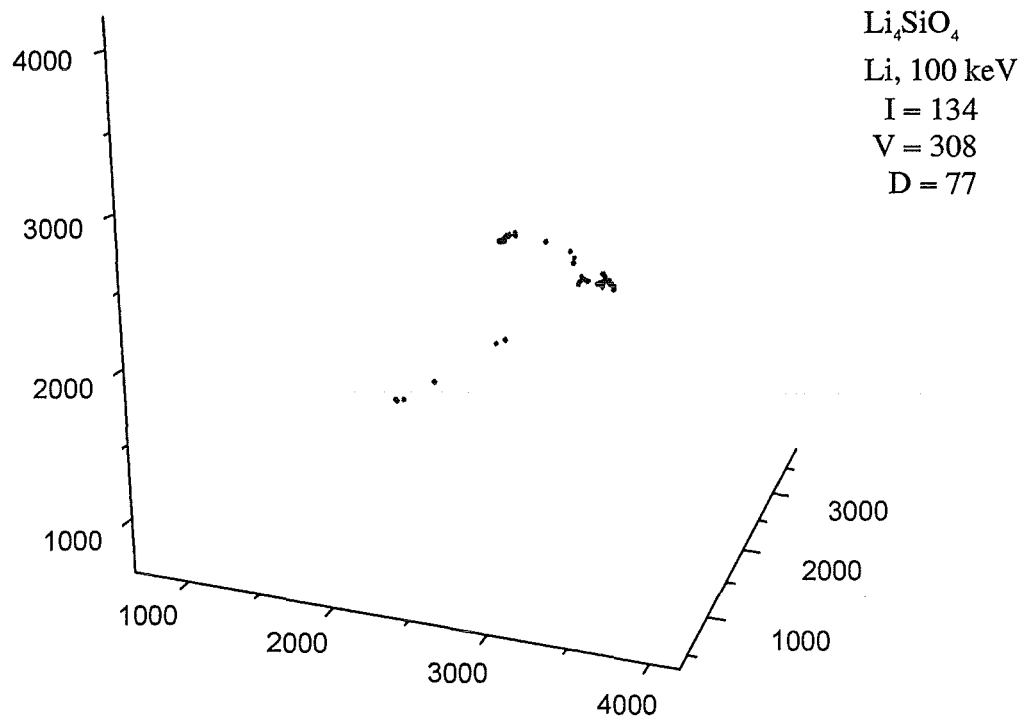


ABB. 8.13: 100 keV-Li-Kaskade in Li<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub>: Zugehörige Fehlbesetzungen zu obiger Kaskade.

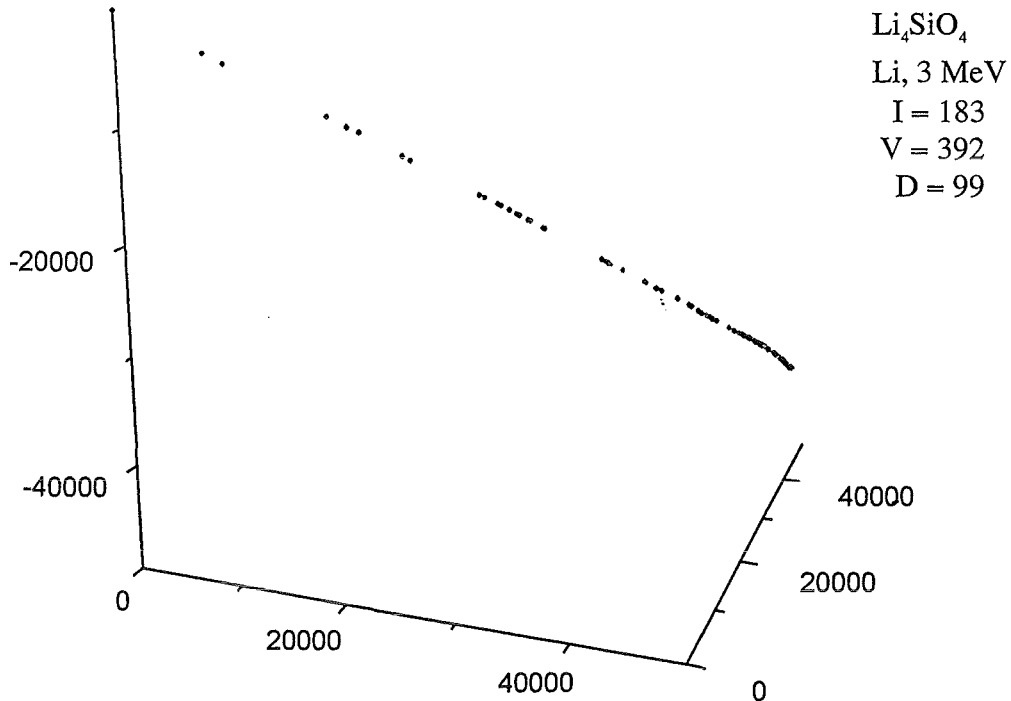


ABB. 8.14: 3 MeV-Li-Kaskade in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ : Langer Kaskadenschlauch mit über weiten Strecken sehr dünner Defekterzeugung.

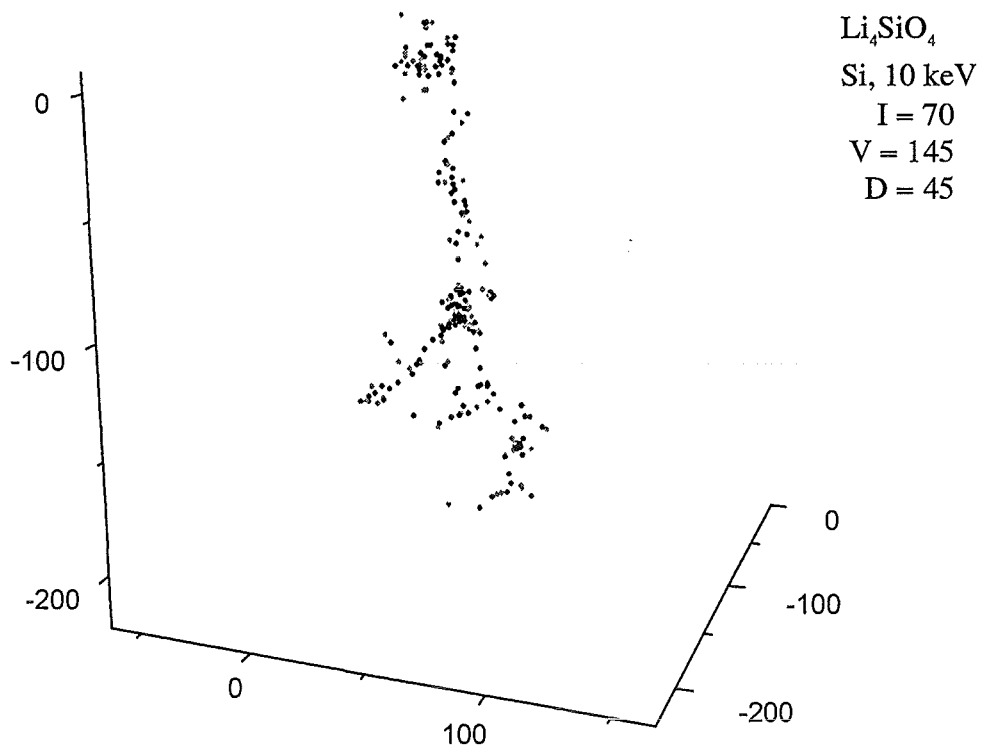
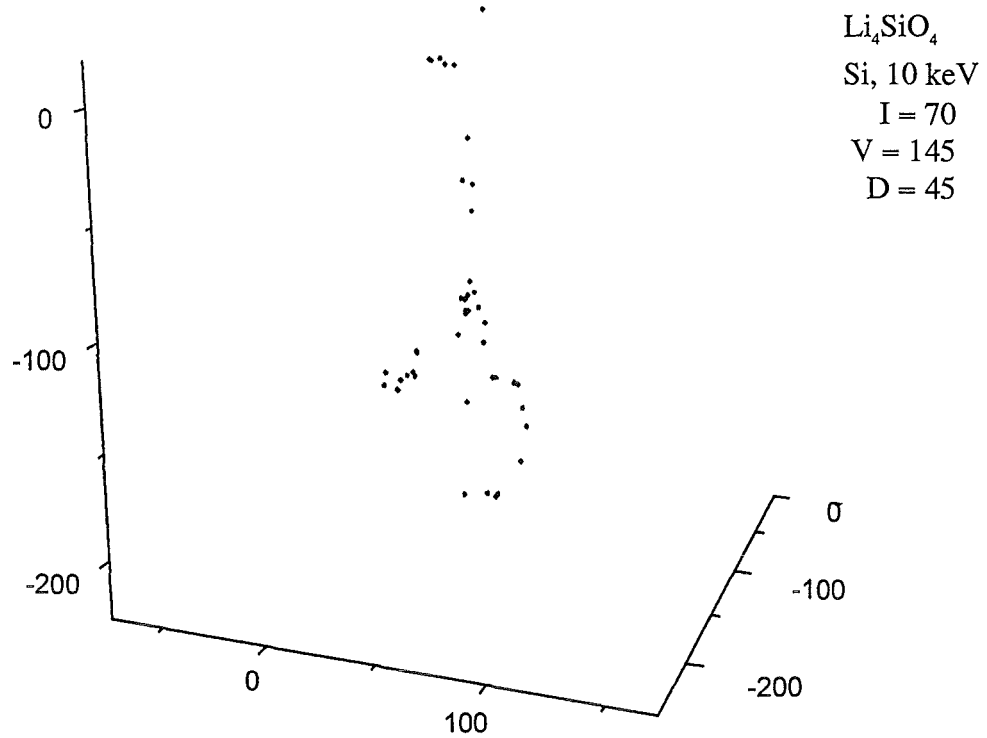
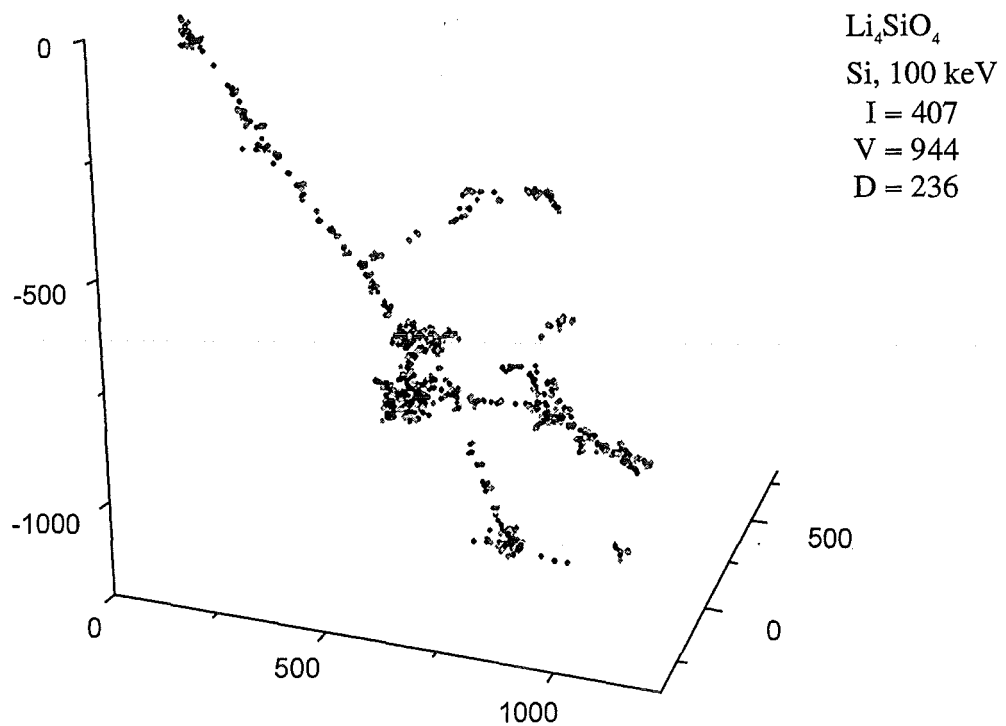


ABB. 8.15: 10 keV-Si-Kaskade in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ : Zwei schnelle Rückstoßatome (630 eV bzw. 680 eV) produzieren bereits kurz nach PKA-Start viele Defekte. Ein weiteres schnelles Sauerstoffatom mit 1,2 keV führt zu einer Verzweigung der Kaskade (in der Mitte des Bildes).



**ABB. 8.16:** 10 keV-Si-Kaskade in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ ; Die Fehlbesetzungen sind wie bei Li-Kaskaden diffus im Kaskadenvolumen verteilt.



**ABB. 8.17:** 100 keV-Si-Kaskade in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ ; Ausgeprägte Verästelungen (Subkaskaden) durch hochenergetische Rückstoßatome (bis zu 43 keV).

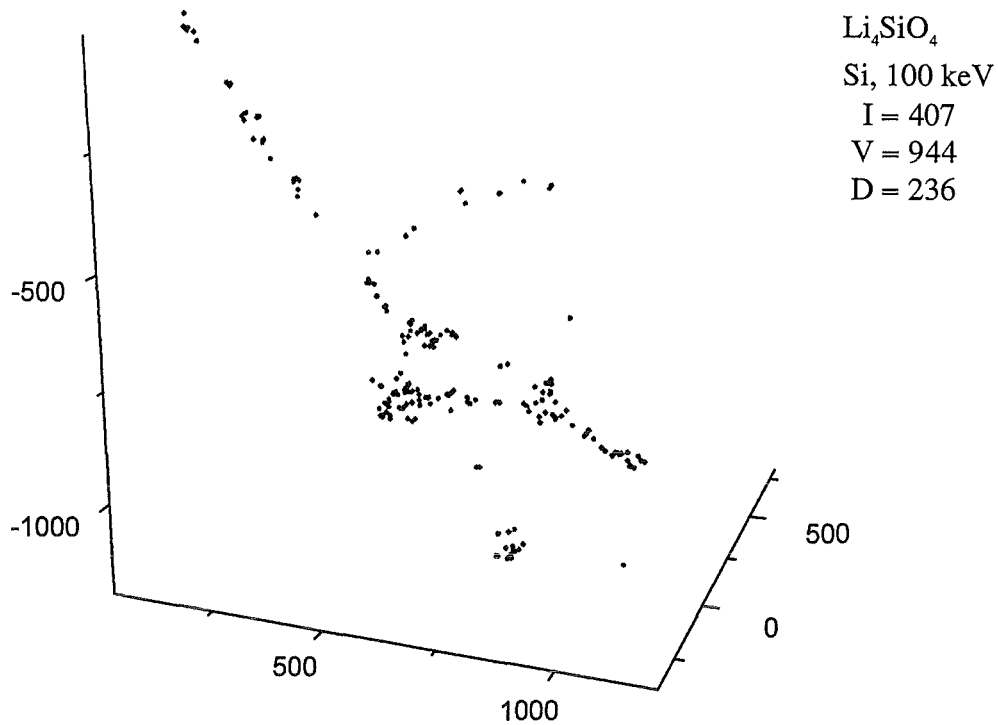


ABB. 8.18: 100 keV-Si-Kaskade in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ ; Zugehörige Fehlbesetzungen.

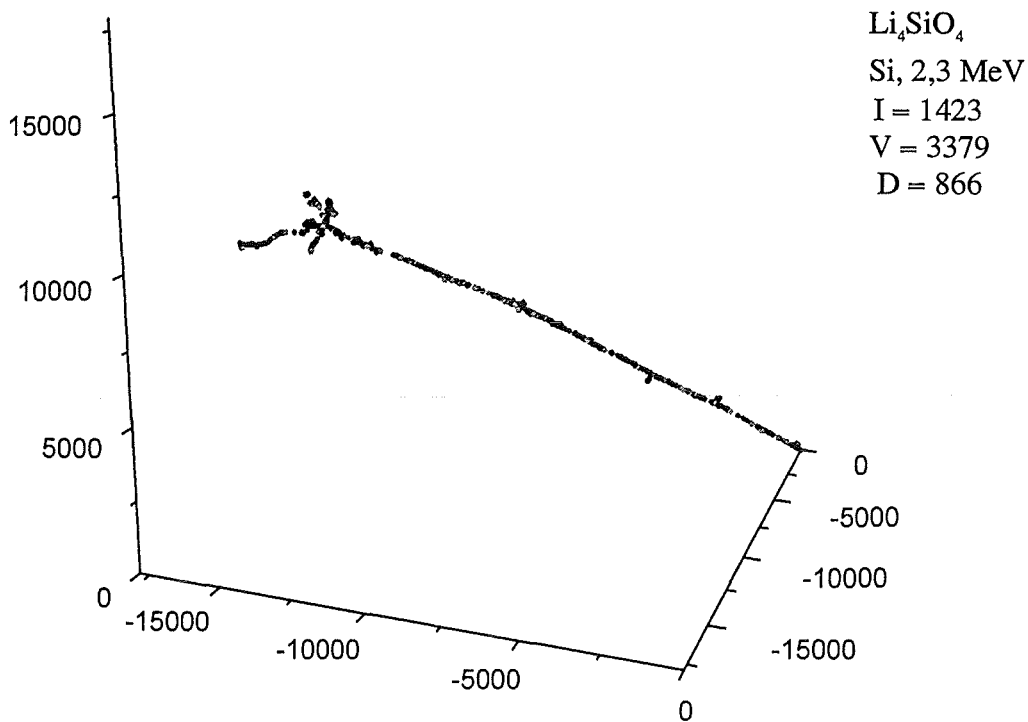
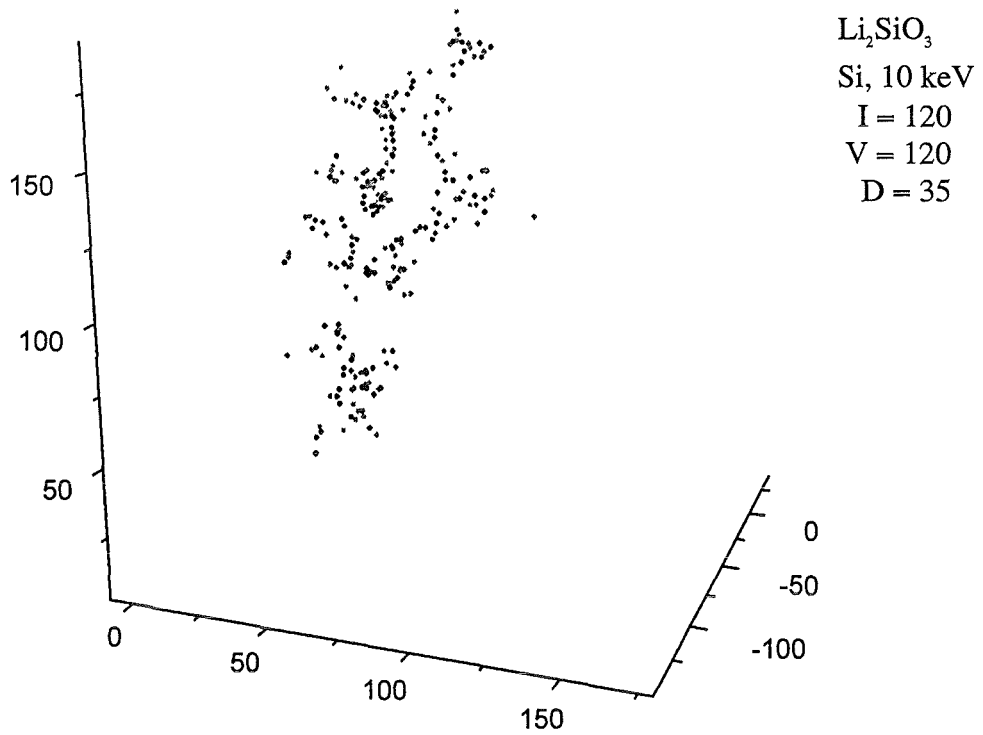
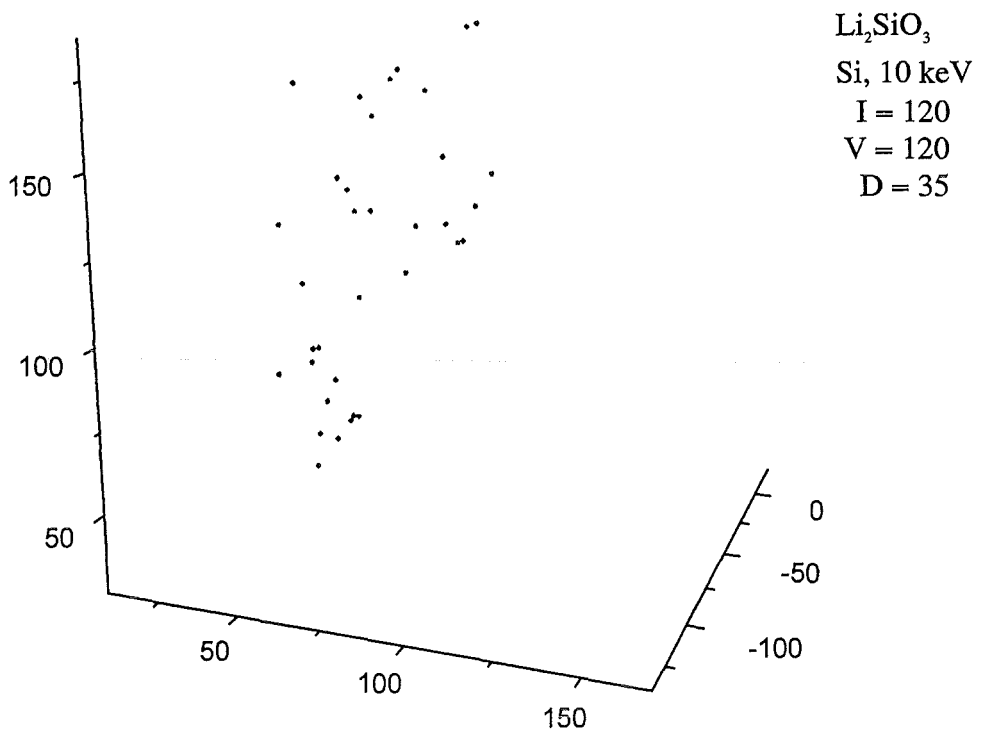


ABB. 8.19: 2,3 MeV-Si-Kaskade in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ ; Langgezogene, aber dennoch dichte Struktur. An Verästelungen am Kaskadenende, sowie einigen Verdickungen entlang des Kaskadenschlauchs, treten hochenergetische Rückstoßkerne auf (bis zu 53 keV).



**ABB. 8.20:** 10 keV-Si-Kaskade in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ ; Im Gegensatz zum Orthosilikat treten keine zusätzlichen Rekombinationen im Li-Subgitter auf.



**ABB. 8.21:** 10 keV-Si-Kaskade in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ ; Zugehörige Fehlbesetzungen.

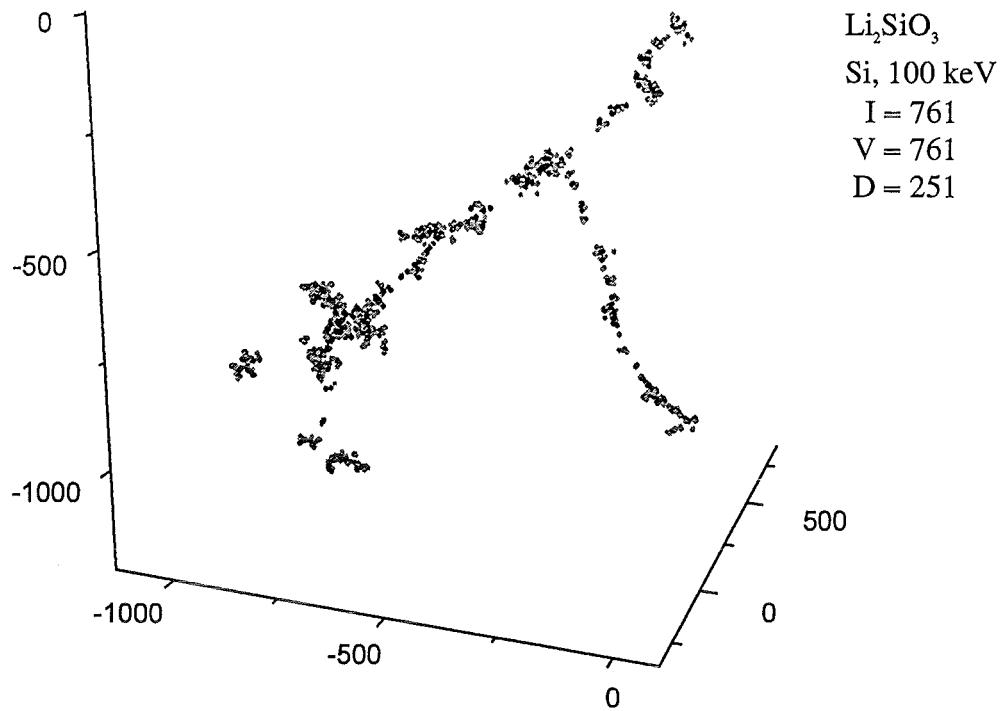


ABB. 8.22: 100 keV-Si-Kaskade in Li<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>; Deutliche Subkaskadenstruktur mit konzentrierten Defektanhäufungen. Der Abzweig nach rechts unten wird durch ein Sauerstoffatom mit 14 keV verursacht.

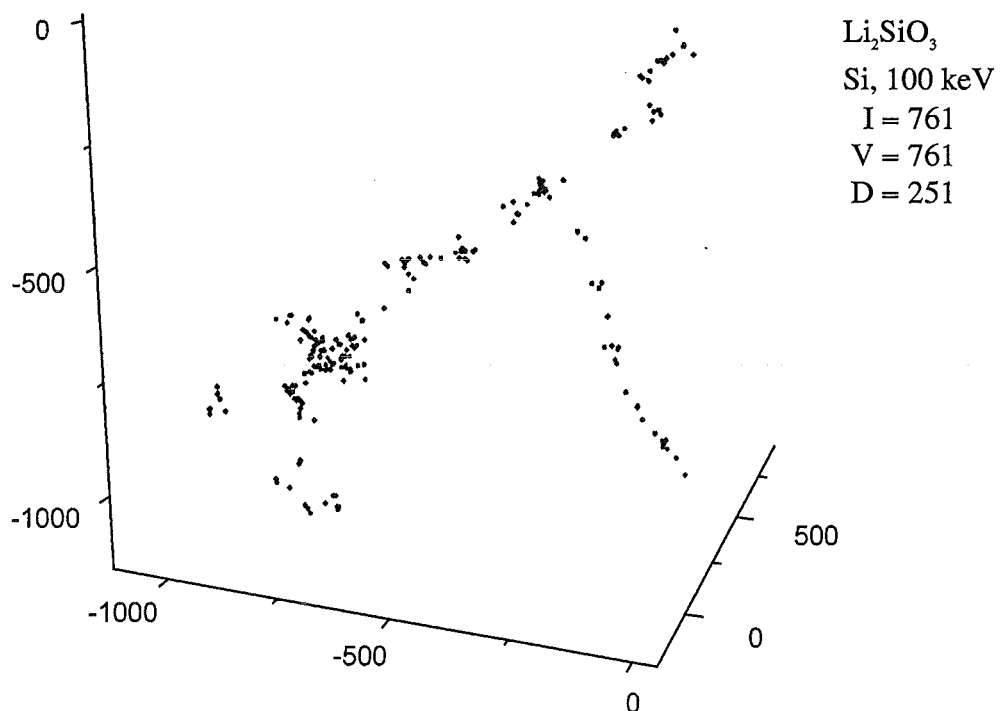
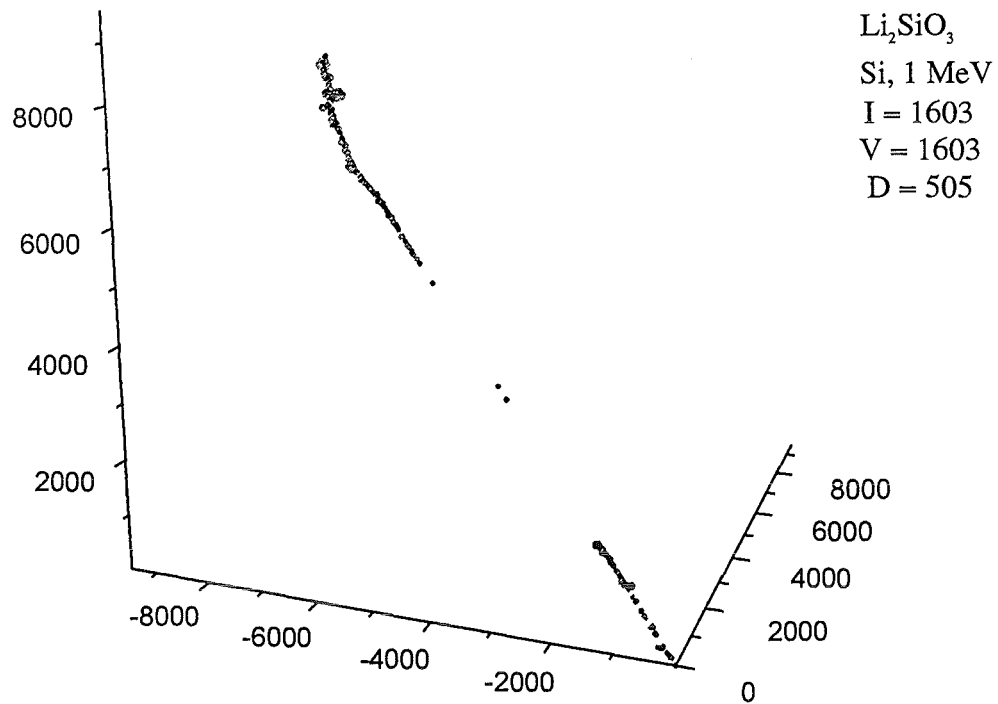
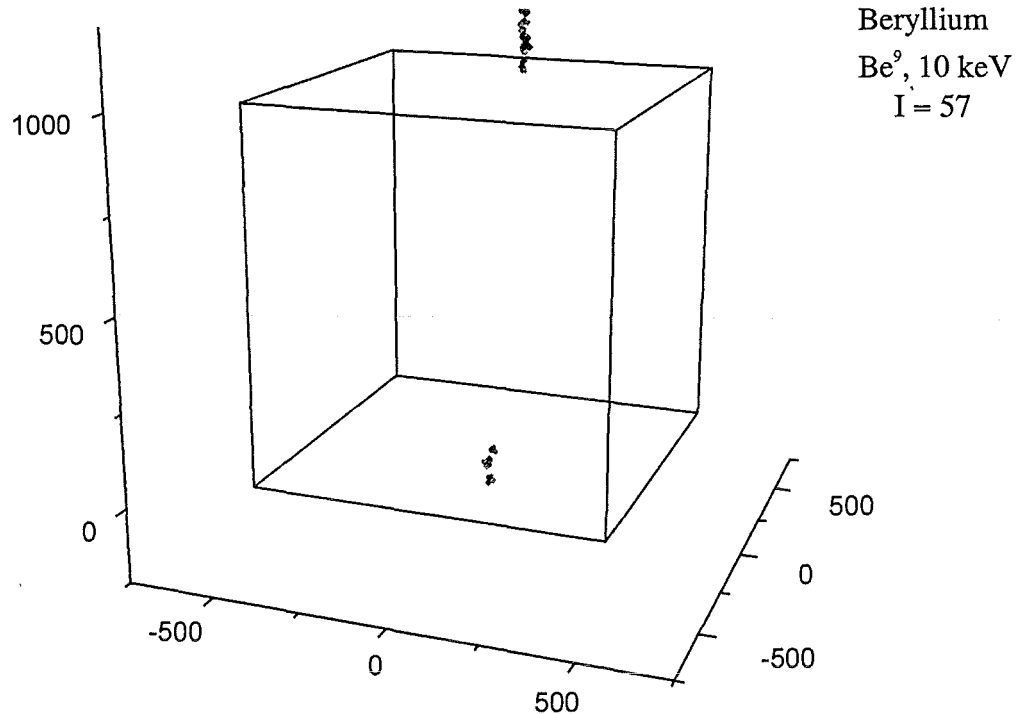


ABB. 8.23: 100 keV-Si-Kaskade in Li<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>; Zugehörige Fehlbesetzungen

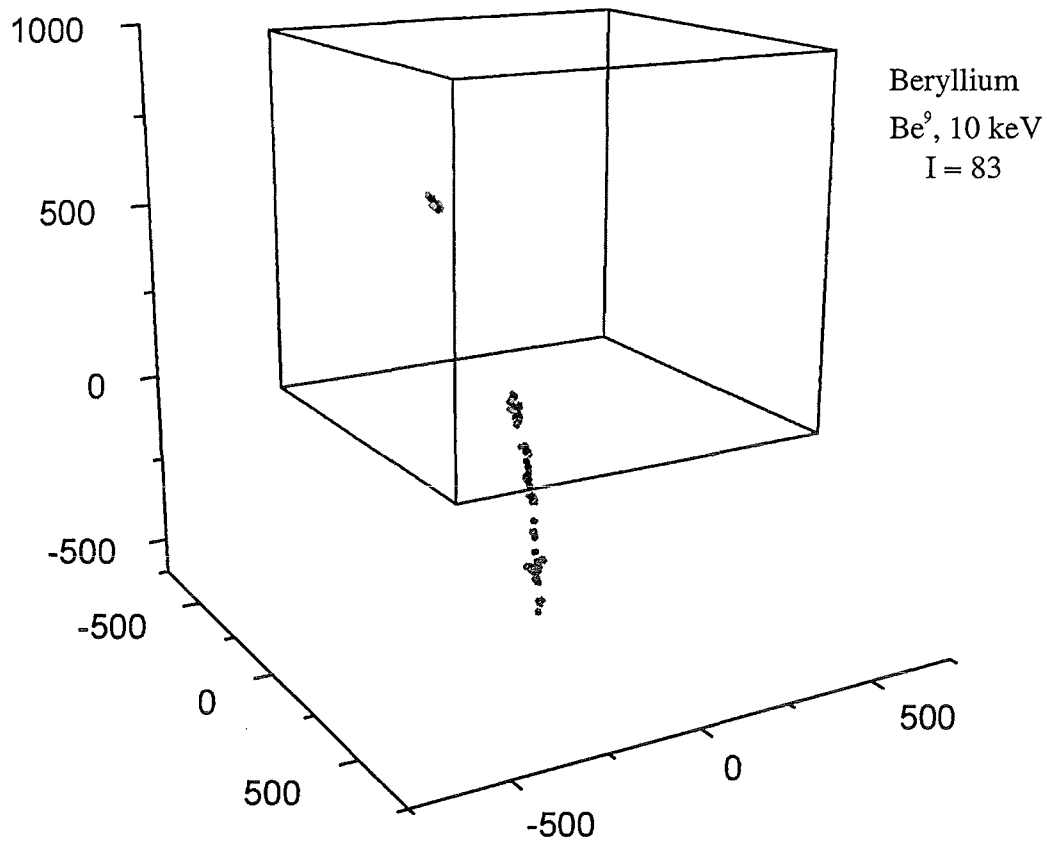


**ABB. 8.24:** 1 MeV-Si-Kaskade in  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ : Im mittleren Bereich des Kaskadenschlauchs erfolgt ein beinahe verlagerungsfreier Transport des PKA's (bedingt durch bessere Channelling-Bedingungen als im Orthosilikat).

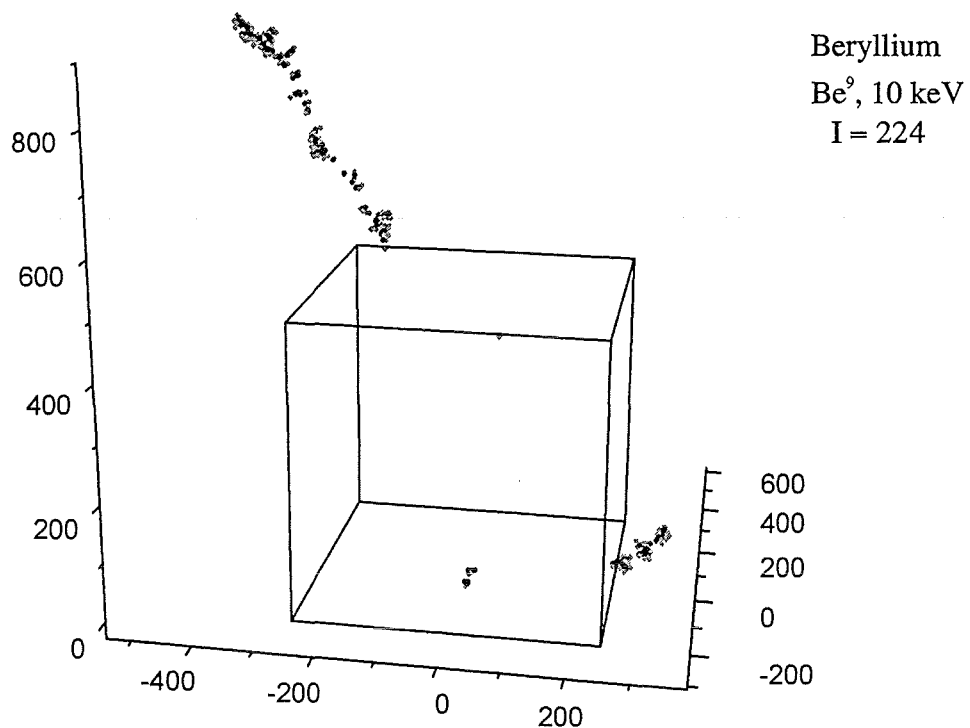


**ABB. 8.25:** 10 keV-Be-Kaskade an einem Be-Korn: PKA startet  $100 \text{ \AA}$  unterhalb des Kornes und produziert insgesamt 57 Defektpaare. Wegen des induzierten Channellings an der Korngrenzfläche erfolgt die Defektproduktion hauptsächlich jenseits des Kornes (47 Defekte).

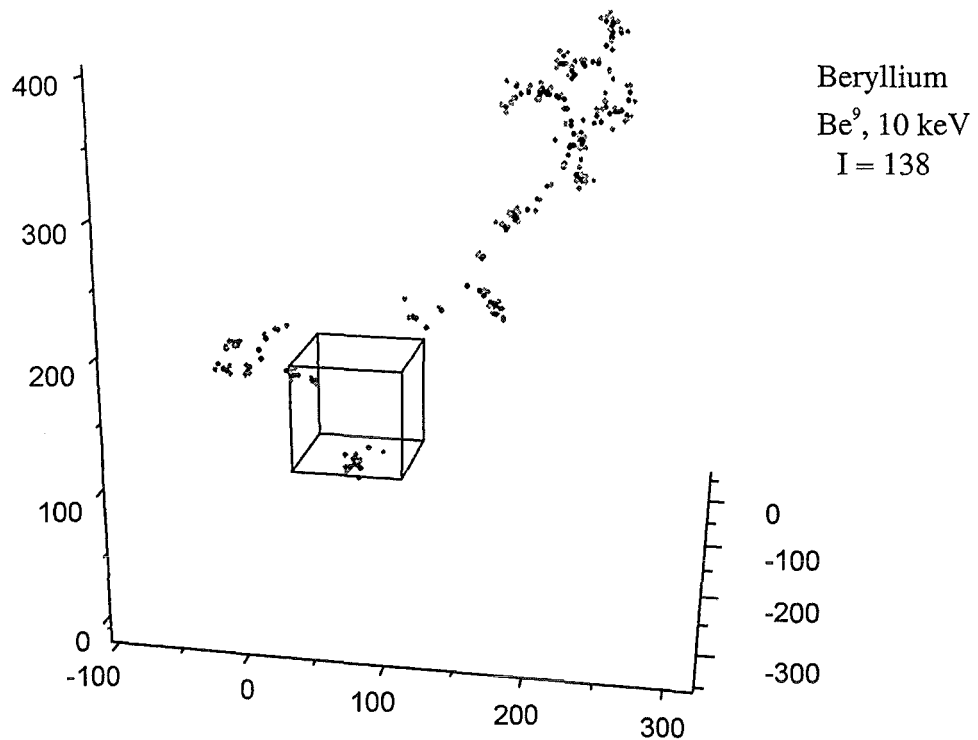




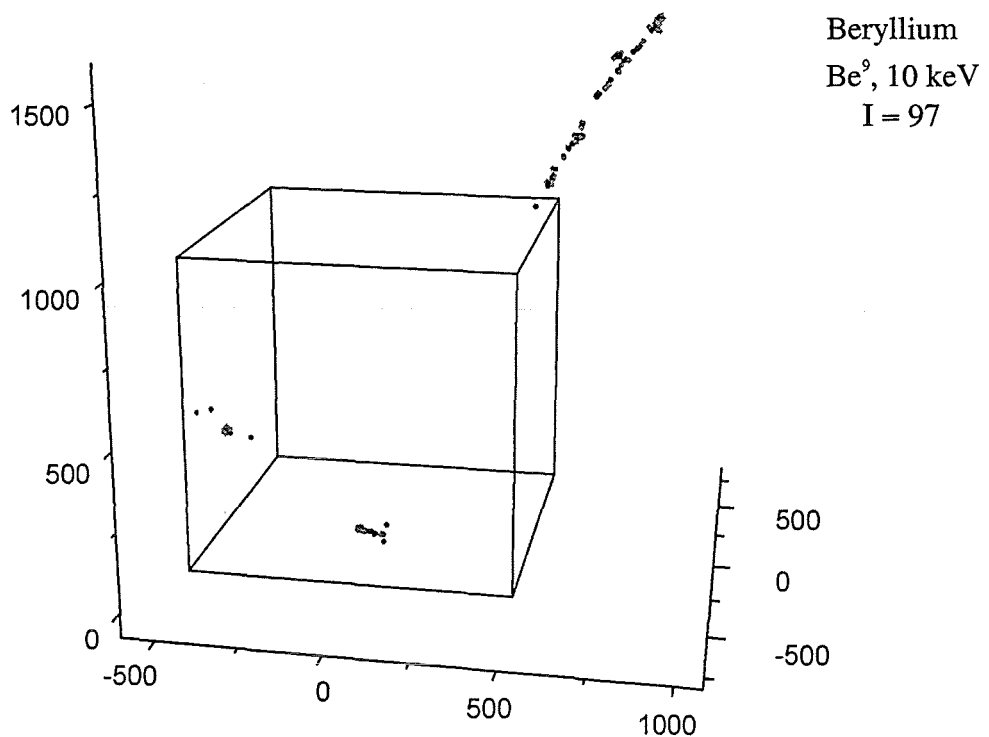
**ABB. 8.26:** 10 keV-Be-Kaskade an einem Be-Korn: PKA startet 600 Å unterhalb des Kornes und produziert total 83 Defekte. Dabei kann das PKA weit in das Korninnere vordringen und erzeugt dort eine Defektanhäufung mit 12 Defekten.



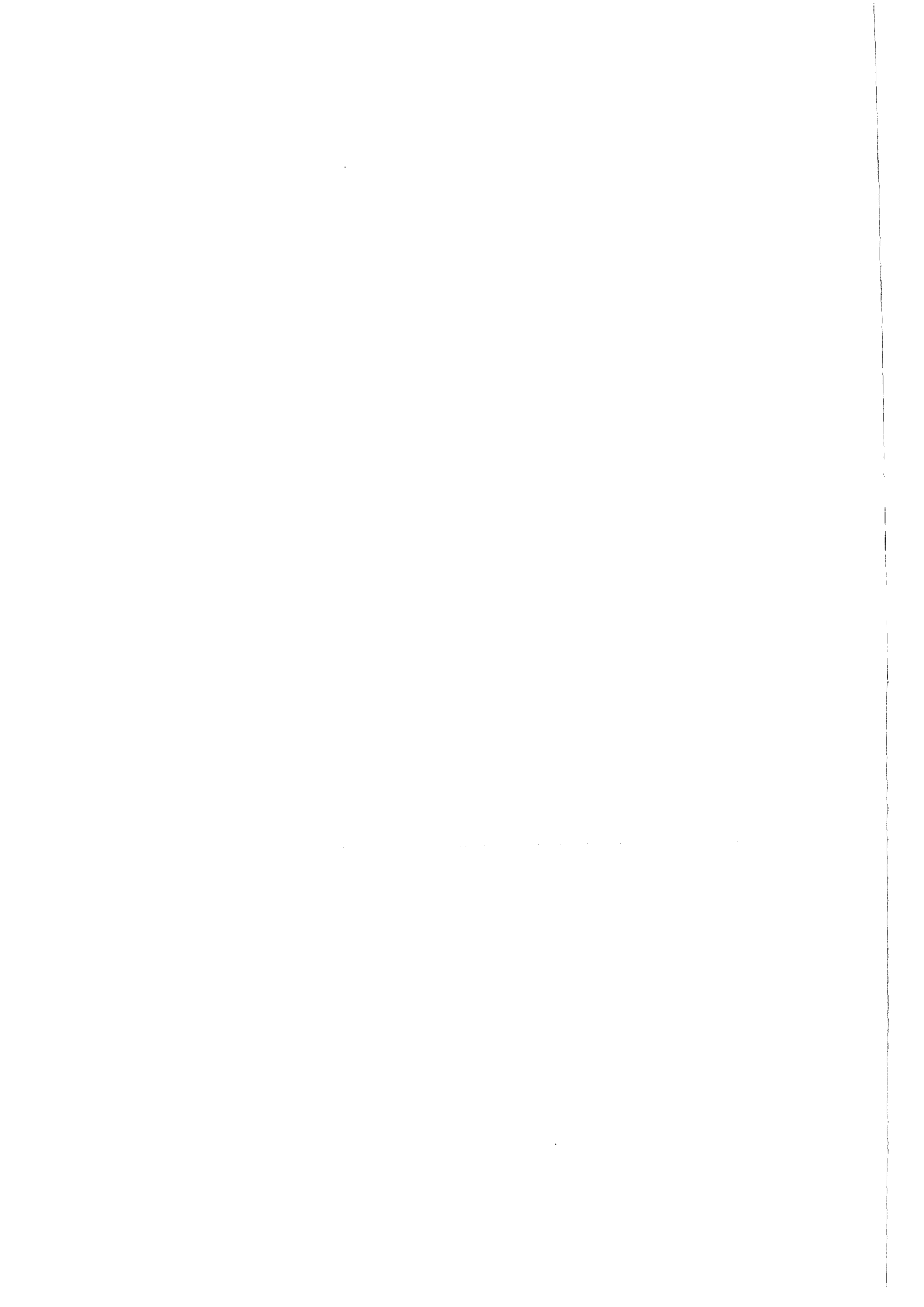
**ABB. 8.27:** 10 keV-Be-Kaskade an Void in Beryllium: PKA startet 30 Å unterhalb der Grenzfläche. Dort werden lediglich 5 von insgesamt 224 Defekten erzeugt. Ein 1,8 keV-Atom verursacht den Seitenarm mit 48 Defekten, während das PKA hinter dem Hohlraum noch 171 Defektpaare einbringt.



**ABB. 8.28:** 10 keV-Be-Kaskade an kleiner intragranularer He-Blase in Beryllium: PKA startet 20 Å unterhalb der Grenzfläche, wo es noch 8 Defektpaare (von total 138) erzeugt. Lediglich 1 He-Atom dringt weit in die Beryllium-Matrix vor und verbleibt dort interstitiell.



**ABB. 8.29:** 10 keV-Be-Kaskade an großer He-Oberflächenblase in Beryllium: PKA startet 80 Å unterhalb der Grenzfläche (17 Defektpaare). Die Defektstruktur (links im Bild, 11 Defekte) wird durch ein schnelles He-Atom (650 eV) verursacht. Das PKA, das die obere Blasengrenzfläche durchtritt, produziert schließlich die restlichen 69 Defektpaare.



## 9 LITERATURVERZEICHNIS

- [1] P. Schiller, *Review of materials selection for fusion reactors*, J. Nucl. Mat. 206 (1993) 113-120
- [2] ITER Joint Central Team, *The impact of materials selection on the design of the International Thermonuclear Experimental Reactor (ITER)*, J. Nucl. Mat. 212-215 (1994) 3-10
- [3] M.J. Norgett, M.T. Robinson and I.M. Torrens, *A proposed method of calculating displacement dose rates*, Nucl. Eng. Des. 33 (1975) 50-54
- [4] J. Lindhard, V. Nielsen and M. Scharff, *Integral equations governing radiation effects*, Mat.-fys. Medd. 33 (1963) no. 10
- [5] W. Huang, H.M. Urbassek and P. Sigmund, *Recoil numbers, particle densities and reaction yields in linear atomic collision cascades*, Phil. Mag. A 52 (1985) 753-785
- [6] M.T. Robinson, *The binary collision approximation: background and introduction*, Rad. Eff. Def. 130-131 (1994) 3-20
- [7] L.R. Greenwood and R.K. Smither, *SPECTER: Neutron damage calculations for materials irradiations*, Argonne National Laboratory, ANL/FPP/TM-197 (Jan. 1985)
- [8] L.R. Greenwood, *SPECOMP Calculations of Radiation Damage in Compounds*, in: *Reactor Dosimetry: Methods, Applications, and Standardization*, ed. H. Farrer, E.P. Lippincott, ASTM STP 1001 (1989) 598-602
- [9] S.J. Zinkle and B.N. Singh, *Analysis of displacement damage and defect production under cascade damage conditions*, J. Nucl. Mater. 199 (1993) 173-191
- [10] Yu.D. Lizunov and A.I. Ryazanov, *Boltzmann Transport Equation in Ion Transport and Radiation Damage Calculations*, Kurchatov Inst. Moscow, IAE-5298/11 (1991)
- [11] U. Littmark, *Modelling of ballistic low energy ion solid interaction - conventional analytic theories versus computer simulations*, Nucl. Instr. Meth. B90 (1994) 202-211
- [12] J.B. Adams et al., *Atomic-level computer simulation*, J. Nucl. Mat. 216 (1994) 265-274
- [13] H. Wiedersich, *General introduction to microstructural evolution under cascade damage conditions*, J. Nucl. Mat. 206 (1993) 121-128
- [14] H. Trinkaus et al., *Defect accumulation under cascade damage conditions*, J. Nucl. Mat. 212-215 (1994) 18-28
- [15] R. Bullough and M.H. Wood, *Theory of Microstructural Evolution*, in: *Physics of Radiation Effects in Crystals*, ed. R.A. Johnson, A.N. Orlov (North-Holland, Amsterdam, 1986) 189
- [16] B.O. Hall, *Formation and evolution of dislocation structures during irradiation*, in: *Dislocations in solids*, ed. F.R.N. Nabarro (Elsevier, Amsterdam, 1986)

- [17] H.L. Heinisch, *Defect production in high energy cascades: the roles of molecular dynamics and binary collision simulations*, Rad. Eff. Def. 129 (1994) 113-116
- [18] J. Lindhard, M. Scharff and H. Schiøtt, *Range concepts and heavy ion ranges*, Mat.-fys. Medd. 33 (1963) no. 14
- [19] D.G. Doran and N.J. Graves, *Displacement cross sections and PKA spectra: tables and applications*, Hanford, HEDL-TME 76-70 (Dec. 1976)
- [20] G.R. Odette and D.R. Doiron, *Neutron-energy-dependent defect production cross sections for fission and fusion applications*, Nucl. Tech. 29 (1976) 346-368
- [21] D.J. Bacon, A.F. Calder, F. Gao, V.G. Kapinos and S.J. Wooding, *Computer simulation of defect production by displacement cascades in metals*, Nucl. Instr. Meth. B102 (1995) 37-46
- [22] D. Leichtle, *Computer Simulations of Displacement Damage in Solid Breeder Blankets*, Proc. 19th Symp. on Fusion Technology, Lisbon, Portugal, Sept. 16-20, 1996, Vol. 2, p.1355-1358
- [23] J.R. Beeler Jr., *Radiation effects computer experiments* (North-Holland, Amsterdam, 1983)
- [24] R.M. Nieminen, *Perspectives of molecular dynamics*, Mat. fys. Medd. 43 (1993) 81-96
- [25] D.J. Bacon and T.D. de la Rubia, *Molecular dynamics computer simulations of displacement cascades in metals*, J. Nucl. Mat. 216 (1994) 275-290
- [26] H. Goldstein, *Classical Mechanics* (Addison-Wesley, Reading, Massachusetts, 1980) p. 105-119
- [27] W.D. Eckstein, *Computer simulation of ion-solid interactions* (Springer, Berlin, 1991)
- [28] Y. Yamamura, *Energy distribution of constituent atoms of cluster impacts on solid surface*, Nucl. Instr. Meth. B62 (1991) 181-190
- [29] M.T. Robinson, *Slowing down of energetic atoms in solids*, Phys. Rev. B40 (1989) 10717-10726
- [30] P.J. Davis and I. Polansky, in: *Handbook of Mathematical Functions*, ed. M. Abramowitz, I.A. Stegun (Dover, New York, 1965) Chap. 25
- [31] M.T. Robinson and I.M. Torrens, *Computer simulation of atomic-displacement cascades in solids in the binary-collision approximation*, Phys. Rev. B9 (1974) 5008-5024
- [32] erhältlich bei: Radiation Shielding Information Center, ORNL, P.O. Box 2008, Oak Ridge, Tennessee 37831-6362, USA
- [33] H. Ibach and H. Lüth, *Festkörperphysik* (Springer, Berlin 1995) Kap. 5
- [34] I.A. Stegun, in: *Handbook of mathematical functions*, ed. by M. Abramowitz, I.A. Stegun (Dover, New York, 1965) p. 998
- [35] I.M. Torrens, *Interatomic potentials* (Academic Press, New York, 1972), p. 18

- [36] J.F. Ziegler, J.P. Biersack and U. Littmark, *The stopping and range of ions in solids* (Pergamon, New York, 1985)
- [37] P. Gombás, *Die statistische Theorie des Atoms und ihre Anwendungen* (Springer, London, 1952)
- [38] R.G. Gordon and Y.S. Kim, *J. Chem. Phys.* 56 (1972) 3122
- [39] S.T. Nakagawa and Y. Yamamura, *Interatomic potentials in solids and its applications to range calculations*, *Rad. Eff.* 105 (1988) 239-256
- [40] W. Lenz, *Z. Phys.* 77 (1932) 713; H. Jensen, *Z. Phys.* 77 (1932) 722
- [41] N. Bohr, *The penetration of atomic particles through matter*, *Mat. fys. Medd.* 18 (1948) No. 8
- [42] G. Molière, *Z. Naturforsch. A2* (1947) 133
- [43] M. Born, J.E. Mayer, *Z. Phys.* 75 (1932) 1
- [44] M.T. Robinson, *Computer Simulation of Sputtering*, *Mat. fys. Medd.* 43 (1993) 27-79
- [45] S.T. Nakagawa, *A realistic interatomic potential in solids*, *Rad. Eff. Def.* 116 (1991) 21-28
- [46] S.T. Nakagawa, *Molecular effect on interatomic potentials*, *Rad. Eff. Def.* 112 (1990) 1-4
- [47] A.E. Carlsson, *Beyond pairs potentials in elemental transition metals and semiconductors*, *Solid State Phys.* 43 (1990) 1-91
- [48] J.E. Lennard and I. Jones, *Proc. Roy. Soc. London A106* (1924) 441, 463
- [49] P.M. Morse, *Phys. Rev.* 34 (1929) 57
- [50] J.P. Biersack and M. Städele, *Repulsive potentials and nuclear stopping in ionic insulators*, *Rad. Eff.* 64 (1982) 51-60
- [51] P. Sigmund, *Energy loss of charged particles in solids*, in: *Radiation damage processes in materials*, ed. C.H.S. Dupuy (Noordhoff, Leyden, 1975) 3-117
- [52] N. Bohr, *On the theory of the decrease of velocity of moving electrified particles on passing through matter*, *Phil. Mag.* 25 (1913) 10
- [53] J.U. Andersen et al., *Energy loss of heavy ions at high energies*, *Nucl. Instr. Meth.* B90 (1994) 104-111
- [54] J. Lindhard, *Mat.-fys. Medd.* 28 (1963) no. 8
- [55] P.M. Echenique, F. Flores and R.H. Ritchie, *Dynamic screening of ions in condensed matter*, *Solid State Phys.* 43 (1990) 229-308
- [56] H.A. Bethe, *Bremsformel für Elektronen relativistischer Geschwindigkeiten*, *Z. f. Phys.* 76 (1932) 293

- [57] F. Bloch, *Bremsvermögen von Atomen mit mehreren Elektronen*, Z. f. Phys. 81 (1933) 363
- [58] International Commission on Radiation Units and Measurements, *Stopping powers and ranges for protons and alpha particles*, ICRU report 49, Washington DC (1993)
- [59] H.H. Andersen and J.F. Ziegler, *Helium: Stopping powers and ranges in all elemental matter* (Pergamon, New York, 1977)
- [60] J.D. Jackson and R.L. McCarthy,  $Z^3$  corrections to energy loss and range, Phys. Rev. B11 (1972) 4131-4141
- [61] H.H. Andersen, *Higher-order  $Z_1$  Effects in stopping powers*, Phys. Scr. 28 (1983) 268-276
- [62] N. Bohr, *Scattering and stopping of fission fragments*, Phys. Rev. 57 (1940) 654
- [63] L.C. Northcliffe and R. F. Schilling, Nuclear Data Tables A7 (1970) 233
- [64] P. Hvelplund and B. Fastrup, *Stopping cross section in carbon of 0.2-1.5-MeV atoms with  $21 \leq Z_1 \leq 39$* , Phys. Rev. 165 (1968) 408-414
- [65] J.H. Ormrod, J.R. MacDonald and H.E. Duckworth, *Some low-energy atomic stopping cross sections*, Can. J. Phys. 43 (1965) 275-284
- [66] Th. Krist and P. Mertens, *Proton energies at the maximum of the electronic stopping cross section in materials with  $57 \leq Z_2 \leq 83$* , Nucl. Instr. Meth. 218 (1983) 790-794
- [67] D. Fink, J.P. Biersack, M. Städele, K. Tjan and V.K. Cheng,  *$Z_2$  stopping power oscillations as derived from range measurements*, Nucl. Instr. Meth. 218 (1983) 817-820  
D. Fink, J.P. Biersack, M. Städele, K. Tjan and V.K. Cheng, *Nitrogen depth profiling using the  $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$  reaction*, Nucl. Instr. Meth. 218 (1983) 171-175
- [68] J.C. Eckardt, W. Meckbach and R.A. Baragiola, *Stopping cross sections and atomic potentials*, Rad. Eff. 27 (1976) 179-181
- [69] W. Brandt and M. Kitagawa, Phys. Rev. B25 (1982) 5631
- [70] C. Varelas and J.P. Biersack, *Reflection of energetic particles from atomic or ionic chains in single crystals*, Nucl. Instr. Meth. 79 (1970) 213
- [71] J.P. Biersack and L.G. Haggmark, *A Monte Carlo computer program for the transport of energetic ions in amorphous targets*, Nucl. Instr. Meth. 174 (1980) 257-269
- [72] O.B. Firsov, Zh. Eksp. Teor. Fiz. 36 (1959) 1517
- [73] O.S. Oen and M.T. Robinson, *Computer studies of the reflection of light ions from solids*, Nucl. Instr. Meth. 132 (1976) 647-653
- [74] W.H. Bragg and R. Kleeman, Philos. Mag. 10 (1905) 318
- [75] D.I. Thwaites, *Departure from Bragg's rule of stopping power additivity for ions in dosimetric and related materials*, Nucl. Instr. Meth. B69 (1992) 53-63

- [76] M. Inokuti and M.J. Berger, *Survey and compilation of stopping power data conducted by the International Commission on Radiation Units and Measurements*, Nucl. Instr. Meth. B27 (1987) 249-255
- [77] D.I. Thwaites, *Review of stopping powers in organic materials*, Nucl. Instr. Meth. B27 (1987) 293-300
- [78] J.R. Sabin and J. Oddershede, *Theoretical stopping cross sections of C-H, C-C and C=C bonds for swift protons*, Nucl. Instr. Meth. B27 (1987) 280-286
- [79] G. Reiter et al., *Proton and helium stopping cross sections in N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, NO and N<sub>2</sub>O*, Nucl. Instr. Meth. B27 (1987) 287-292
- [80] D. Boutard, W. Möller and B.M.U. Scherzer, *Influence of H-C bonds on the stopping power of hard and soft carbonized layers*, Phys. Rev. B38 (1988) 2988-2994
- [81] J.F. Ziegler and J.M. Manoyan, *The stopping of ions in compounds*, Nucl. Instr. Meth. B35 (1988) 215-228
- [82] R. Golser A. Schiefermüller and D. Semrad, *The influence of target composition on the specific energy loss measured in transmission geometry*, Nucl. Instr. Meth. B90 (1994) 45-48
- [83] H. Gades and H.M. Urbassek, *Pair versus many-body potentials in atomic emission processes from a Cu surface*, Nucl. Instr. Meth. B69 (1992) 232-241
- [84] L. Pauling, *The nature of the chemical bond* (Cornell Univ. Press, Ithaca, NY, 1960)
- [85] J.R. Beeler Jr., *Radiation effects computer experiments* (North-Holland, Amsterdam, 1983), 161ff.
- [86] J.L. Helm, *Simulation Frenkel Pair Recombination by Application of a space-partitioning Tree Data Structure*, Rad. Eff. Def. 130-131 (1994) 21-37
- [87] M.T. Robinson, *Binding energy effects in cascade evolution and sputtering*, Nucl. Instr. Meth. B115 (1996) 549-553
- [88] J.R. Beeler Jr., *Radiation effects computer experiments* (North-Holland, Amsterdam, 1983) 118ff
- [89] P. Ehrhardt, K.H. Robrock and H.R. Schober, *Basic defects in metals*, in: Physics of radiation effects in crystals, ed. R.A. Johnson, A.N. Orlov (North-Holland, Amsterdam, 1986) 3
- [90] E. Hornbogen, *Werkstoffe* (Springer, Berlin, 1994) p. 81ff.
- [91] M.T. Robinson, *Computer simulation studies of high-energy collision cascades*, Nucl. Instr. Meth. B67 (1992) 396-400
- [92] E. Hornbogen, *Werkstoffe* (Springer, Berlin, 1994) p. 40ff.
- [93] N.W. Ashcroft and N.D. Mermin, *Solid State Physics* (Holt-Saunders, Tokyo, 1981) p. 616ff.



- [94] E. Hornbogen, *Werkstoffe* (Springer, Berlin, 1994) p. 107ff.
- [95] G. Ondracek, *Werkstoffkunde* (Expert, Ehningen, D, 1979) p. 23ff.
- [96] W. Dienst, *Materialverhalten unter Bestrahlung*, Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK 5403 (Sept. 1994)
- [97] F. Scaffidi-Argentina, *Modellierung des Schwellens und der Tritium-Freisetzung von bestrahltem Beryllium*, Forschungszentrum Karlsruhe, FZKA 5632 (Okt. 1995)
- [98] L.W. Hobbs, F.W. Clinard Jr., S.J. Zinkle and R.C. Ewing, *Radiation effects in ceramics*, J. Nucl. Mat. 216 (1994) 291-321
- [99] F.W. Clinard Jr., L.W. Hobbs, *Radiation Effekts in Non-Metals*, in: Physics of Radiation Effects in Crystals, ed. R.A. Johnson, A.N. Orlov (North-Holland, Amsterdam, 1986) 387
- [100] G. Body and R. Smith, *Fast formulae for the time integral in binary collision calculations*, Nucl. Instr. Meth. B84 (1994) 425-433
- [101] M. Dalle Donne et al., *European DEMO BOT solid breeder blanket*, Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK 5429 (Nov. 1994)
- [102] M. Dalle Donne et al., *European DEMO BOT Solid Breeder Blanket: The concept based on the use of cooling plates and beds of beryllium and  $Li_4SiO_4$  pebbles*, Proc. 18th Symp. on Fusion Technology, Karlsruhe, Germany, Aug. 22-26, 1994, Vol. 2, p. 1157- 1161
- [103] Gmelin Handbuch der anorganischen Chemie, *Beryllium Supplement A2* (Springer, Berlin, 1991)
- [104] J.R. Beeler Jr., *Radiation effects computer experiments* (North-Holland, Amsterdam, 1983) p. 265
- [105] J. Hanßmann, *Untersuchung der Gitterplatzbesetzung von Fremdatomen nach Implantation in Beryllium-Einkristallen*, Forschungszentrum Karlsruhe, FZKA 5805 (Aug. 1996)
- [106] H. Kleykamp und H.D. Gottschalg, Interner Bericht FZK (Nov. 1996)
- [107] M. Verwerft, *Irradiation effects in Beryllium: a comparison of powder types and consolidation techniques*, Report SCK-CEN, Mol (Feb. 1997) unpublished
- [108] H. Völlenkne, *Die Kristallstruktur von  $Li_4SiO_4$* , Mh. Chem. 99 (1968) 1360-1371
- [109] H. Kleykamp, Interner Bericht FZK (April 1997)
- [110] *International tables for X-ray crystallography*, Volume A, ed. Th. Hahn (Kluwer, Dordrecht NL, 1995)
- [111] D. Suiter, *Lithium based oxide ceramics for tritium breeding applications*, ANL, Report MDC E2677 (June 1983)

- [112] G. W. Hollenberg, *A transformation in lithium orthosilicate*, J. Nucl. Mat. 103&104 (1981) 591-596
- [113] M. Dalle Donne, Forschungszentrum Karlsruhe, persönliche Mitteilung (1997)
- [114] K.-F. Hesse, *Refinement of the crystal structure of lithium polysilicate*, Acta Cryst. B33 (1977) 901-902
- [115] G. Donnay and J.D.H. Donnay, Am. Mineral. 38 (1953) 163-171
- [116] M.T. Robinson, *Basic physics of radiation damage production*, J. Nucl. Mat. 216 (1994) 1-28
- [117] H.M. Urbassek, G. Mayer, H. Gades and M. Vicanek, *Effect of bulk binding forces on energetic-ion-induced collision cascades: A combined simulational and analytical approach*, Nucl. Instr. Meth. B103 (1995) 277-283
- [118] D. Hermanutz, *Neutroneninduzierte Verlagerungsschädigung von Beryllium im Blanket eines (d,t)-Fusionsreaktors*, Forschungszentrum Karlsruhe, FZKA 5642 (Sep. 1995)
- [119] J.R. Beeler Jr., *Radiation effects computer experiments* (North-Holland, Amsterdam, 1983) p. 163
- [120] M.F.C. Ladd, *Structure determination by X-ray crystallography* (Plenum Press, New York, 1993)
- [121] M. Dalle Donne et al., *Behaviour of Beryllium Pebbles under Irradiation*, Proc. 3<sup>rd</sup> IEA Int. Workshop on Beryllium Technology for Fusion, Okt. 22-24 1997, Mito City, Japan, ed. H. Kawamura, M. Okamoto, p. 296-306
- [122] F. Scaffidi-Argentina, Forschungszentrum Karlsruhe, persönliche Mitteilung (April 1998)
- [123] D.M. Parkin and C.A. Coulter, *Displacement Cascades in Polyatomic Materials*, J. Nucl. Mat. 117 (1983) 340-344
- [124] L.R. Greenwood, *Radiation Damage Calculations for Compound Materials*, in: Effects of Radiation on Materials, Vol. II, ed. N.H. Packan, R.E. Stoller, A.S. Kumar, ASTM STP 1046 (1990) 633-641
- [125] Evaluated Nuclear Data File B, Version VI, National Neutron Cross Section Center, Brookhaven National Laboratory, Upton, New York
- [126] R.E. MacFarlane, D.W. Muir and R.M. Boicourt, *The NJOY Nuclear Data Processing System, Volume I: User's Manual*, Los Alamos Nat. Lab., LA-12740-M (Sep. 1993)
- [127] U. Fischer, Forschungszentrum Karlsruhe, private Mitteilung (Mai 1998)
- [128] S.T. Perkins, E.F. Plechaty and R.J. Howerton, *A reevaluation of the  ${}^9\text{Be}(n,2n)$  reaction and its effect on neutron multiplication in fusion blanket applications*, Nucl. Sci. Eng. 90 (1985) 83-98
- [129] E. Browne and R.B. Firestone, *Table of radioactive isotopes* (Wiley-Interscience, New York, 1986)

- [130] R.S. Averback, *Atomic displacement processes in irradiated metals*, J. Nucl. Mat. 216 (1994) 49-62
- [131] H. Wiedersich, *Effects of the primary recoil spectrum on microstructural evolution*, J. Nucl. Mat. 179-181 (1991) 70-75
- [132] H. Huang and N. Ghoniem, *Neutron displacement damage cross sections for SiC*, J. Nucl. Mater. 199 (1993) 221-230
- [133] M.S. Miller and J.W. Boring, *Total inelastic energy loss by heavy ions stopped in a gas*, Phys. Rev. A9 (1974) 2421-2433

## *Abbildungsverzeichnis*

ABB. 2.1: Schematische Zweikörperkollisionen im Labor- und Schwerpunktsystem. ....	10
ABB. 2.2: Binäre Kollision im Schwerpunktsystem:.....	11
ABB. 2.3: Binäre Kollision im Laborsystem.....	15
ABB. 2.4: Schematischer Ablaufplan für MARLOWE.....	18
ABB. 3.1: Abschirmfunktionen (schematisch) für Coulomb-Potentiale .....	28
ABB. 3.2: Abschirmfunktionen für Ion-Ion-Potentiale .....	31
ABB. 3.3: Anpassung der Elektronendichte an Potentialabschirmung.....	41
ABB. 3.4: Schematische Darstellung von Bindungsverstärkungen in der Nähe einer Leerstelle.....	49
ABB. 4.1: Targetmodell in Marlowe mit lateral begrenzten Layern .....	60
ABB. 4.2: Approximation der Apsis bei zentralem Stoß für das AMLJ-Potential. ....	66
ABB. 4.3: Korrekturen kinematischer Größen durch Verwendung inelastischer BCA-Formeln. ....	70
ABB. 4.4: Korrektur für Asymptotenabstand bei Verwendung inelastischer BCA-Formeln.....	71
ABB. 4.5: Layout zum Quasisimultan-Modell .....	73
ABB. 4.6: Kinematik mit repulsivem Potential .....	77
ABB. 4.7: Kinematik mit attraktivem Potential.....	78
ABB. 4.8: Simultanität bei attraktivem Potential .....	79
ABB. 4.9: Defektrekombination in benachbarten Layern .....	85
ABB. 4.10: Typische Clusterkonfigurationen dreier Defekte (Triplets).....	87
ABB. 5.1: Querschnitt durch das HCPB-DEMO-Blanket.....	92
ABB. 5.2: hcp-Gitter mit energetisch bevorzugten Zwischengitterpositionen. ....	94
ABB. 5.3: Defekterzeugung durch Be <sup>9</sup> -PKA's in Beryllium für verschiedene abgeschirmte Potentiale.....	105
ABB. 5.4: Kaskadenprofile für Be-initiierte Kaskaden mit verschiedenen abgeschirmten Potentialen.....	107
ABB. 5.5: Defekterzeugung für He-PKA's mit verschiedenen abgeschirmten Potentialen.....	108
ABB. 5.6: Effektive Verlagerungsschwelle für verschiedene PKA's .....	108
ABB. 5.7: $N_d-E_{dam}$ -Verhalten bei hohen Energien von He-PKA's .....	109
ABB. 5.8: Kaskadenprofile für hochenergetische He <sup>4</sup> -PKA's. ....	110
ABB. 5.9: Defekterzeugung und effektive Verlagerungsschwelle von Li-PKA's in Li <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub> für verschiedene Grade ionischer Ladung.....	111
ABB. 5.10: Rückstoßspektren einzelner Konstituenten in Li <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub> .....	112
ABB. 5.11: Defekterzeugung für verschiedene Ionisierungspotentiale .....	116

ABB. 5.12: Rückstoßdichte in Be für unterschiedliche Bindungsenergien.....	118
ABB. 5.13: Korrelation von effektiver Schwelle mit effektivem Energiecutoff.....	119
ABB. 5.14: Relative Defektänderung bei unterschiedlichen Bindungsspezifikationen .....	120
ABB. 5.15: Rückstoßdichten der Konstituenten in $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .....	122
ABB. 5.16: Kaskadenprofile für Be mit 1 MeV. ....	123
ABB. 5.17: Rückstoßdichten einzelner Konstituenten in $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .....	125
ABB. 5.18: Korrelationen für effektive Verlagerungsschwelle und Defektanzahl .....	126
ABB. 5.19: Korrelation für Defektanzahl. ....	128
ABB. 5.20: Rückstoßdichten bei verschiedenen maximalen Stoßparametern .....	129
ABB. 5.21: Rückstoßdichten einzelner Konstituenten in $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ bei verschiedenen maximalen Stoßparametern.....	131
ABB. 5.22: Schädigungsfunktionen in reinem Beryllium.....	133
ABB. 5.23: Effektive Verlagerungsschwellen für verschiedene PKA's in reinem Beryllium. ....	134
ABB. 5.24: Rückstoßdichten bei 30 keV: Vergleich zwischen $\text{Be}^9$ - und $\text{He}^4$ -initiierten Kaskaden.....	135
ABB. 5.25: Korrelation zwischen $N_d$ und $E_{dam}$ in Beryllium. ....	136
ABB. 5.26: Temperaturabhängigkeit der Kaskadenresultate in Be.....	139
ABB. 5.27: Kaskadenprofile in Be bei verschiedenen Temperaturen.....	140
ABB. 5.28: Defektproduktion im Kaskadenverlauf.....	141
ABB. 5.29: Schädigungsfunktionen in Be bei 900 K.....	142
ABB. 5.30: Kaskadenprofile hochenergetischer $\text{He}^4$ -PKA's in Be bei 900 K.....	143
ABB. 5.31: Defekterzeugung und effektive Verlagerungsschwelle in verunreinigtem Be.....	144
ABB. 5.32: Schädigungsfunktionen von verschiedenen PKA's in $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .....	147
ABB. 5.33: Effektive Verlagerungsschwellen für verschiedene PKA's in $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .....	148
ABB. 5.34: Korrelation zwischen $N_d$ und $E_{dam}$ in $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .....	149
ABB. 5.35: Änderung der Defekterzeugung in $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ bei 1180 K gegenüber 0 K. ....	153
ABB. 5.36: Schädigungsfunktionen von verschiedenen PKA's in $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ .....	156
ABB. 5.37: Korrelation zwischen $N_d$ und $E_{dam}$ in $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ .....	157
ABB. 5.38: Änderung der Defekterzeugung in $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ bei 1180 K gegenüber 0 K. ....	158
ABB. 5.39: Defekterzeugung in Li-Silikaten mit Te-Verunreinigungen .....	159
ABB. 5.40: Änderung der Defekterzeugung in Li-Silikaten mit Te .....	159
ABB. 5.41: Targetmodellierung für Untersuchungen an lokalen Inhomogenitäten.....	161
ABB. 5.42: Defekterzeugung ( $\text{Be}^9$ mit 10 keV) in variablem Abstand zu einer Korngrenze .....	162
ABB. 5.43: Reichweitenverteilung an einer Korngrenze.....	163

ABB. 5.44: Kaskadenprofile an einer Korngrenze .....	164
ABB. 5.45: Targetmodellierung für Untersuchungen an lokalen Inhomogenitäten .....	165
ABB. 5.46: Defekterzeugung durch Be <sup>9</sup> -PKA im Zentrum eines Korns .....	166
ABB. 5.47: Defekterzeugung (Li mit 10 keV) in variablem Abstand zu einer Korngrenze .....	167
ABB. 5.48: Reichweitenverteilung an einer Korngrenze.....	168
ABB. 5.49: Defekterzeugung (Li mit 10 keV) in variablem Abstand zu einer Phasengrenze.....	169
ABB. 5.50: Defekterzeugung in Nähe einer Phasengrenze (Li <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub> -Li <sub>2</sub> SiO <sub>3</sub> ).....	170
ABB. 5.51: Defekterzeugung in der Nähe einer Phasengrenze (Be-BeO).....	171
ABB. 5.52: Defekterzeugung in der Nähe eines Hohlraums .....	173
ABB. 5.53: Reichweitenverteilung an einer Hohlraumgrenze (Größe: 50 nm) .....	174
ABB. 5.54: Reichweitenverteilung durch Hohlräume verschiedener Ausdehnung .....	175
ABB. 5.55: Defekterzeugung an einer intragranularen He-Blase .....	177
ABB. 5.56: Reichweitenverteilung in der Nähe einer He-Blase (10 nm).....	178
ABB. 5.57: Schematische Defektreduzierung an lokalen Inhomogenitäten in Be.....	188
ABB. 5.58: Defektausbildung an einer Phasengrenze .....	189
ABB. 6.1: Codesystem zur Berechnung von Schädigungsparametern mit BCA-Simulationen. ....	193
ABB. 6.2: Neutronenenergiespektren im HCPB-Blanket (Gruppenflüsse).....	196
ABB. 6.3: PKA-Spektren für 14 MeV-Neutronen.....	201
ABB. 6.4: Gemitteltes PKA-Spektrum in Be .....	203
ABB. 6.5: Gemitteltes PKA-Spektrum in Li <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub> (links) und Li <sub>2</sub> SiO <sub>3</sub> (rechts).....	204
ABB. 6.6: Verlagerungsquerschnitte in Be.....	207
ABB. 6.7: $W(T)$ -Funktion in Be (Zone 1).....	209
ABB. 6.8: Differenz der totalen Verlagerungsquerschnitte in Be bei 900 K und 0 K. ....	210
ABB. 6.9: Reduzierung der $dpa$ -Rate in der Nähe lokaler Inhomogenitäten (Be).....	211
ABB. 6.10: Verlagerungsquerschnitte in Li-Silikaten. ....	213
ABB. 6.11: Differenz der totalen Verlagerungsquerschnitte in Li <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub> bzw. Li <sub>2</sub> SiO <sub>3</sub> .....	214
ABB. 6.12: $dpa$ -Rate in Li <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub> .....	215
ABB. 6.13: $W(T)$ -Funktionen in Li <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub> .....	216
ABB. 6.14: Differenz der totalen Verlagerungsquerschnitte für Defekte bzw. Fehlordnungen .....	219
ABB. 6.15: Änderung der Schädigungsraten beim Phasenübergang.....	220
ABB. 6.16: Differenz der Schädigungsquerschnitte in Be zu bisherigen Resultaten. ....	222
ABB. 6.17: Differenz von MARLOWE-basierten Schädigungsquerschnitten zu SPECOMP- Resultaten in Be .....	225

<b>ABB. 6.18:</b> Partialbeiträge für Schädigungsquerschnitte aus Konstituenten des $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .....	226
<b>ABB. 8.1:</b> 1 keV- $\text{Be}^9$ -Kaskade in Be. ....	239
<b>ABB. 8.2:</b> 10 keV- $\text{Be}^9$ -Kaskade in Be .....	240
<b>ABB. 8.3:</b> 30 keV- $\text{Be}^9$ -Kaskade in Be. ....	240
<b>ABB. 8.4:</b> 1 MeV- $\text{Be}^9$ -Kaskade in Be.....	241
<b>ABB. 8.5:</b> 10 keV- $\text{He}^4$ -Kaskade in Be. ....	241
<b>ABB. 8.6:</b> 30 keV- $\text{He}^4$ -Kaskade in Be .....	242
<b>ABB. 8.7:</b> 1 MeV- $\text{He}^4$ -Kaskade in Be.....	242
<b>ABB. 8.8:</b> 13 MeV- $\text{He}^4$ -Kaskade in Be.....	243
<b>ABB. 8.9:</b> 13-MeV-He-Kaskade in Be (900 K).....	243
<b>ABB. 8.10:</b> 10 keV-Li-Kaskade in $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .....	244
<b>ABB. 8.11:</b> 10 keV-Li-Kaskade in $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .....	244
<b>ABB. 8.12:</b> 100 keV-Li-Kaskade in $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .....	245
<b>ABB. 8.13:</b> 100 keV-Li-Kaskade in $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .....	245
<b>ABB. 8.14:</b> 3 MeV-Li-Kaskade in $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .....	246
<b>ABB. 8.15:</b> 10 keV-Si-Kaskade in $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .....	246
<b>ABB. 8.16:</b> 10 keV-Si-Kaskade in $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .....	247
<b>ABB. 8.17:</b> 100 keV-Si-Kaskade in $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .....	247
<b>ABB. 8.18:</b> 100 keV-Si-Kaskade in $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .....	248
<b>ABB. 8.19:</b> 2,3 MeV-Si-Kaskade in $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .....	248
<b>ABB. 8.20:</b> 10 keV-Si-Kaskade in $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ .....	249
<b>ABB. 8.21:</b> 10 keV-Si-Kaskade in $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ .....	249
<b>ABB. 8.22:</b> 100 keV-Si-Kaskade in $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ .....	250
<b>ABB. 8.23:</b> 100 keV-Si-Kaskade in $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ .....	250
<b>ABB. 8.24:</b> 1 MeV-Si-Kaskade in $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ .....	251
<b>ABB. 8.25:</b> 10 keV-Be-Kaskade an einem Be-Korn.....	251
<b>ABB. 8.26:</b> 10 keV-Be-Kaskade an einem Be-Korn.....	252
<b>ABB. 8.27:</b> 10 keV-Be-Kaskade an Void in Beryllium .....	253
<b>ABB. 8.28:</b> 10 keV-Be-Kaskade an kleiner intragranularer He-Blase in Beryllium.....	253

## Tabellenverzeichnis

TAB. 3.1: Potentialparameter gebräuchlicher abgeschirmter Coulombpotentiale. ....	24
TAB. 3.2: Potentialparameter für Ion-Ion-Paare .....	30
TAB. 3.3: Abschirmparameter $a/\gamma$ für Be-Be-Potentiale.....	40
TAB. 3.4: Konfigurationsenergien $E_c$ und deren Änderungen im Spannungsfeld einer Leerstelle: .	50
TAB. 5.1: Kristallparameter für $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .....	96
TAB. 5.2: Punktlagen und deren Besetzung im $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ -Gitter. ....	96
TAB. 5.3: Kristallparameter für $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ .....	98
TAB. 5.4: Punktlagen und deren Besetzung im $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ -Gitter. ....	98
TAB. 5.5: Phasenzusammensetzung von $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ mit Zusätzen von $\text{SiO}_2$ und $\text{TeO}_2$ . ....	99
TAB. 5.6: Atomare Zusammensetzung wichtiger Li-Silikatphasen [at%]. ....	99
TAB. 5.7: Bindungsenergien der Konstituenten in Li-Silikaten (für Marlowe-Simulationen).....	101
TAB. 5.8: Primary knock-on atoms (PKA's) in Li-Silikaten.....	102
TAB. 5.9: Primary knock-on atoms (PKA's) in Beryllium.....	102
TAB. 5.10: Physikalische Parameter für Atome in Be und Li-Silikaten .....	102
TAB. 5.11: Compound-Parameter und Korrekturen des elektronischen Energieverlustes für wichtige PKA's im Feststoffblanket. ....	103
TAB. 5.12: Fitparameter für Korrelation zwischen Defektzahl $N_d$ und Schädigungsenergie $E_{dam}$ ( $\text{Be}^9$ in $\text{Be}^9$ ). ....	106
TAB. 5.13: Fitparameter für Korrelation zwischen Defektzahl $N_d$ und Schädigungsenergie $E_{dam}$ (in $\text{Be}^9$ ).....	109
TAB. 5.14: Änderung der Defektausbeute gegenüber Bragg-Ionisierungspotential. ....	115
TAB. 5.15: Bindungsspezifikationen in Be. ....	116
TAB. 5.16: Mittlere Abweichungen von $Q_{red}$ bezüglich Bindungsreferenzfall 1.....	121
TAB. 5.17: Energiecutoff-Spezifikationen in $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ .....	127
TAB. 5.18: Fitparameter für NRT-ähnliche $E_{dam}(E)$ -Abhängigkeit .....	137
TAB. 5.19: Gitterkonstanten von Be bei erhöhten Temperaturen. ....	139
TAB. 5.20: Thermische Parameter (293 K) für Konstituenten des $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ -Gitters.....	152
TAB. 5.21: Thermische Parameter (1180 K) für Konstituenten des $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ -Gitters.....	153
TAB. 5.22: Thermische Parameter (293 K) für Konstituenten des $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ -Gitters.....	157
TAB. 5.23: Thermische Parameter (1180 K) für Konstituenten des $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ -Gitters.....	157
TAB. 5.24: Defektatome in BeO und Be.....	172
TAB. 6.1: Ausgewählte Spezifikationen des DEMO-Fusionsreaktors.....	196



TAB. 6.2: Neutronenspektren im HCPB-Blanket.....	197
TAB. 6.3: PKA-Erzeugung in Beryllium bzw. Li-Silikaten.....	200
TAB. 6.4: PKA-Daten für 14 MeV-Neutronen in Be.....	202
TAB. 6.5: Zusammensetzung der PKA-Spektren (Zone 1) in den Li-Silikaten [%]. .....	204
TAB. 6.6: Mittlere Energien (Zone 1) der PKA-Komponenten [keV]. .....	204
TAB. 6.7: Zusammensetzung der PKA-Spektren (Zone 11) in den Li-Silikaten [%]. .....	205
TAB. 6.8: Mittlere Energie (Zone 11) der PKA-Komponenten [keV]. .....	205
TAB. 6.9: <i>dpa</i> -Raten in Be. ....	209
TAB. 6.10: Schädigungsraten in Li-Silikaten.....	214
TAB. 6.11: Partialbeiträge einzelner PKA's zur totalen <i>dpa</i> -Rate in Li-Silikaten [%].....	215
TAB. 6.12: Partialbeiträge einzelner PKA's zur totalen <i>ddf</i> -Rate in Li-Silikaten [%].....	215
TAB. 6.13: <i>dpa</i> -Raten in Li-Silikaten (0 K).....	217
TAB. 6.14: <i>ddf</i> -Raten in Li-Silikaten (0 K).....	218
TAB. 6.15: Schädigungsraten in $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ bei 1180 K.....	219
TAB. 6.16: Schädigungsraten in $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ bei 1180 K.....	220
TAB. 6.17: <i>dpa</i> -Raten in Be (0 K).....	223
TAB. 6.18: Verlagerungsschwellen in $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ für Defektspezies [eV]. .....	227
TAB. 6.19: <i>dpa</i> -Raten in $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ (0 K) .....	228
TAB. 6.20: Zusammensetzung der <i>dpa</i> -Rate in $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ nach Defektspezies [%]. .....	228
TAB. 6.21: Maximale Schädigungsraten bei 0 K in Be und Li-Silikaten.....	231
TAB. 6.22: Maximale Schädigungsraten bei 900 K in Be bzw. 1180 K in Li-Silikaten .....	231

## *Glossar*

Abbremsmaximum	Maximaler spezifischer Energieverlust
Abbremsung	Energieverlust eines Projektils beim Durchgang durch Materie
Energieverlustmaximum	s. Abbremsmaximum
Abschirmfunktion	Modifizierung eines reinen Coulomb-Potentials durch Abschirmung der Elektronenwolken
Abschirmlänge	charakteristische Länge für Abschirmfunktion
Additivitätsregel	nach Bragg zur Bestimmung von Energieverlustquerschnitten in Verbindungen
Agglomerat	ungeordnete Ansammlung
AMLJ	<u>A</u> verage <u>M</u> odified <u>L</u> enz <u>J</u> ensen; interatomares Potential
amu	<u>A</u> tomic <u>M</u> ass <u>U</u> nit, atomare Masseneinheit
Annihilation	Vernichtung von Defektpaaren
Apsis	minimaler Stoßabstand in einer Zweikörperkollision
Asymptotengleichung	Parametrisierung der asymptotischen Teilchentrajektorien in der BCA
Ausheilung	thermisch oder athermische Annihilation von Defekten
ballistische Phase	erster Abschnitt der Kollisionskaskadenentwicklung
BCA	<u>B</u> inary <u>C</u> ollision <u>A</u> pproximation; binäre Stoßapproximation
bcc	<u>b</u> ody- <u>c</u> entered <u>c</u> ubic, kubisch innenzentriert
BC-Code	<u>B</u> inary <u>C</u> ystal, Klasse von BCA-Codes für kristalline Festkörper
Beryllium	Erdalkalimetall, zur Verwendung als Neutronenvervielfacher in Brutblankets
Bethe-Bloch-Formel	spezifischer Energieverlust an Elektronen, gültig oberhalb des Abbremsmaximums
Bethe-Maximum	s. Abbremsmaximum
binäre Stoßapproximation	s. BCA
Bindungsverstärkung	Kompensation von Bindungsverlust durch Verkürzung von Bindungslängen
BK-Theorie	nach <u>B</u> randt- <u>K</u> itagawa, für elektronischen Energieverlust bei mittleren Energien
Blanket	Komponente im Fusionsreaktor zum Tritiumbrüten, Abschirmung und Wärmegewinnung
Brutblanket	spezielle Ausführung des Blankets zum effektiven Tritiumbrüten
Bohrgeschwindigkeit	$v_0 = c/137$ ; charakteristische Orbitalgeschwindigkeit von Elektronen im Atom
Born-Mayer-Potential	interatomares Potential in Exponentialform
BOT-Konzept	<u>B</u> reeder <u>o</u> ut of <u>T</u> ube; Blanketkonzept mit Brutmaterial außerhalb der Kühlleitungen
Bragg-Regel	s. Additivitätsregel
Bremsquerschnitt	spezifischer Energieverlust pro Atomdichte

Brutkeramik	Lithiumhaltige Keramiken zur Gewinnung von Tritium
Brutreaktion	Kernreaktion, die Tritium erzeugt, z.B. $\text{Li}^6(n,\alpha)t$
CAB-Modell	<u>C</u> ores and <u>B</u> onds; Modell zur funktionalen Beschreibung von Energieverlusten aus Rumpf- und Bindungsbeiträgen
Channelling	kanalisierte Bewegung von Projektilen in offenen Kristallrichtungen oder -ebenen
Cluster	ungeordnete Anhäufung von Defekten, s. Agglomerat
Compound-Ionisierungspotential	gegenüber der Bragg-Regel verbesserter und angepaßter Wert des Ionisierungspotentials
Compoundkern	Zwischenstufe in einer Kernreaktion
Computersimulation	Verfahren Nachbildung von physikalischen Vorgängen mit geeigneten Computermodellen
Coulombpotential	interatomares Potential zwischen zwei (Punkt)ladungen
Cutoff	Abbruch
Cutoff-Energie	minimale Energie für BCA-Simulation
Cutoff-Länge	Abbruchkante des Coulombpotentials bei der approximativen Berechnung des Zeitintegrals
<i>ddf</i>	<u>d</u> isorder <u>d</u> efect <u>f</u> raction: Erzeugung von Gitterfehlbesetzungen
Debye-Temperatur	kennzeichnet Energie, oberhalb derer keine Phononen im Debye-Modell angeregt werden
Defekt	hier: Punktdefekt, punktförmige Störung des idealen Kristallgitters
Defektpaar	Punktdefektpaar, Frenkeldefekt aus Leerstelle und Zwischengitteratom
DEMO	<u>D</u> emonstrationsreaktor; Vorstufe zum Leistungsreaktor auf Basis der (d,t)-Fusion
DEMO-relevant	Auslegungen, die für den DEMO-Reaktor relevant sind
deterministische Simulation	durch Anfangsbedingungen festgelegter Ablauf von Prozessen, im Gegensatz zu stochastischen S.
Diffusionsphase	Abschnitt der Stoßkaskadenentwicklung, der durch thermisch aktivierte Diffusion von Punktdefekten gekennzeichnet ist
displacement	Verlagerung
<i>dpa</i>	<u>d</u> isplacements per <u>a</u> tom; Erzeugung von Gitterdefekten
Dupletts	hier: zwei benachbarte Defekte
$E_{dam}$	Schädigungsenergie; elastische Energieüberträge auf Atomkerne innerhalb der ballistischen Phase
$E_d$	Verlagerungsschwelle, minimale Energie zur Erzeugung eines stabilen Defektpaars
Effektivitätsfaktor	$k$ in der NRT-Formel
Einzeldefekte	im Gegensatz zu Defektclustern weit separierte Defekte
Elektronengas	wichtiges Modell zur Beschreibung von dielektrischen Energieverlusten
Elementarzelle	Einheitszelle des Punktgitters
Embedded-Atom	Modell zur Beschreibung von Bindungszuständen im Kristall

ENDF/B-VI	aktuelle Version der evaluierten Kerndatenbibliothek <u>E</u> valuated <u>N</u> uclear <u>D</u> ata <u>F</u> ile
Energiecutoff	s. Cutoff-Energie
Energiepartition	Aufteilung der kinetischen Energie in elastischen und inelastischen Anteil beim Stoßvorgang (nach Lindhard)
Energieverlustmaximum	s. Abbremsmaximum
Energieverlustquerschnitt	s. Bremsquerschnitt
Ersetzungsstoß	Stoßvorgang, bei dem das Projektil am Targetort verbleibt
fcc	<u>f</u> ace <u>c</u> entered <u>c</u> ubic; kubisch flächenzentriert
Fehlbesetzung	Fremdatom auf einem regulären Gitterplatz
Fehlordnung	s. Fehlbesetzung
Fehlstelle	leerer Gitterplatz
Fermienergie	höchstes Energieniveau ( $T = 0K$ ) für Elektronen im Festkörper
Fermigeschwindigkeit	zur Fermienergie analoge Geschwindigkeit
Feststoffblanket	Blanket mit festem Brutmaterial (Brutkeramik)
Flächendefekt	zweidimensionale Störung des idealen Kristallgitters
Fokusionen	verlagerungsfreier Transport von kinetischer Energie
Fokussierung	Ausrichtung der Projektiltrajektorie in geeignete Kristallrichtungen (Channelling)
Frenkeldefekt	s. Defektpaare
Gauß-Mehler-Verfahren	numerisches Verfahren zur Quadratur von bestimmten Integralen
Gefügestruktur	Anordnung von Feinstrukturbereichen und Phasen
GENDF	<u>G</u> roupwise <u>E</u> NDF; Ausgabeformat des Codes NJOY (Modul GROUPR)
Gitteratomverlagerung	elementarer Vorgang in der ballistischen Phase der Kollisionskaskade
Gruppenstruktur	Energieintervalle für die Auswertung von Multigruppen Daten
Hartree-Fock-Verfahren	selbstkonsistente iterative Lösung der Schrödingergleichung für Elektronendichte eines Atoms
hcp	hexagonal close packed; hexagonal dichteste Kugelpackung
HCPB-Blanket	<u>H</u> elium <u>C</u> ooled <u>P</u> eeble <u>B</u> ed; Aufbau eines Feststoffblankets aus Kugelschüttungen von Beryllium und Brutkeramik mit Heliumkühlung
heteronuklear	Kombination unterschiedlicher Atomkerne
hkl	s. Millersche Indizes
Hochenergieansatz	für elektronischen Energieverlust, s. Bethe-Bloch-Formel
homonuklear	Kombination identischer Atomkerne
inelastische Kinematik	Berücksichtigung von lokalen Energieverlusten in der Stoßkinematik
Inhomogenität	(ausgedehnte) voluminöse Störung des Kristallgitters
interatomare Potential	Wechselwirkung zwischen Atomen
interkaskadisch	Beziehung zwischen verschiedenen Kaskaden
Interpolationsansatz	zur Überbrückung von Nieder- und Hochenergieansatz des inelastischen Energieverlusts
intrakaskadisch	Beziehung innerhalb einer Kaskade

Ionisierungspotential	gewichtetes Mittel der Energieüberträge im Elektronensystem des Targetmaterials
ITER	<u>I</u> nternational <u>T</u> hermonuclear <u>E</u> xperimental <u>R</u> eactor; internationales Fusionsprojekt
Kaskade	hier: Vermehrung von losgeschlagenen Gitteratomen durch Stoßvorgänge
Kaskadeneffekt	hohe Dichte von bewegten Atomen
Kaskadenentwicklung	räumlich-zeitliche Abfolge unterschiedlicher Prozesse in einer Kaskade
Kaskadenmorphologie	hier: Beschreibung der Defektstruktur nach Abschluß der ballistischen Phase
Kaskadenpeak	sprunghafter Anstieg von Verlagerungen im zeitlichen Verlauf der Kaskade
Kerndatenbibliothek	Sammlung von kernphysikalischen Daten, oft Wirkungsquerschnitte und Winkelverteilungen
Kinchin-Pease-Formel	Vorgänger der NRT-Formel zur Berechnung von Gitteratomverlagerungen
Kinematik	Beschreibung der räumlich-zeitlichen Bewegung von Teilchen
Kollisionskaskade	strenger Begriff für die Kollisionsphase einer atomaren Stoßkaskade
Kollisionsbereich	Raubereich, in dem Atomtrajektorien durch Kollision beeinflusst sind
Kollisionslängen	hier: verschiedene Abstände zur Beschreibung von binären Kollisionen
Kollisionsort	hier: Reduzierung des Stoßvorgangs auf einen Punkt im Raum
Kollisionsphase	s. ballistische Phase
Kombinationsregel	Vorschrift zur Bestimmung heteronuklearer Potentiale aus homonuklearen Teilen
konservative Kräfte	leiten sich aus einem Wechselwirkungspotential ab
Koordination	Zahl der nächsten Nachbarn eines Atoms im Gitter
Kristallebene	beschrieben durch Millersche Indizes (hkl)
Kristallgitter	Punktgitter eines kristallinen Festkörpers
Kristallrichtung	beschrieben durch Millersche Indizes [hkl]
Kristallit	hier: größerer Bereich eines Kristallgitters zur Modellierung des gesamten Kristalls
Kristallsuchradius	hier: maximale Entfernung zur Suche von Nachbarn im Kristallgitter
kubisch	Symmetrie mit $a=b=c$ ; $\alpha=\beta=\gamma=90^\circ$
Layer	hier: Beschreibung eines selbständigen Kristalls in einem Target aus vielen Komponenten
Leerstelle	s. Fehlstelle
Lindhard-Faktor	$k$ im LSS-Querschnitt
Lindhard-Gleichung	integro-differentielle Gleichung zur Berechnung der Schädigungsenergie in einer linearen Stoßkaskade
Lindhard-Plateau	Sättigung im Verlauf der Schädigungsenergie
Linienfehler	eindimensionale Störung des idealen Kristallgitters
Lithiummetasilikat	$\text{Li}_2\text{SiO}_3$
Lithiumorthosilikat	$\text{Li}_4\text{SiO}_4$ ; Referenz-Brutkeramik

LSS-Energieverlust	nach <u>L</u> indhard, <u>S</u> charff, <u>S</u> chiøtt; gültig unterhalb des Abbremsmaximums
MARLOWE	BCA-Simulationscode für atomare Kaskaden
MC-Code	<u>M</u> onte <u>C</u> arlo; Klasse von BCA-Codes für amorphe Festkörper
MD-Code	<u>M</u> olecular <u>D</u> ynamics; Simulationscodes mit voller dynamischer Beschreibung
Mehrkörperpotential	interatomares Potential zwischen mehreren Atomen, verwendet in MD-Codes
Metasilikat	s. Lithiummetasilikat
Millersche Indizes	kleinstes gemeinsames Vielfaches von reziproken Achsenabschnitten im Kristallgitter
Mikrostruktur	Anordnung mikroskopisch kleiner Elemente im Kristallgitter
Molekulardynamik	volle dynamische Beschreibung durch gekoppelte klassische Bewegungsgleichungen
Molière-Potential	interatomares, abgeschirmtes Coulombpotential
monoklin	Symmetrie mit $a \neq b \neq c$ ; $\alpha = \beta = 90^\circ$ , $\gamma \neq 90^\circ$
Nachbarsuchradius	s. Kristallsuchradius
Nächster Nachbar	Nachbar eines Gitteratoms mit kleinstem Abstand
Neutronenmultiplier	Material, das über geeignete Kernreaktionen Neutronen vervielfachen kann
Ångstrom [Å]	1 Å = 0,1 nm
Nichtgitteratom	s. Zwischengitteratom
Niederenergieansatz	s. LSS-Energieverlust
NJOY	Processing Code für Kerndaten
NRT-Modell	nach <u>N</u> orgett- <u>R</u> obinson- <u>T</u> orrens: Vorschrift zur Berechnung von Gitteratomverlagerungen (modifizierte Kinchin-Pease-Formel)
Oen-Robinson-Ansatz	Beschreibung des lokalen Energieverlust in exponentieller Abhängigkeit von der Apsis
Oktaeder	von acht gleichseitigen Dreiecken begrenzter Körper
orthorhombisch	Symmetrie mit $a \neq b \neq c$ ; $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$
Orthosilikat	s. Lithiumorthosilikat
Outboard-Blanket	Blanket auf der äußeren Seite eines Torus
Paarpotential	Wechselwirkung von jeweils zwei Partnern
PDATA	Programm zur Auswertung von MARLOWE-Kaskaden
PDS	<u>P</u> rimary <u>D</u> efect <u>S</u> tate; primärer Defektzustand
PKA	<u>P</u> rimary <u>K</u> nock-On <u>A</u> tom; primäres Rückstoßteilchen
Plateau-Bereich	s. Lindhard-Plateau
PLYGENDF	Programm zur Aufbereitung von GENDF-Daten
Potentialcutoff	Cutoff-Länge
Pseudo-Debye-Temperaturen	Temperaturen, die zur Auswertung von thermischen Amplituden verwendet werden können
Punktdefekt	nulldimensionale Störung des idealen Kristallgitters

quasielastisch	hier: elastische Kinematik unter Berücksichtigung einer inelastischen Energiekorrektur
Quasisimultanität	hier: gleichzeitige Auswertung von Kollisionen, die nahezu simultan sind
Rekombination	Ausheilung von Defektpaaren
Relaxationsphase	Abschnitt der Kollisionskaskadenentwicklung
Rückstoßdichte	Energiespektrum der verlagerten Atome in der Kaskade
Rückstoßenergiespektrum	s. Rückstoßdichte
Schädigungscode	Computerprogramm zur Berechnung von Schädigungsparametern
Schädigungsenergie	s. $E_{dam}$
Schädigungsenergiequerschnitt	$\sigma_{dam}$ ; Pseudowirkungsquerschnitt für Erzeugung von Schädigungsenergie
Schädigungsfunktion	Sammelbegriff für Schädigungsenergie und Anzahl der Defekte als Funktion der PKA-Energie
Schädigungsquerschnitte	Sammelbegriff für Schädigungsenergie- und Verlagerungsquerschnitt
Schwellenenergie	s. $E_d$
Simultanität	s. Quasisimultanität
Singlett	hier: Einzeldefekt
SPECOMP	Schädigungscode für Verbindungen
SPECTER	Schädigungscode
Stapelfehler	Störung in der Abfolge von Kristallebenen
Stoßapsis	s. Apsis
Stoßentfernung	s. Kollisionslänge
Stoßintegral	Streuwinkel im Schwerpunktsystem
Stoßketten	Aneinanderreihung von Stößen zwischen Nachbaratomen im Gitter
Strahlenschädigung	Oberbegriff für durch Bestrahlung entstehende Materialveränderungen
Subgitter	Teilmenge aller Gitterlagen für eine Atomspezies
Subkaskade	abgegrenzter größerer Teil einer Kaskadenstruktur
substitutionell	ein Gitteratom ersetzend
Target	hier: Gitteratom als Stoßpartner eines Projektils
TB	<u>T</u> ight <u>B</u> inding; Modell zur Beschreibung von Atombindungen
Tetraeder	von vier gleichseitigen Dreiecken begrenzter Körper
Thomas-Fermi-Potential	interatomares Potential
Trajektorie	Bahn eines Teilchens
Triplett	hier: Cluster mit 3 Defekten
Tritiumbrüter	Brutmaterial für Tritiumproduktion
Überbrückungsmodell	nach Biersack und Varelas; Interpolationsverfahren zwischen Hoch- und Niederenergieansatz des inelastischen Energieverlusts
Verlagerung	Freisetzung eines Atoms von seinem Gitterplatz
Verlagerungsquerschnitt	$\sigma_D$ ; Pseudowirkungsquerschnitt für die Erzeugung von Verlagerungen
Verlagerungsrate	s. $dpa$

---

Verlagerungsschwelle	s. $E_d$
Versetzung	Linienfehler im Kristall
Void	Hohlraum
Voidanteil	hier: Anteil unbesetzter Gitterplätze
Voidgitterplatz	definierter Gitterplatz ohne atomare Besetzung
Voidlayer	Layer ohne atomare Besetzung
Wegzeitdifferenz	Unterschied in der für eine fixierte Wegstrecke aufzubringende Flugzeit
ZBL	nach <u>Ziegler-Biersack-Littmark</u> ; interatomares Potential
Zeitintegral	für Wegzeitdifferenz eines wechselwirkenden und eines vorüberfliegenden Teilchens
Zentralpotential	Potential, das nur vom Abstand zum Wechselwirkungszentrum abhängt
Zweikörperkinematik	Kinematik binärer Stöße
Zwischengitteratom	Atom, das einen Nichtgitterplatz belegt.