



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH

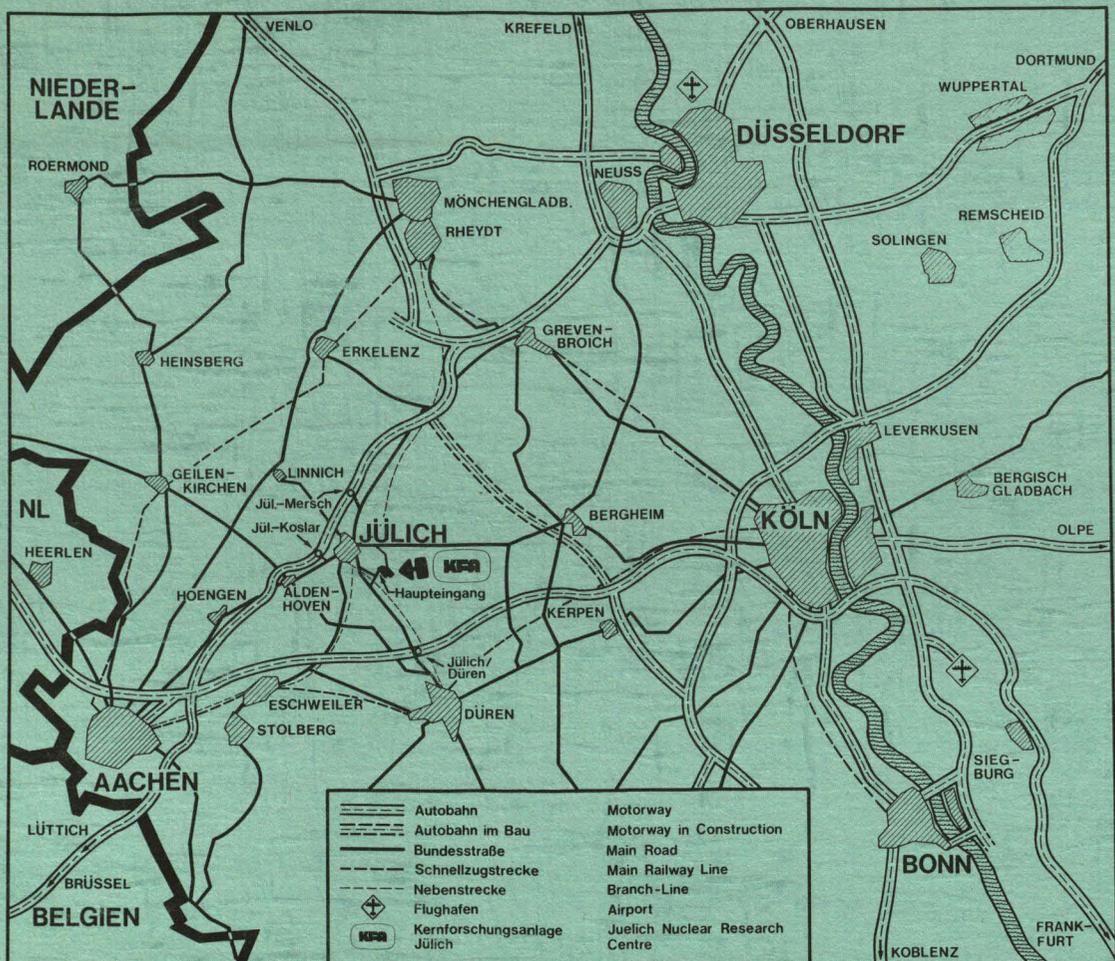
Institut für Festkörperforschung

**Helium - Diffusion in Nickel bei hohen
Temperaturen**

von

V. Philipps

Jül - 1679
September 1980
ISSN 0366 - 0885



Als Manuskript gedruckt

Berichte der Kernforschungsanlage Jülich - Nr. 1679

Institut für Festkörperforschung Jül - 1679

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH

Postfach 1913 · D-5170 Jülich (Bundesrepublik Deutschland)

Telefon: 024 61/611 · Telex: 833 556 kfa d

Helium-Diffusion in Nickel bei hohen Temperaturen

von

V. Philipps

D 82 (Diss. T.H. Aachen)

Abstract

Helium has been implanted at certain temperatures between 800 and 1250°C into single and polycrystalline Ni-samples with implantation depths between 15 and 90 μm . Simultaneously the helium reemission from the sample is measured by a mass-spectrometer. It has been shown that the time dependence of the observed reemission rate is governed by volume diffusion of the helium. Measuring this time dependence as a function of temperature the helium diffusion constant has been determined to

$$D_{\text{He}} = 10^{-2.2 \pm 0.3} \cdot e^{0.81 \pm 0.04 \text{ eV}/k \cdot T} \text{ cm}^2/\text{sec}$$

The He-diffusion is interpreted as a interstitial diffusion hindered by thermal vacancies. Within this model the measured activation energy can be identified with the difference of the energy for dissoziation of a helium atom from its substitutional lattice site, $E_{\text{He(S)}}^{\text{diss}}$, and the vacancy formation energy, E_{V}^{F} . The dissoziation energy, $E_{\text{He(S)}}^{\text{diss}}$ of ≈ 2.4 eV, given by the difference $E_{\text{He(S)}}^{\text{diss}} - E_{\text{V}}^{\text{F}} = 0.81$ eV, is in good agreement with release measurements.

Depending on the implantation depth more or less of the implanted helium remains in the sample and forms large helium bubbles. Comparing single and polycrystalline samples, more He remains in the latter case. This indicates that the helium bubbles are nucleated heterogeneously.

Gliederung

	Seite
I. Einleitung	1
II. Meßprinzip und Meßapparatur	5
1. Probenaufbau und Probenkühlung	5
2. Probenheizung und Temperaturregelung	7
3. Temperaturmessung	8
4. Temperaturverhalten	9
5. Meßkammer	10
6. Strahlführung und Strahlstrommessung	13
III. Meßergebnisse: Gleichgewichtssignal j_{∞} und He-Senken	14
1. Dosisabhängigkeit des Gleichgewichtssignals	15
2. Mikroskopische Untersuchung der He-Senken	18
3. Nukleation und Wachstum der He-Blasen	23
4. Temperaturabhängigkeit des Gleichgewichtssignals j_{∞}	25
IV. Meßergebnisse: Zeitverhalten des Heliumsignals	27
1. Bestimmung der Aktivierungsenergie	28
2. Bestimmung des Vorfaktors	33
V. Diskussion	37
1. Diffusionsmechanismus	41
1.1. Diffusion über den Leerstellenmechanismus	41
1.2. Behinderte Zwischengitterdiffusion	44

	Seite
VI. Zusammenfassung	49
VII. Anhang	
I. Blasenwachstum	51
II. Separation der Zeitkonstanten des Meßsystems von den Zeit- konstanten des He-Anstiegs	52
III. Lösung der Diffusionsgleichung mit inneren He-Senken	
1. homogene Senkenverteilung	56
2. deltaförmige Senkenver- teilung	58
VIII. Literaturverzeichnis	63

I. Einleitung

Ausgangspunkt dafür, das physikalische Verhalten von He in Metallen zu untersuchen, ist die Bildung von He durch (n,α) -Kernreaktionen in den Strukturmaterialien von Kernreaktoren. So beträgt beispielsweise die He-Produktionsrate in Edelstahl im Brutreaktor bis zu 10 ppm/Jahr /1/, in einem zukünftigen Fusionsreaktor etwa 500 ppm/Jahr /2/.

Die außerordentlich geringe Löslichkeit /3/ und die Wechselwirkung des He mit anderen Gitterdefekten führt zur Bildung von He-Blasen. Dadurch werden wichtige mechanische Werkstoffeigenschaften beeinträchtigt: so nimmt durch die Blasen das Volumen der Materialien zu; die an den Korngrenzen gebildeten He-Blasen verringern bei hohen Temperaturen die Duktilität der Metalle und führen zu vorzeitiger Ermüdung.

Obwohl das physikalische Verhalten von He in Metallen wesentlich durch seine Diffusionseigenschaften bestimmt ist, liegen darüber bislang keine zuverlässigen Daten vor. Der Grund dafür liegt ebenfalls in der geringen Löslichkeit und der starken Wechselwirkung des He mit Gitterdefekten. Wegen der geringen Löslichkeit muß das He durch Implantation oder durch eine Kernreaktion in das Metall eingebracht werden. Die Gitterdefekte, die dabei in der Regel produziert werden, bilden mit dem He die verschiedensten He-Defektkomplexe und beeinflussen dadurch die Diffusion des He entscheidend.

Experimentell wurde die Kinetik der He-Diffusion und Freisetzung in Metallen bislang hauptsächlich durch Entgasungsexperimente He-dotierter Proben untersucht /3,4,5,6,7,8,9,10,11,12/. Darüber hinaus lieferten Messungen von He-Dichteprofilen mittels kernphysikalischer Methoden Informationen über die He-Beweglichkeit /13,14,15,16/. Aus mikroskopischen Untersuchungen über das He-Blasenwachstum beim Anlassen dotierter Proben wurde indirekt auf die He-Diffusion geschlossen /17/.

Außerdem wurden die Wanderungs-, Bildungs- und Bindungsenergien der verschiedensten Komplexe, die das He mit Gitterdefekten bildet, theoretisch berechnet /18,19,20,21/. Die Rechnungen zeigen, daß zwischen den Leitungselektronen und dem Helium aufgrund seiner abgeschlossenen Elektronenschale eine starke Abstoßung existiert. Infolgedessen ergeben die Rechnungen übereinstimmend für die verschiedensten Metalle große Bildungsenergien des He im Zwischengitter (Ni: 4.52 eV) sowie große Bindungsenergien des substitutionellen He-Atoms an seinen Gitterplatz (Ni: 2.63 eV). Nach den Rechnungen kann eine Leerstelle bis zu sechs He-Atome binden. Dagegen sind die berechneten Aktivierungsenergien für die Zwischengitterdiffusion für alle betrachteten Metalle klein (Ni: \lesssim 0.6 eV) /22/.

Obwohl die berechneten Energien empfindlich von den verwandten Wechselwirkungspotentialen abhängen, stimmen sie aber qualitativ mit den bisherigen experimentellen Ergebnissen überein, die hauptsächlich aus Entgasungsexperimenten He-dotierter Proben erhalten wurden. In diesen Experimenten werden die He-dotierten Proben aufgewärmt und die He-Freisetzung als Funktion der Temperatur bzw. der Zeit untersucht. Werden bei der He-Dotierung Gitterdefekte erzeugt, zeigen sich verschiedene, überlappende Entgasungspeaks. Diese werden der Diffusion des He wie auch der Dissoziation der verschiedensten He-Defektkomplexe zugeordnet. Allerdings können derartige Experimente keine eindeutige Zuordnung zwischen Entgasung und Dissoziation- bzw. Diffusionsmechanismus treffen. Aktivierungsenergien werden zumeist lediglich aus der Temperaturlage der Entgasungspeaks abgeschätzt. Diese ist aber nicht nur von der Aktivierungsenergie abhängig, sondern auch der Zahl der thermisch aktivierten Schritte bis zur Freisetzung, der Versuchsfrequenz für diesen Sprung, sowie von der Wahrscheinlichkeit, auf dem Weg zur Oberfläche an Senken eingefangen zu werden. Diese Größen sind meist nicht genau oder gar nicht bekannt. Für den Entgasungspeak, der der Diffusion von He über Leerstellen /9/ bzw. von anderen Experimentatoren der Dissoziation des substitutionellen He von seinem Gitterplatz /11,10/ zugesprochen wird, werden Aktivierungsenergien zwischen 2.0 und 2.5 eV in Nickel angegeben.

Kornelson /6/ versucht in seinen Experimenten einige der oben angedeuteten Unsicherheiten zu vermeiden, indem er das He mit Energien unterhalb der Schwellenenergie für Defekterzeugung in das Metall einschießt, die Gitterdefekte separat durch Vorbestrahlung erzeugt und die He-Freisetzung sowohl mit unterschiedlichen Aufheizraten als auch isotherm bei unterschiedlichen Dosen untersucht. Dadurch kann er bestimmte Entgasungspeaks mit größerer Sicherheit der Dissoziation bestimmter He- L_s -Komplexe zuordnen und genauere Aktivierungsenergien angeben ($E_{He(S)}^{diss} \approx 2.1$ eV). Eine Unsicherheit bei diesen Experimenten resultiert aus den äußerst geringen Eindringtiefen des implantierten He ($\approx 20 \text{ \AA}$), die einen Einfluß der nahen Oberfläche auf das Entgasungsverhalten nicht ausschließen lassen.

Die Diffusion interstitiellen Heliums glaubt man bei der Entgasung von Proben beobachtet zu haben, die durch den Zerfall gelösten Tritiums ohne die gleichzeitige Produktion von Gitterdefekten mit He beladen wurden. Die interstitielle Wanderungsenergie wird für Nickel zu ≈ 0.35 eV /37/ bzw. $0.4 - 0.5$ eV /7/ angegeben. Aber auch bei der Entgasung solchermaßen dotierter Proben wird bei tiefen Temperaturen nur ein Bruchteil des dotierten Heliums freigegeben. Der Verlust des Großteils des He an inneren Senken läßt sowohl die angegebenen Aktivierungsenergien wie auch die Zuordnung der Entgasung zu der Wanderung interstitiellen Heliums unsicher erscheinen.

Daneben wurde auch die isotherme Entgasung He-dotierter Proben für verschiedene Temperaturen untersucht /23,24/. Derartige Messungen erlauben im Prinzip eine direkte Messung der Aktivierungsenergie der Diffusion. Die Auswertung wird allerdings dadurch erschwert, daß die Diffusion durch einen sehr komplexen und temperaturabhängigen Aufbau von inneren Senken beeinflusst wird.

Für He-Konzentrationen >0.1 % kann man He-Dichteverteilungen mit kernphysikalischen Methoden ausmessen. Durch Untersuchung der Temperaturabhängigkeit der He-Verteilung lassen sich qualitative Aussagen über die He-Beweglichkeit gewinnen. Man beobachtet dabei, daß der durch die monoenergetische Implantation aufgebaute He-Peak mit der Temperatur abnimmt, ohne daß eine Verbreiterung der Verteilung erfolgt. Dies wird dadurch gedeutet,

daß die Diffusion des He durch einen thermisch aktivierten einmaligen Dissoziationsschritt des He von inneren Senken bestimmt wird.

Die bisherigen Experimente haben wesentliche Informationen über das Diffusionsverhalten des He in Metallen erbracht. Sie erlauben jedoch aus verschiedenen oben angedeuteten Gründen weder den zugrundeliegenden Diffusionsmechanismus noch seine Aktivierungsenergie eindeutig zu bestimmen.

Aus diesen Gründen haben wir die Diffusion des He unter Bedingungen zu bestimmen versucht, die die Nachteile bisheriger Experimente möglichst vermeiden.

Die He-Implantation und die gleichzeitige Messung der He-Diffusion erfolgt dabei stets nur bei hohen Temperaturen ($> 800^{\circ}$). Dadurch wird der Einfluß der bestrahlungsinduzierten Defekte auf die Diffusion vernachlässigbar und der Aufbau stabiler innerer He-Senken erschwert. Die He-Diffusion wurde über definierte makroskopische Distanzen zwischen 18 und 82 μm verfolgt.

II. Meßprinzip und Meßapparatur

Massive Ni-Proben werden in eine Ultra-Hochvakuum-Meßkammer montiert; die Kammer ist an das Jülicher Kompaktzyklotron über ein für α -Teilchen durchlässiges Fenster angekoppelt. Die Proben werden mit α -Teilchen bestimmter Energie mit entsprechenden Eindringtiefen von 18 bis 82 μm implantiert. Die Implantation erfolgt dabei so, daß bei einer konstanten hohen Probentemperatur zu einem bestimmten Zeitpunkt $t = t_0$ der Implantationsstrom eingeschaltet wird und dann mit konstanter Stromstärke fortwährend weiter implantiert wird. Bei den hohen Probentemperaturen sind die implantierten He-Teilchen beweglich, so daß sie an die nahe Oberfläche diffundieren, wo sie aus der Probe austreten und massenspektrometrisch nachgewiesen werden. Der Zeitverlauf dieses He-Signals am Massenspektrometer nach Einschalten des Implantationsstromes ist durch die Diffusionszeit des He zur Oberfläche charakterisiert und ermöglicht so die Bestimmung der He-Diffusionskonstante.

1. Probenaufbau und Probenkühlung

Die Diffusion wurde an verschiedenen polykristallinen und an einer einkristallinen Probe untersucht. Die polykristallinen Proben wurden aus massiven zylindrischen Ni-Stäben, geliefert von MRC mit einer nominellen Reinheit von 99.99%, gefertigt. Nach einem etwa einstündigen Glühen bei 1200°C in einem Vakuum von $\sim 10^{-7}$ Torr betrug die Korngröße etwa 1 mm. Die Form der Probe ist in Abb. 1 gezeigt. Die Probe besteht aus einem 10 mm hohen zylindrischen Probenkopf, der über das 3 mm dicke Ni-Rohr an ein Kühlgehäuse angekoppelt ist. Das Kühlwasser wird über einen weiten Ringkanal eingespeist, strömt dann über einen 0.75 mm engen Spalt die Probe entlang und verläßt durch einen zweiten Ringkanal den Kühlkörper. Man erreicht damit eine homogene Kühlung von etwa $400 \text{ Watt}/1^{\circ} \Delta T$ bei einer Strömungsgeschwindigkeit von 2 m/sec /25/. Für die Diffusionsmessung am Ni-Einkristall wurde eine 4 mm dicke Scheibe mit einem Durchmesser von 18 mm von einem Ni-(111)-Einkristall, nominelle Rein-

heit von 99.998%, funkenerosiv abgetrennt, elektrochemisch poliert und auf die Stirnfläche eine Probe wie in Abb. 1 elektronenstrahlgeschweißt. Der Einkristall wurde beim Schweißen nicht zerstört.

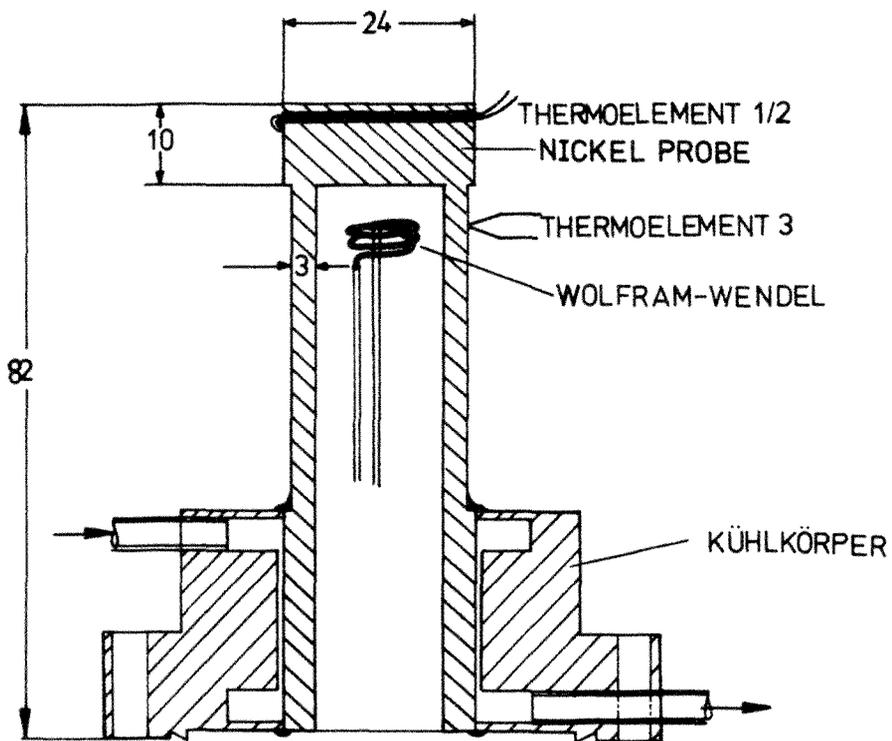


Abb. 1: Probe mit Kühlkörper

2. Probenheizung und Temperaturregelung

Die Proben werden innenseitig durch einen Elektronenstrahl geheizt. Als Elektronenquelle dient eine speziell an die Probengeometrie angepaßte Wolfram-Wendel. Die Wendel wird durch ein kommerzielles Elektronenstrahlnetzgerät mit einer Konstantspannung von 4000 V und variablem Heizstrom gespeist. Die Steuerung des Netzgerätes erfolgt mit dem in Abb. 2 gezeigten Regelkreis.

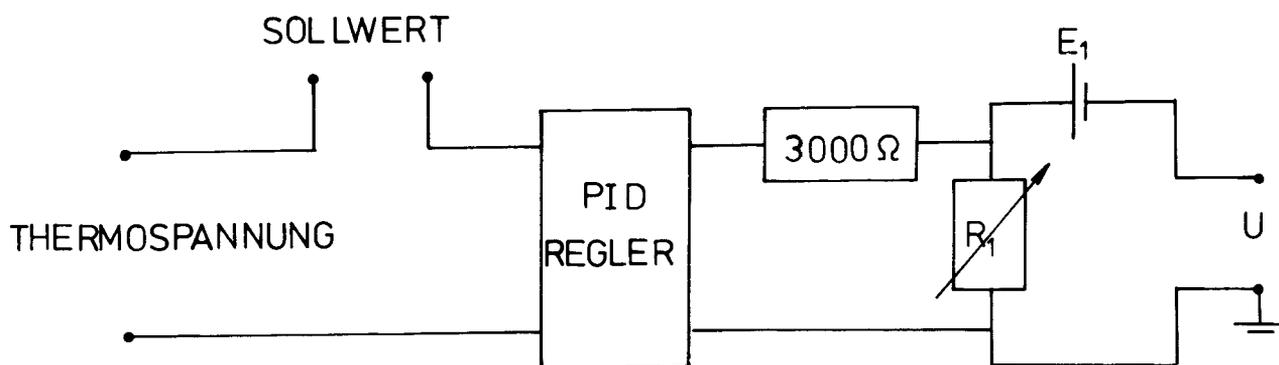


Abb. 2: Regelstrecke der Elektronenstrahlheizung

Die Probentemperatur wird mit Thermoelementen gemessen. Die Abweichung der Thermospannung vom Sollwert wird durch den Regler (Fa. Honeywell) verstärkt und in einen Steuerstrom (0 - 5 mA) mit bestimmter PID-Charakteristik umgewandelt. Der durch den Steuerstrom erzeugte Spannungsabfall an R₁ (0 - 100 Ω) liefert zusammen mit der Konstantspannungsquelle E₁ die Steuerspannung U

für das Netzgerät. Im Vakuumsystem der Elektronenstrahlheizung, das von dem Meßvakuum getrennt ist, wird ein Druck von etwa 10^{-6} Torr erreicht. Bei Temperaturen über etwa 1300° am Probenkopf wird infolge des erheblichen Dampfdruckes des Nickels das Vakuum am Probenkopf so schlecht, daß Spannungsüberschläge zwischen Wendel und Probe auftreten. Dies begrenzt die maximal erreichbare Temperatur auf etwa 1300°C .

3. Temperaturmessung

Als Thermoelemente wurden 0.35 mm dünne PtRh 6%/PtRh 30% Thermodrähte verwandt. Jeweils zwei Thermoelemente wurden an den Rand des Probenkopfes sowie ein Thermoelement an den Probenhals direkt in Höhe der Wolfram-Wendel punktgeschweißt. Um die Abkühlung der Kontaktstelle durch Wärmeleitung in den Thermodrähten zu minimieren, wurden diese in einer Bohrung quer durch den Probenkopf geführt (Abb. 1). Die Thermodrähte wurden über Ausgleichsleitungen in eine 0°C -Vergleichsstelle geführt. Große Sorgfalt muß auf die elektrische Isolation der Thermodrähte verwandt werden, da bei längerem Betrieb der Probe auf hohen Temperaturen sich durch die starke Ni-Verdampfung metallische Brücken bilden. Mit einem Infrarotpyrometer kann durch ein Quarz-Fenster über einen Ni-Spiegel die räumliche Temperaturverteilung der Probenoberfläche gemessen werden (Abb. 5). Der Spiegel ist wegen der starken Bedampfung des Quarz-Fensters bei direkter Beobachtung notwendig. Der Temperaturmeßfehler, der von den Thermoelementen herrührt, läßt sich durch den Vergleich zweier an dieselbe Stelle gepunkteten Thermopaare abschätzen. Er ist bis 1200°C kleiner 10°C . Dieser Wert ist mit dem vom Hersteller angegebenen Fehler vergleichbar.

4. Temperaturverhalten

Die Temperatur am Probenkopf in Abhängigkeit von der Heizleistung ist in Abb. 3 gezeigt. Durch Wärmeleitung wird etwa $0.21 \text{ Watt}/^{\circ}\text{C}$ an den Kühlkörper abgeführt. Der steilere Anstieg der Heizleistung ab etwa 900°C beruht auf der Wärmeabstrahlung der Probe.

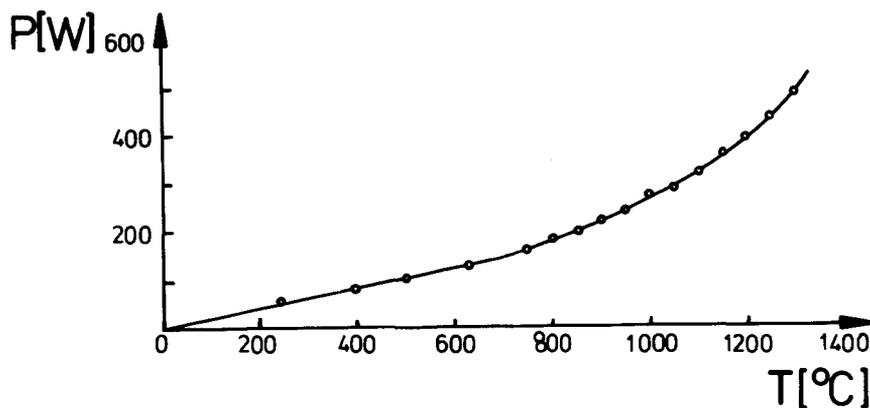


Abb. 3: Heizleistung P (Watt) in Abhängigkeit von der Temperatur des Probenkopfes

In Abb. 4 ist die Differenz der gemessenen Temperaturen am Rand des Probenkopfes und am Probenhals in der Höhe der Wolframwendel gezeigt. Bei niedrigen Temperaturen ist am Probenkopf die Temperatur größer als in Höhe der Wendel, bei höheren Temperaturen jedoch kleiner. Dieses Verhalten beruht darauf, daß die Heizleistung sowohl direkt an den Probenkopf wie auch an den Probenhals abgegeben wird. Bei niedrigen Temperaturen staut sich so die Wärme am Probenkopf, während sie bei höheren Temperaturen, bei denen die Wärmeabstrahlung des Probenkopfes ins Gewicht fällt, vom Probenhals in Richtung Probenkopf fließt. Dies zeigt, daß die Heizleistung größtenteils an die Probenwand übertragen wird. Dadurch und durch die massive Form des Probenkopfes wird der radiale Temperaturgradient über die Probenoberfläche klein.

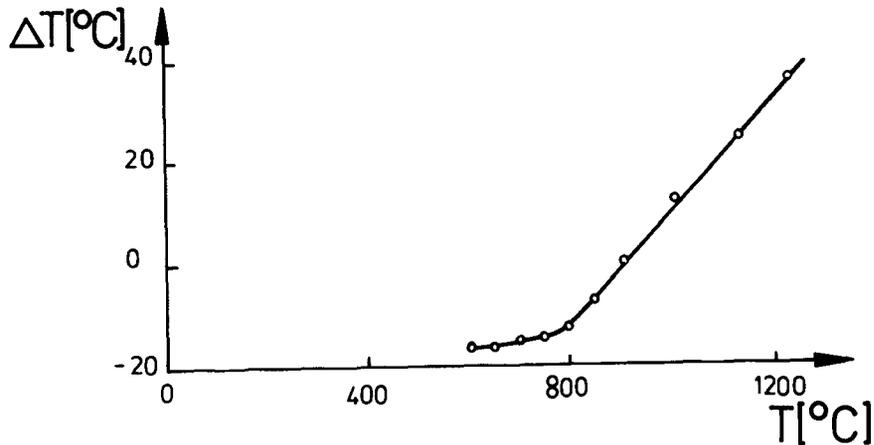


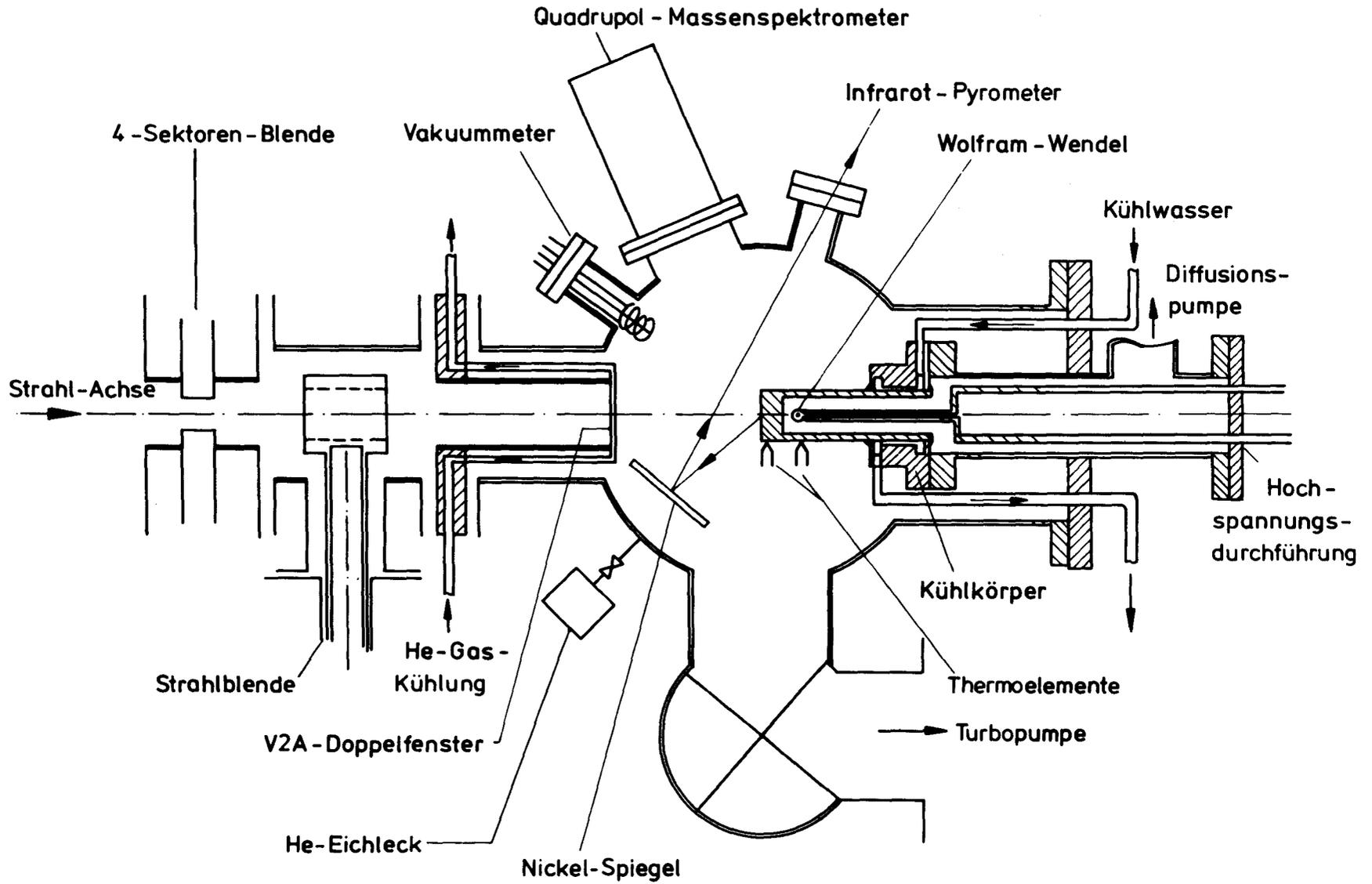
Abb. 4: Temperaturdifferenz $\Delta T = T_3 - T_1$ der Temperatur am Probenhals T_3 und am Probenkopf T_1 in Abhängigkeit von T_1 .

Bei 1000°C wurde mit dem Pyrometer eine radiale Abweichung $< 15^\circ\text{C}$ gemessen. Zur Aufrechterhaltung einer stationären Temperatur am Probenkopf ist eine so hohe Heizleistung erforderlich, daß die vom α -Strahl an die Probe abgegebene Leistung (typischerweise ~ 20 Watt) vergleichsweise klein ist. Dies, im Zusammenwirken mit der hohen Wärmekapazität des Probenkopfes, führt zu minimalen Temperaturerhöhungen bei Einschalten des α -Strahles ($\leq 3^\circ\text{C}$).

5. Meßkammer

Meßkammer und Strahlführungssystem sind in Abb. 5 skizziert. Die Probe ist in eine Ultrahochvakuumkammer eingebaut. Das Vakuum der Meßkammer ist von dem Beschleunigervakuum durch ein Doppelfenster, bestehend aus zwei Edelstahlfolien (24 μm dick, 28 ϕ , 2 mm Abstand), abgetrennt. Gegen die Strahlauflheizung der Folien wird das Doppelfenster innenseitig durch He-Gas gekühlt. Das He wird durch einen Kompressor über einen Wärmetauscher umgewälzt.

Abb. 5: Meßkammer und Strahlführungssystem



Die UHV-Kammer hat ein Volumen von etwa 4.5 Liter und ist fortwährend über das Eckventil (E) an eine Turbomolekularpumpe mit einer nominellen Saugleistung von 75 Liter/sec. angeschlossen. Nach dem Ausheizen bei etwa 150°C für mehr als 12 Stunden wird ein Enddruck von etwa 1×10^{-8} Torr erreicht. Die Kammer wird außenseitig luftgekühlt, so daß auch bei Probertemperaturen $> 1100^\circ\text{C}$ der Druck besser als 10^{-7} Torr bleibt.

Der He-Partialdruck wird mittels eines Quadrupolmassenspektrometers Q 200 der Firma Leybold Heraeus gemessen. Die untere Nachweisgrenze des Massenspektrometers liegt bei der vorgegebenen Saugleistung der Pumpe bei einer He-Quellenstärke von etwa 1×10^{-10} Torr Liter/sec. bzw. einem He⁺⁺-Strom von $\approx 10^{-9}$ A. Die Empfindlichkeit des Massenspektrometers wurde vor und nach jedem Experiment mit einem kommerziellen He-Eichleck geprüft. Abweichungen in der Nachweisempfindlichkeit, hervorgerufen durch veränderte Massenseparation des Quadrupols, sind innerhalb 12 h kleiner als 5 %. Mittels eines schnellschließenden Elektromagnetventils zwischen Eichleck und Meßkammer kann das Zeitverhalten der Apparatur bestimmt werden. Der am Massenspektrometer angezeigte He-Partialdruck folgt dabei gut einem exponentiellen Abfall mit der Zeit

$$p_{\text{He}} = p_0 e^{-\frac{t}{a}} \quad (1)$$

Die Zeitkonstante a des Systems ist durch die effektive Saugleistung S , das Kammervolumen V und durch die Verstärkung des Massenspektrometers bestimmt.

Tabelle 1

Verstärkung	a sec
10^{-11}	0.14
10^{-12}	0.2
10^{-13}	1.4

Zeitkonstante des Systems bei unterschiedlicher Verstärkereinstellung des Massenspektrometers.

Da die Diffusionszeiten des Heliums nicht sehr viel größer als die Zeitkonstante a der Meßapparatur sind, muß diese zur Bestimmung der Diffusionskonstante von den gemessenen Zeiten $\tau_{1/2}$ absepariert werden (siehe Anhang II). Die so korrigierten Anstiegszeiten werden im folgenden $\tau_{1/2}^*$ genannt.

6. Strahlführung und Strahlstrommessung

Der vom Strahlführungssystem des Zyklotrons aufgefächerte α -Strahl wurde zunächst durch eine 4-Sektoren Blende auf einen Durchmesser von 16 mm ausgeblendet. Diese diente gleichzeitig zur Kontrolle der räumlichen Homogenität des α -Strahles. Danach fällt der Strahl auf eine elektrisch isolierte Blende, mit der der Strahlstrom gemessen wird. Die Implantation der Probe wird durch ein schnelles Schwenken dieser Blende aus dem Strahl gestartet.

III. Meßergebnisse: Gleichgewichtssignal j_{∞} und He-Senken

Der zeitliche Verlauf des He-Signals am Massenspektrometer nach Einschalten des α -Strahls und der anschließende Abfall des Signals nach dem Abschalten ist beispielhaft in Abb. 6 gezeigt. Die Kurven sind für eine Eindringtiefe von $82 \mu\text{m}$ an einer polykristallinen Probe gewonnen. Man erkennt, daß der Anstieg der He-Freisetzung verzögert ist und schließlich in ein Gleichgewichtssignal j_{∞} übergeht. Die Anstiegsverzögerung wird durch die Zeitkonstanten $\tau_{1/2}$ charakterisiert, die als die Zeit zum Erreichen des halben Gleichgewichtssignals j_{∞} definiert sind. Die Zeitkonstanten liegen bei den gezeigten Messungen entsprechend den Meßtemperaturen zwischen 3 und 6 sec. und sind innerhalb der Fehlergrenzen gleich beim Ein- und Ausschalten des Implantationsstromes.

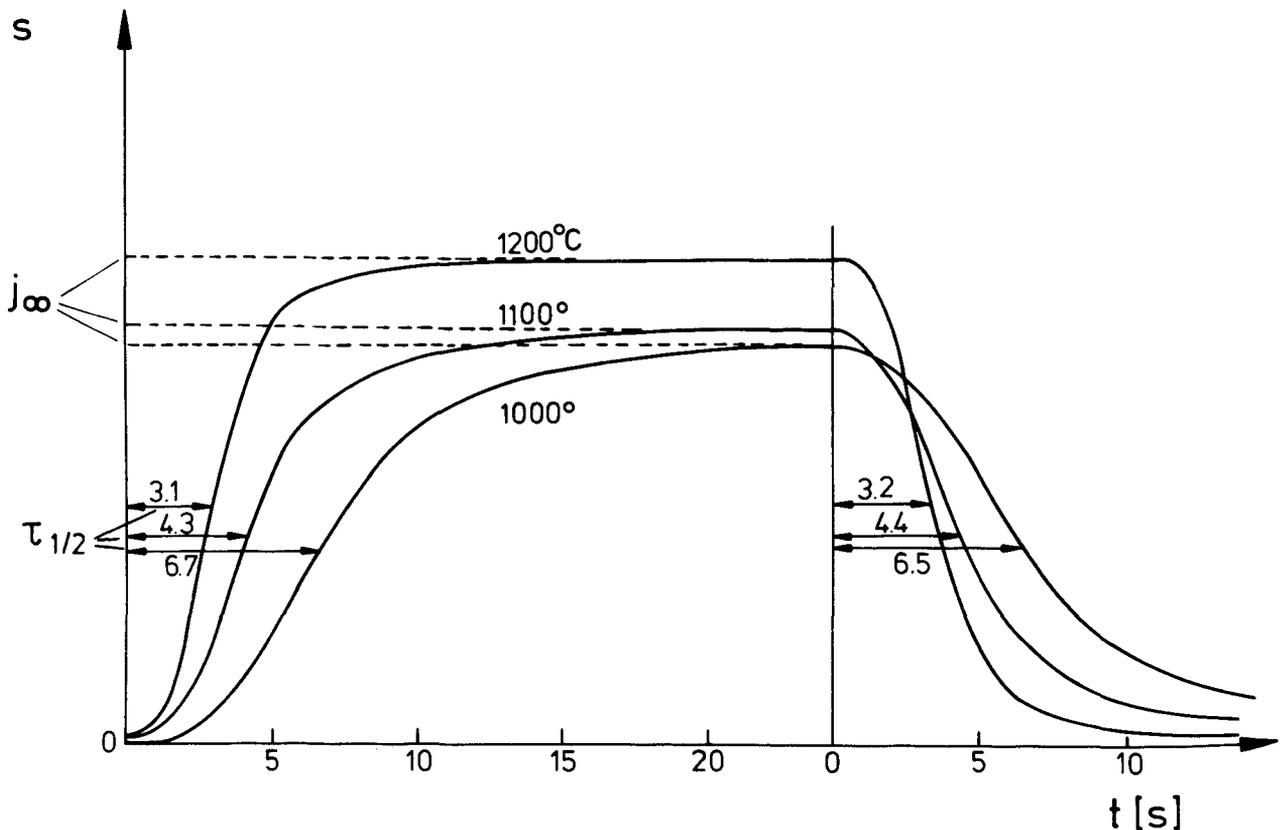


Abb. 6: Typische Zeitverläufe des He-Signals $s(t)$ am Massenspektrometer nach Einschalten und nach Abschalten des Implantationsstromes p

Das Gleichgewichtssignal j_{∞} erreicht im vorliegenden Fall nur etwa 2% vom Implantationsstrom p . Daraus muß auf die Existenz innerer He-Senken geschlossen werden; diese konnten im Licht- und Elektronenmikroskop als große He-Blasen identifiziert werden.

Ähnliche Kurven, wie in Abb. 6 gezeigt, wurden für 3 polykristalline Proben, hergestellt aus dem gleichen Ausgangsmaterial, und eine einkristalline Probe gewonnen. Es wurde bei Eindringtiefen von $x_p = 18, 48$ und $82 \mu\text{m}$ und im Temperaturbereich zwischen 1250° und 700°C gemessen. Im folgenden soll zunächst das Verhalten des Gleichgewichtssignals j_{∞} und damit zusammenhängend der Aufbau der inneren Senken behandelt werden. In Kap. IV wird dann die Abhängigkeit der Zeitkonstanten von der Temperatur, der Implantationstiefe und den inneren Senken diskutiert.

1. Dosisabhängigkeit des Gleichgewichtssignals

Typische Messungen des Verlaufs des Gleichgewichtssignals j_{∞} als Funktion der Implantationsdosis sind in Abb. 7 gezeigt. Während Kurve 1 aus einer Bestrahlung bei konstanter Temperatur und einer Implantationstiefe von $82 \mu\text{m}$ gewonnen wurde, stellt Kurve 2a das Gleichgewichtssignal bei wechselnden Temperaturen im Temperaturbereich $\geq 950^{\circ}\text{C}$ und einer Eindringtiefe von $48 \mu\text{m}$ dar. Beim Temperaturwechsel wurde die Implantation jeweils für 2-5 Minuten unterbrochen. Danach beobachtet man ein kleineres Gleichgewichtssignal; das heißt, die Absorptionsfähigkeit der vorhandenen Senken steigt während den Zeiten, die zum Temperaturwechsel benötigt werden, an.

Der gesamte Verlauf des Gleichgewichtssignals j_{∞} ist für Kurve 1 und Kurve 2 qualitativ gleich: j_{∞} fällt bis zu Dosen $\sim 10^{15} \text{He}/\text{cm}^2$ stark ab, um sich dann mehr und mehr einem konstanten Wert anzunähern. In Kurve 2b ist j_{∞} bis zu Konzentrationen von $3 \times 10^{16} \text{He}/\text{cm}^2$ gemessen worden; dies ist in der rechten Hälfte von Abb. 7 in einem hinsichtlich der Dosis verkleinerten Maßstab zu sehen.

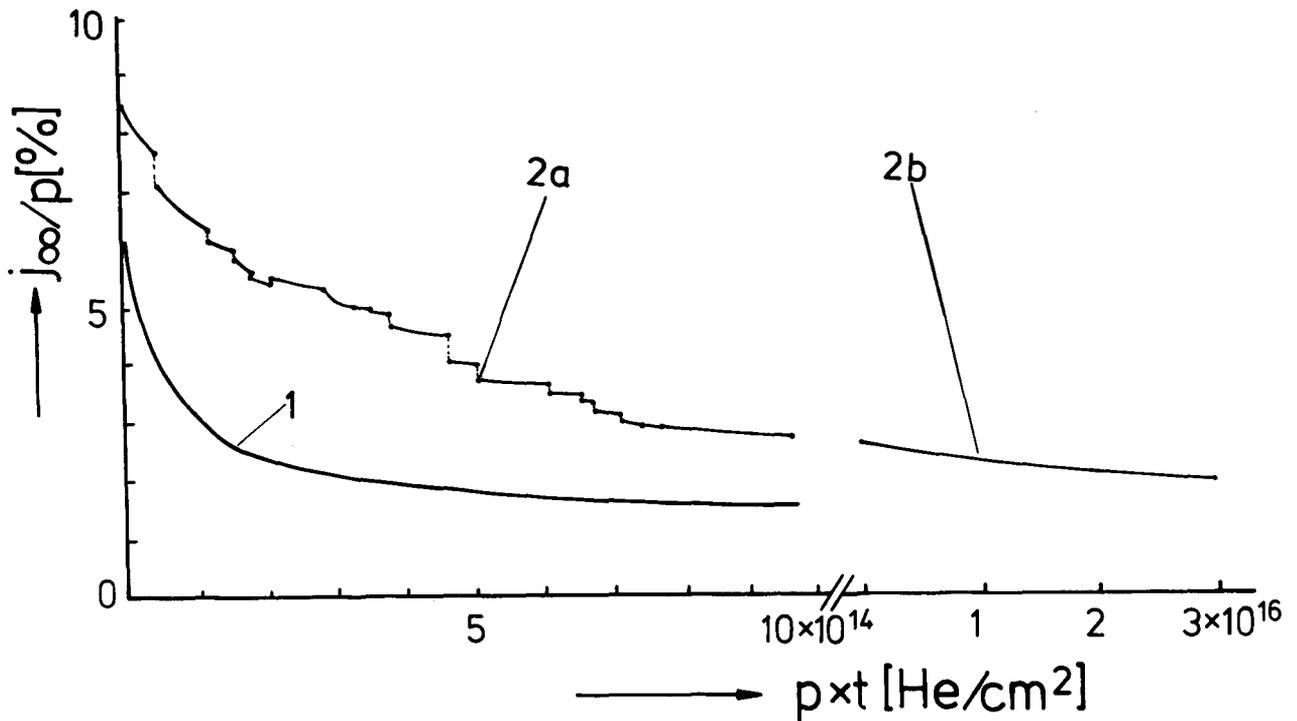


Abb. 7: Gleichgewichtssignal j_{∞} in Abhängigkeit von der Bestrahlungsdosis $p \cdot t$ für polykristalline Proben

- 1: Implantationstiefe 82 μm $T = 1100^{\circ}\text{C}$
- 2a: Implantationstiefe 48 μm wechselnde Temperaturen
- 2b: Implantationstiefe 48 μm $T = 1100^{\circ}\text{C}$

Der Aufbau der inneren Senken geht offensichtlich bei Beginn der Implantation zunächst sehr schnell vor sich; später scheinen die Senken nurmehr langsam zu wachsen. Das Gleichgewichtssignal nach Dosen $\approx 10^{15} \text{ He/cm}^2$ war für verschiedene Proben gut reproduzierbar und für die polykristallinen Proben nurmehr von der Implantationstiefe abhängig.

In Tabelle 2 sind die Mittelwerte der Gleichgewichtssignale j_{∞} der polykristallinen Proben, die sich nach Dosen größer $\approx 10^{15} \text{ He/cm}^2$ einstellten, zusammengestellt.

Tabelle 2

x_p	$ \mu\text{m} $	j_{∞}/p [%]	
82		1.8 ± 1.2	Gleichgewichtssignal j_{∞} nach Dosen $\geq \approx 10^{15} \text{ He/cm}^2$ für unterschiedliche Implantationstiefen.
48		4.5 ± 1.5	
18		36 ± 14	

Aus der Tabelle wird deutlich, daß mit abnehmender Eindringtiefe mehr He-Atome die Oberfläche erreichen, was bei einer etwa konstanten Dichte der inneren Senken anschaulich zu erwarten ist.

In Abb. 8 ist j_{∞} als Funktion der Dosis für die einkristalline Probe gezeigt. Die Implantationstiefe betrug $48 \mu\text{m}$; die Bestrahlung erfolgte anfangs bei unterschiedlichen Temperaturen jeweils ca. 2 Minuten. Man sieht, daß im Vergleich zu den polykristallinen Proben bei gleicher Implantationstiefe bei der einkristallinen Probe sich ein deutlich größeres Gleichgewichtssignal j_{∞} ergibt. Zu Beginn werden über 50% des implantierten He freigesetzt und nach Dosen über 10^{16} He/cm^2 immer noch $\sim 10\%$ verglichen mit 2-3% für die polykristalline Probe.

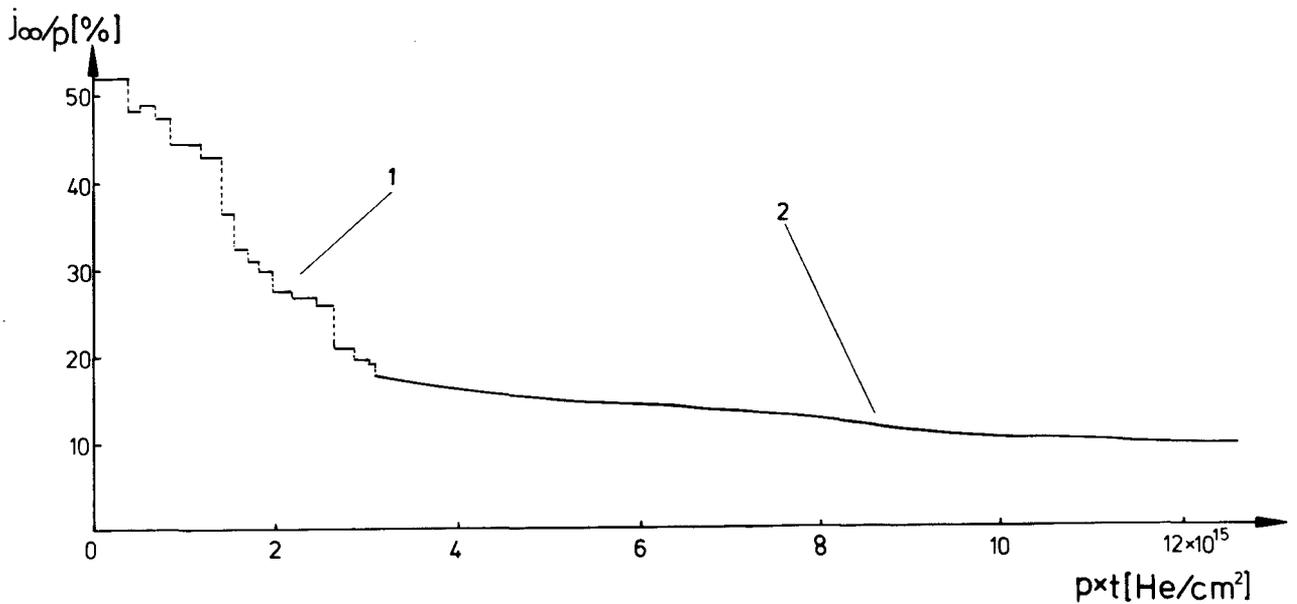


Abb. 8: Gleichgewichtssignal j_{∞} in Abhängigkeit von der Bestrahlungsdosis $p \cdot t$ für die einkristalline Probe.

- 1: wechselnde Temperaturen $\geq 900^{\circ}\text{C}$
- 2: $T = 1100^{\circ}\text{C}$

2. Mikroskopische Untersuchung der He-Senken

Um Art und Verteilung der Senken zu untersuchen, wurden 2 polykristalline Proben, die bei $x_p = 48 \mu\text{m}$ implantiert worden waren, mikroskopisch untersucht. Dazu wurde eine 1 mm dicke Ni-Scheibe von der implantierten Probenoberfläche abgesägt und diese dann parallel zur Implantationsrichtung geschnitten. Die dabei entstehende Schnittfläche wurde mechanisch und anschließend elektrochemisch poliert. Bild 1 zeigt eine lichtmikroskopische Aufnahme einer Probe, die bei 1100° mit einer Dosis von $6 \times 10^{15} \text{ He/cm}^2$ implantiert wurde. Auf der bestrahlten Probenseite sind deutlich große Poren mit einem Dichtemaximum etwa $44 \mu\text{m}$ von der Probenoberfläche entfernt zu sehen. Diese Distanz ist in guter Übereinstimmung mit der nominellen Implantationstiefe von $48 \mu\text{m}$. Zur Oberfläche hin nimmt die Porendichte langsam ab. Wegen der hohen Bestrahlungstemperatur von 1100°C kann es sich nur um mit He-gefüllte Blasen handeln, da Voids oberhalb etwa $0.6 T_{\text{Sch}}$ thermisch nicht stabil wären. Bild 2 und 3 zeigen die Blasen in stärkeren Vergrößerungen; sie wurden mit dem Rasterelektronenmikroskop gewonnen. Man erkennt, daß die Blasen nicht sphärisch sind, sondern durch Gitterflächen begrenzt werden. Der mittlere Blasendurchmesser $2r_B$ beträgt etwa $2 \mu\text{m}$. Wenn man annimmt, daß alle Blasen in einer Schichtdicke, die dem doppelten Blasendurchmesser entspricht, im Mikroskop sichtbar werden, ergibt sich aus den Bildern eine Blasenzahl b von etwa $3 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$.

Nimmt man an, daß die Tiefenverteilung der Blasen durch eine δ -Funktion bei $x = x_p$ beschrieben wird, so entspricht der beobachteten Blasenzahl b ein Absorptionskoeffizient $A_1 = 4 \pi r_B b$ von $3.8 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$. Denkt man sich die Blasen über eine Tiefe, die der dreifachen Eindringtiefe entspricht, homogen verschmiert, ergibt sich eine Blasendichte von $c_s = 2 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ und daraus ein Absorptionskoeffizient $A_2 = 4 \pi r_B c_s$ von $2.5 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$. Beide Absorptionskoeffizienten lassen sich auch aus dem Gleichgewichtssignal j_∞ , das am Ende der Implantation gemessen wurde, berechnen (siehe Anhang III). Sie ergeben sich zu $A_1 = 1 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$

und $A_2 = 6.6 \times 10^5 \text{ cm}^{-2}$. Berücksichtigt man die Unsicherheit, mit der die Ermittlung der Blasengröße und der Blasendichte aus den mikroskopischen Bildern behaftet ist, so ist nicht mehr als die beobachtete größenordnungsmäßige Übereinstimmung zu erwarten.

Aus der Gesamtzahl der He-Blasen und der implantierten Gesamtheliumdosis ergibt sich ferner die Zahl der He-Atome pro Blase zu 1.8×10^8 . Diese Zahl läßt sich mit der Anzahl n_{He} von He-Atomen vergleichen, die in einer Blase enthalten sein sollten, bei der der He-Gasdruck gerade der Oberflächenspannung der Blasen entspricht. Sie ergibt sich nach /26/

$$n_{\text{He}} = \frac{8 \pi \gamma}{3 k T} r_B^2 = 9 \cdot 10^8 \quad (2)$$

γ : spezifische Oberflächenenergie Ni 2000 erg/cm²

$T = 1400^\circ\text{K}$

r_B : Blasenradius = 1 μm

Auch hier kann die Übereinstimmung zwischen beiden Werten von n_{He} als ausreichend angesehen werden, wenn man die Unsicherheiten in der Ermittlung der Blasengröße bedenkt.

Die ähnlichen Differenzen, die beim Vergleich sowohl der Absorptionskoeffizienten wie auch von n_{He} gefunden werden, deuten darauf hin, daß durch die chemische Behandlung der Probe entweder ein zu großer Blasenradius ermittelt wird oder eine zu große Blasendichte vorgetäuscht wird.

Aus den Mikroskopiebildern ist ferner ersichtlich, daß die Korngrenzen stark mit Blasen belegt sind (Bild 4). Die Blasenpopulation um die Korngrenzen ist dabei jedoch unterschiedlich. Es werden Korngrenzen mit beidseitig blasenfreien Zonen (Bild 5), mit einer einseitig blasenfreien Zone (Bild 6) sowie Korngrenzen ohne blasenfreie Zone beobachtet. Die Ursache ist möglicherweise eine thermische Bewegung der Korngrenzen (Sekundärkristallisation während des Haltens der Probe bei hohen Temperaturen), die für die einzelnen Korngrenzen unterschiedlich sein kann.

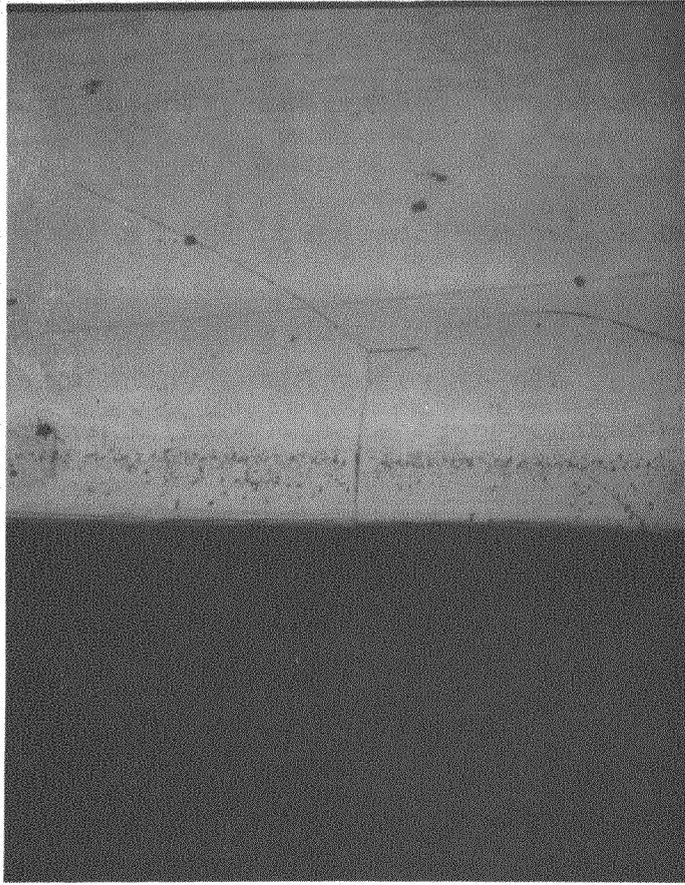


Bild 1 x 180

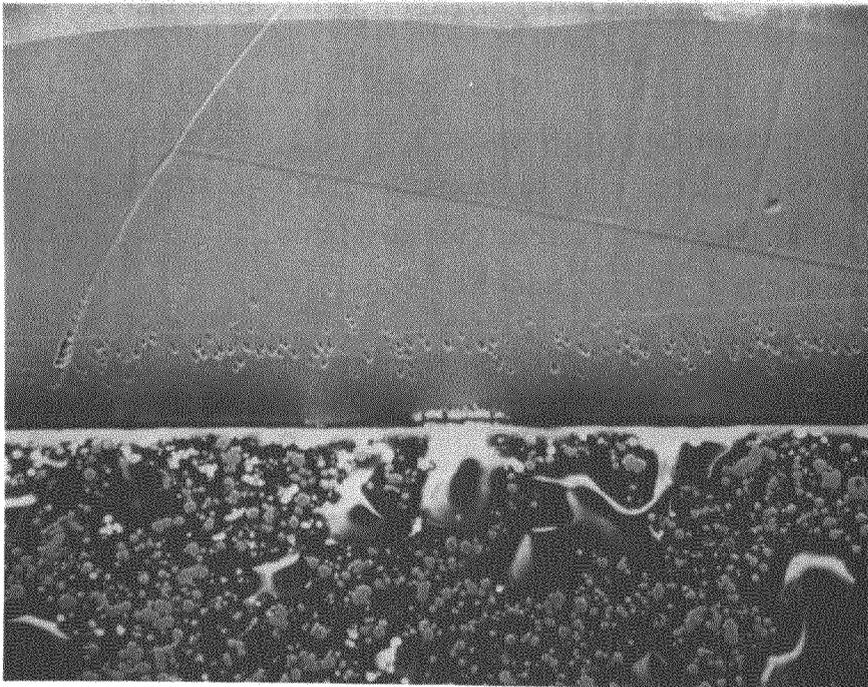


Bild 2 x 280

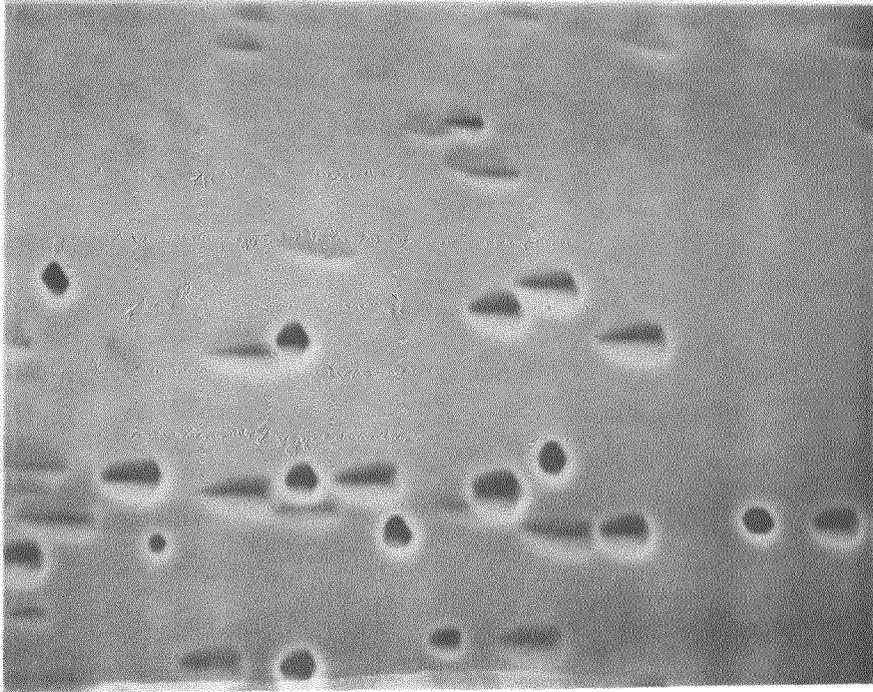


Bild 3 x 2240

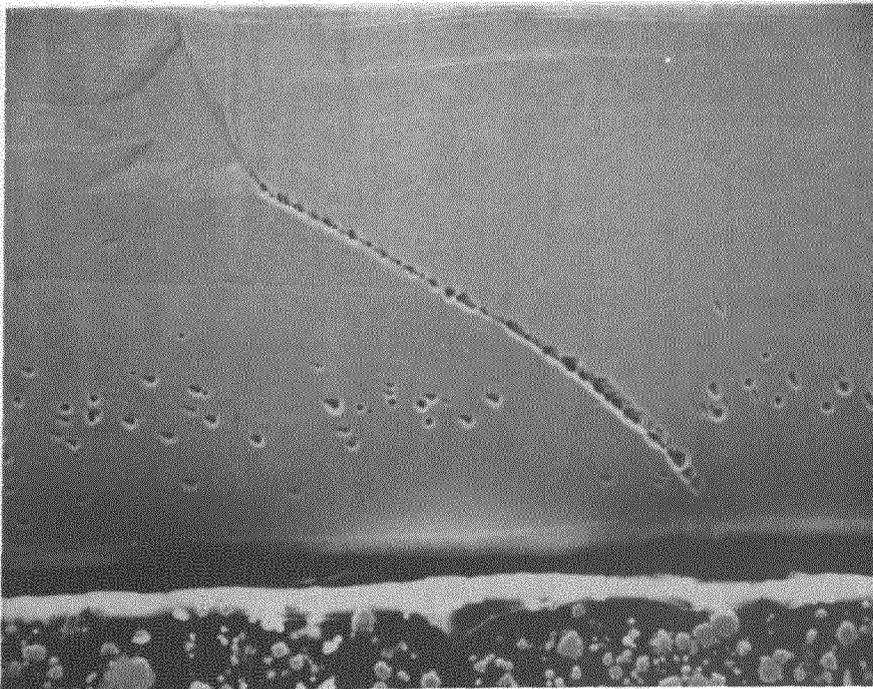


Bild 4 x 560

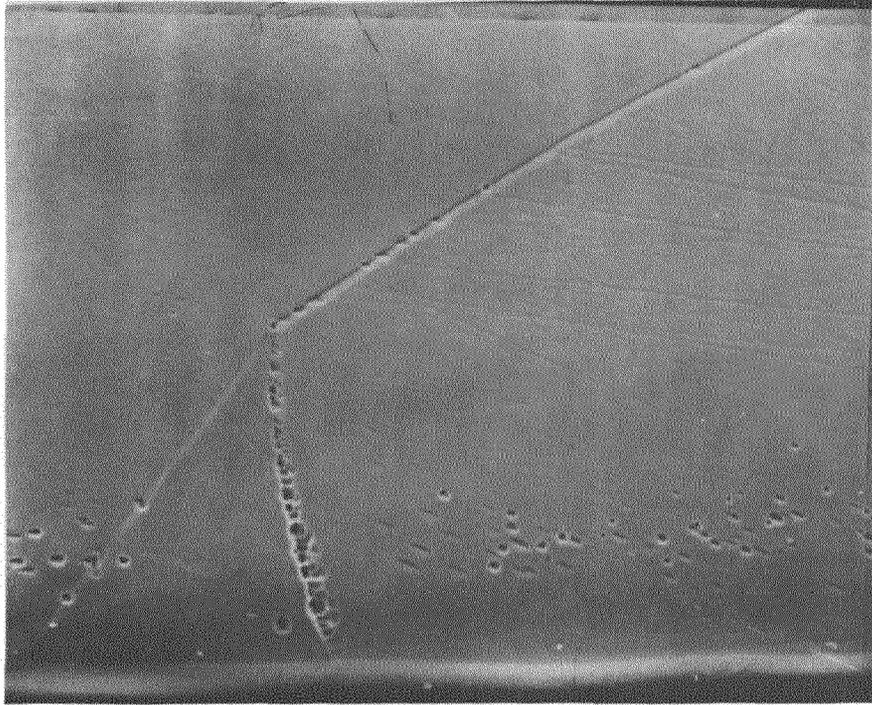


Bild 5 x 560

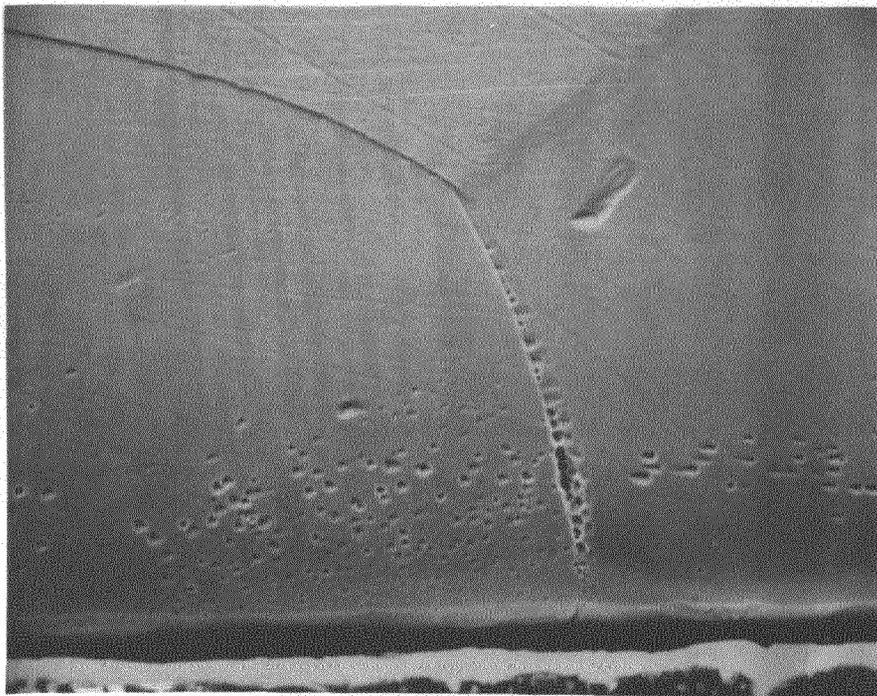


Bild 6 x 560

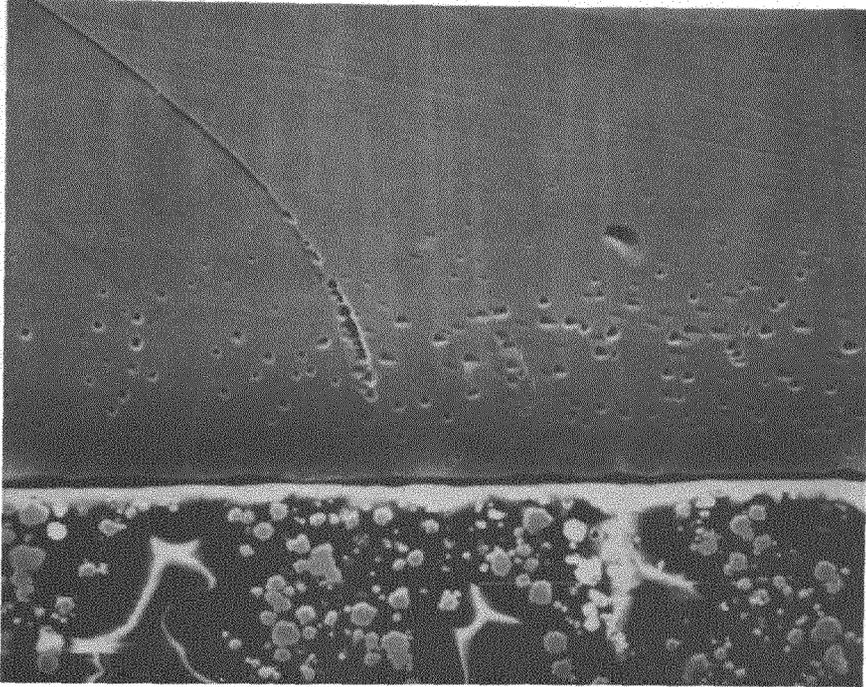


Bild 7 x 560

3. Nukleation und Wachstum der He-Blasen

Das im Einkristall beobachtete hohe Gleichgewichtssignal j_{∞} zeigt, daß im Einkristall wesentlich weniger bzw. weniger effektive Senken aufgebaut werden als im Polykristall. Dies deutet auf eine heterogene Nukleation der He-Senken hin. Bei homogener Nukleation müßte sich hier eine ähnliche Senkenstruktur aufbauen, da He-Dosisrate, Bestrahlungstemperatur und Implantationstiefe gleich gegenüber dem Polykristall sind. Die deutlich geringere nominelle Reinheit des polykristallinen Materials (99.99%) gegenüber dem Einkristall (99.998%) läßt vermuten, daß Verunreinigungen die Nukleation der Senken begünstigen.

Da das Gleichgewichtssignal j_{∞} die Absorptionsfähigkeit der inneren Senken widerspiegelt, enthält seine Dosisabhängigkeit Informationen über den dosisabhängigen Verlauf der Nukleation und des Wachstums der He-Blasen. Nimmt man an, daß die Nukleation der Blasen schnell im Vergleich zur Implantationszeit erfolgt,

wird der weitere Abfall des Gleichgewichtssignals nurmehr durch das Blasenwachstum bestimmt. Erfolgt dieses Wachstum unter Gleichgewichtsbedingungen, dann läßt sich die Dosisabhängigkeit des Gleichgewichtssignals leicht errechnen. Sie ist in Abb. 9 für verschiedene Senkendichten dargestellt (Rechnung siehe Anhang I). Insbesondere für größere Dosen erklärt dieses Modell den beobachteten geringen Abfall des Gleichgewichtssignals, so daß die Annahme einer vergleichsweise schnellen Nukleation der He-Blasen gerechtfertigt scheint.

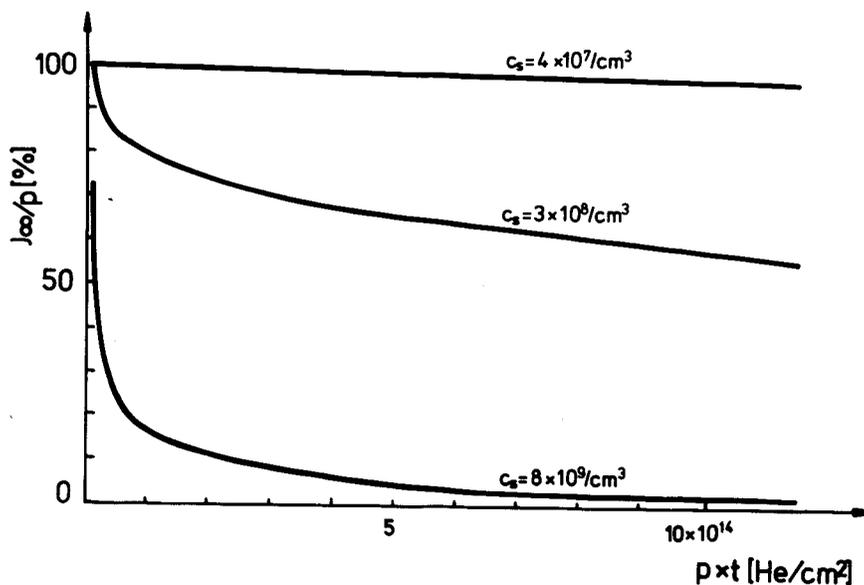


Abb. 9: Berechneter Verlauf des Gleichgewichtssignals j_∞ in Abhängigkeit von der Bestrahlungsdosis für drei Senkendichten; es wurde angenommen, daß der He-Gasdruck in einer Blase im Gleichgewicht mit der Oberflächenspannung der Blase steht.

4. Temperaturabhängigkeit des Gleichgewichtssignals j_{∞}

In Abb. 10 ist das Gleichgewichtssignal bei Abnahme der Proben-temperatur für verschiedene poly- und die einkristalline Probe gezeigt. Die Meßpunkte wurden durch kurzzeitige Implantation ($\sim 1-2$ Minuten) bei der jeweiligen Temperatur gewonnen, nachdem die Proben bei hohen Temperaturen mit größeren Dosen bestrahlt waren. Die durchgezogene Kurve wurde bei fortwährender Implantation bei einer konstanten Abkühlrate von $\sim 40^{\circ}\text{C}/\text{min}$ erhalten. Die gemessenen Gleichgewichtssignale sind jeweils auf die Werte bei 1200°C normiert.

In einem Temperaturbereich zwischen etwa 850°C und 650°C nimmt j_{∞} stark ab, bis es unterhalb etwa 450°C bei Eindringtiefen von 48 und 82 μm auf null absinkt. Lediglich bei der kleinsten Eindringtiefe von 18 μm war auch bis Raumtemperatur ein Signal meßbar. Dies ist wahrscheinlich darin begründet, daß das Ende des Implantationsprofils der Oberfläche sehr nahe kommt.

Bei Rückkehr zu hohen Temperaturen verbleibt das Signal auf dem Wert, den es bei der tiefen Bestrahlungstemperatur erreicht hat. Augenscheinlich haben sich bei der Implantation bei den tiefen Temperaturen neue He-Senken gebildet, die ihre Wirkung auch bei hohen Temperaturen behalten. Auch ein Tempern bei 1100°C für ~ 30 Minuten führte zu keinem signifikant größeren j_{∞} bei hohen Temperaturen.

Welcher Art die neu auftretenden He-Senken bei Abnahme der Implantationstemperatur sind, ist nicht bekannt. Da jedoch der Übergangstemperaturbereich für die Abnahme von j_{∞} mit dem Bereich zusammenfällt, wo normalerweise die stationäre Dichte der bestrahlungsinduzierten Defekte vergleichbar mit der thermischen Leerstellendichte wird, liegt die Vermutung nahe, daß solche durch Bestrahlung erzeugte Defekte am Aufbau der Senken beteiligt sind.

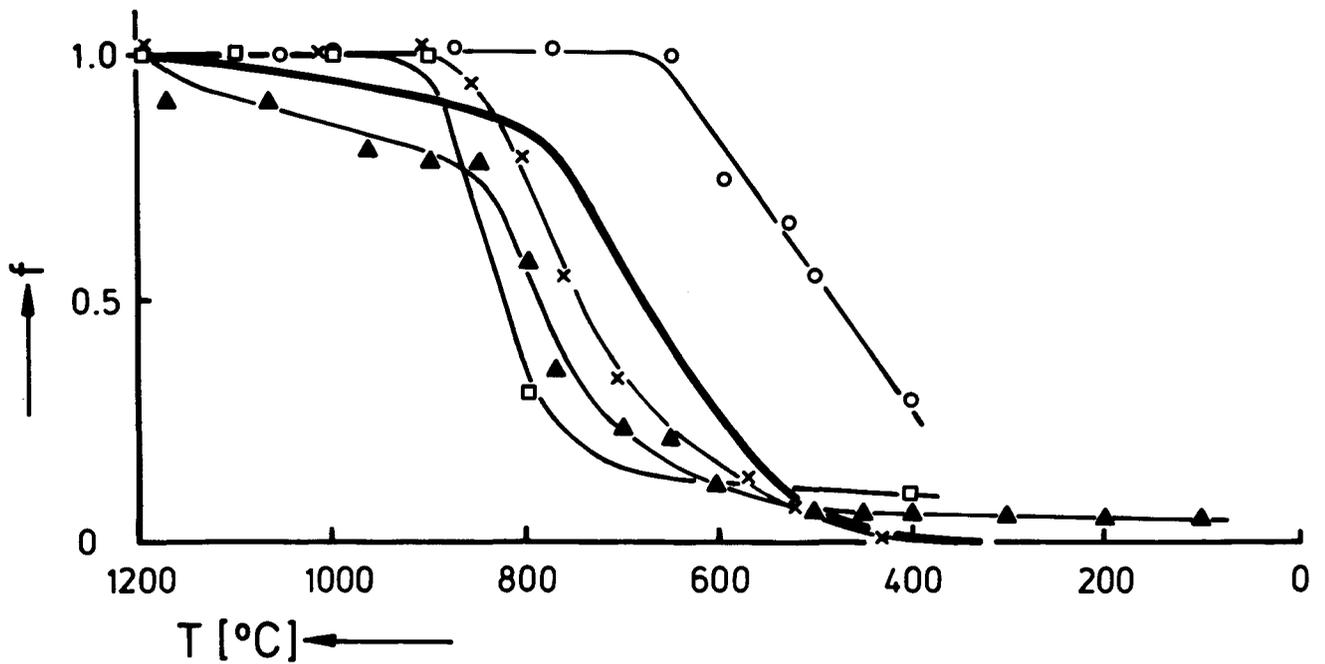


Abb. 10: Bruchteil f des Gleichgewichtssignals j_{∞} , das sich nach größeren Dosen bei höheren Temperaturen eingestellt hat, bei abnehmender Bestrahlungstemperatur

- : x_p : 82 μm Polykristall
- : x_p : 48 μm "
- △ : x_p : 18 μm "
- : x_p : 8 μm "
- x : x_p : 48 μm Einkristall

IV. Meßergebnisse: Zeitverhalten des Heliumsignals

Im folgenden werden die Meßergebnisse für die Zeitkonstanten $\tau_{1/2}^*$ dargestellt; daraus wird die He-Diffusionskonstante bei hohen Temperaturen bestimmt. Abb. 11 und 12 machen deutlich, daß die Zeitkonstanten durch eine Volumendiffusion des He von seinem Implantationsplatz bis zur Oberfläche bestimmt sind. In Abb. 11 sind die gemessenen Zeitkonstanten bei 1000°C in Abhängigkeit von der Implantationstiefe in einem doppelt logarithmischen Maßstab dargestellt. Man sieht, daß sich mit zunehmender Eindringtiefe deutlich größere Zeitkonstanten ergeben. Abb. 12 zeigt die Zeitkonstanten bei 1100°C in Abhängigkeit von dem Gleichgewichtssignal j_{∞} : Mit abnehmendem j_{∞} , d.h. zunehmender Absorption des He an inneren Senken, nehmen die Zeitkonstanten ab. Beide Abbildungen zeigen, daß die Freisetzungzeiten des He durch Eigenschaften des Volumens (Diffusion) und nicht durch solche der Oberfläche (Desorption) bestimmt sind.

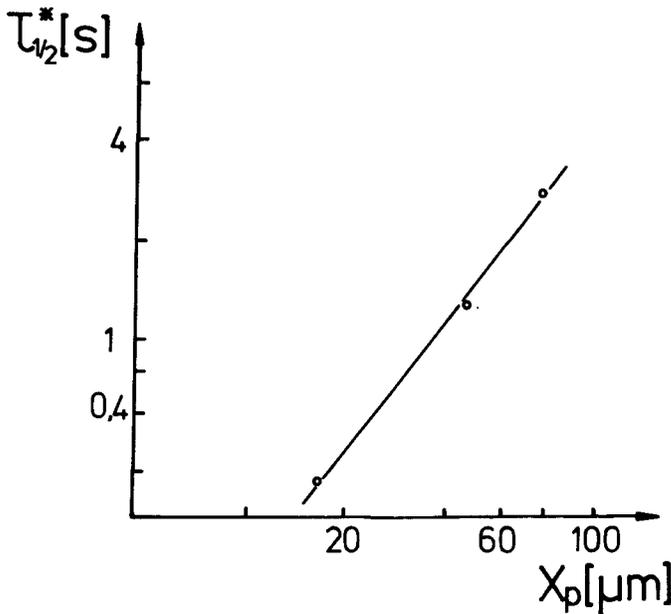


Abb. 11: Gemittelte Zeitkonstanten $\tau_{1/2}^*$ für unterschiedliche Implantationstiefen x_p
T: 1000°C

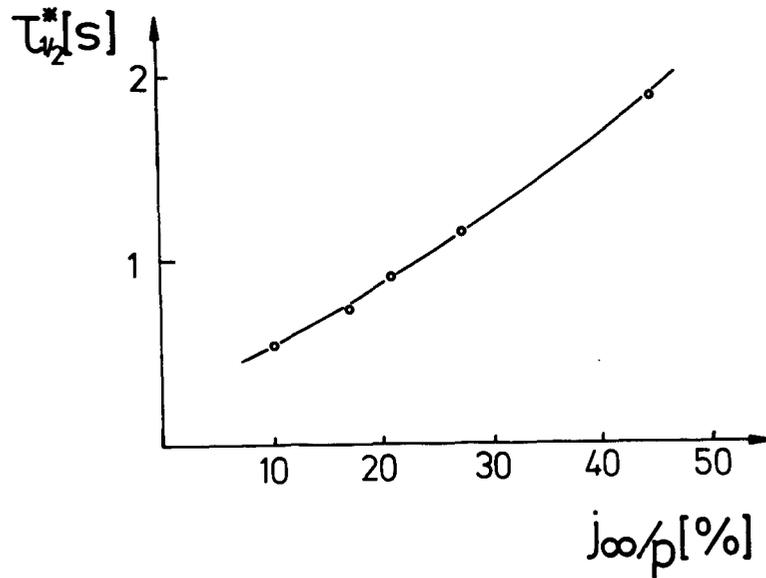


Abb. 12: Zeitkonstanten $\tau_{1/2}^*$ des Einkristalls bei $T = 1100^{\circ}\text{C}$ in Abhängigkeit von dem Gleichgewichtssignal j_{∞}

1. Bestimmung der Aktivierungsenergie

Die Zeitkonstanten $\tau_{1/2}^*$ beschreiben die mittleren Diffusionszeiten des He vom Ort der Implantation bis zur Oberfläche. Sie sind durch das Produkt aus der mittleren Zahl der Diffusionsschritte $\langle n \rangle$ vom Implantationsort x_p zur Oberfläche und der für einen Diffusionsschritt benötigten Zeit τ bestimmt.

$$\tau_{1/2}^* = \langle n \rangle \tau = \langle n \rangle \cdot \tau_0 e^{E_{\text{He}}/kT} \quad (3)$$

wobei τ_0 ein Vorfaktor und E_{He} die Aktivierungsenergie für den Diffusionsprozess darstellt. Solange die mittlere Zahl der Diffusionsschritte $\langle n \rangle$ unabhängig von der Temperatur ist, wird die Temperaturabhängigkeit der Zeitkonstanten $\tau_{1/2}^*$ allein durch die Aktivierungsenergie bestimmt.

$\langle n \rangle$ hängt nun von der Implantationstiefe x_p sowie von der Zahl, Anordnung und Größe der inneren Senken ab. Da bei gegebenem x_p das gemessene Gleichgewichtssignal j_{∞} ebenfalls von der Zahl, Anordnung und Größe der inneren Senken bestimmt wird, folgt aus

der Zeit- und Temperaturunabhängigkeit von j_{∞} für Implantationsdosen größer $\approx 10^{15}$ He/cm² die Konstanz von $\langle n \rangle$. In diesem Fall gibt die gemessene Temperaturabhängigkeit von $\tau_{1/2}^*$ direkt die Temperaturabhängigkeit von τ wieder. Die Temperaturabhängigkeit von $\tau_{1/2}^*$ ist für poly- und einkristalline Proben sowie verschiedene Eindringtiefen in Abb. 13 und 14 gezeigt. Es ist jeweils der Kehrwert der Zeitkonstanten $\tau_{1/2}^*$ gegenüber dem Kehrwert der Implantationstemperatur aufgetragen. Aus der Steigung dieser Geraden ergibt sich die Aktivierungsenergie der He-Diffusion. Sie ist innerhalb der Fehlergrenzen unabhängig von der Eindringtiefe und gleich für poly- und einkristalline Proben. In Tabelle 3 sind sämtliche so bestimmten Aktivierungsenergien zusammengestellt. Es ergibt sich eine mittlere Aktivierungsenergie von 0.81 eV mit einem durchschnittlichen Fehler von 0.04 eV. Der maximale Fehler beträgt 0.08 eV, der mittlere quadratische 0.046 eV. Fehler in der Bestimmung der Aktivierungsenergie resultieren aus der Messung der absoluten Proben temperatur ($\pm 20^{\circ}$) der Bestimmung der Zeitkonstanten (± 0.1 sec) sowie der Korrektur von $\tau_{1/2}$ um die Zeitverzögerung durch das Meßsystem.

Tabelle 3

x_p μm	E_{He} eV	
82	0.74	} Polykristall
	0.87	
	0.80	
48	0.84	} Polykristall
	0.80	
	0.80	} Einkristall
	0.88	
	0.86	
18	0.79	} Polykristall
	0.78	
	0.73	

Aktivierungsenergie für poly- und einkristalline Proben.

$E_{\text{He}} : 0.81 \pm 0.04 \text{ eV}$

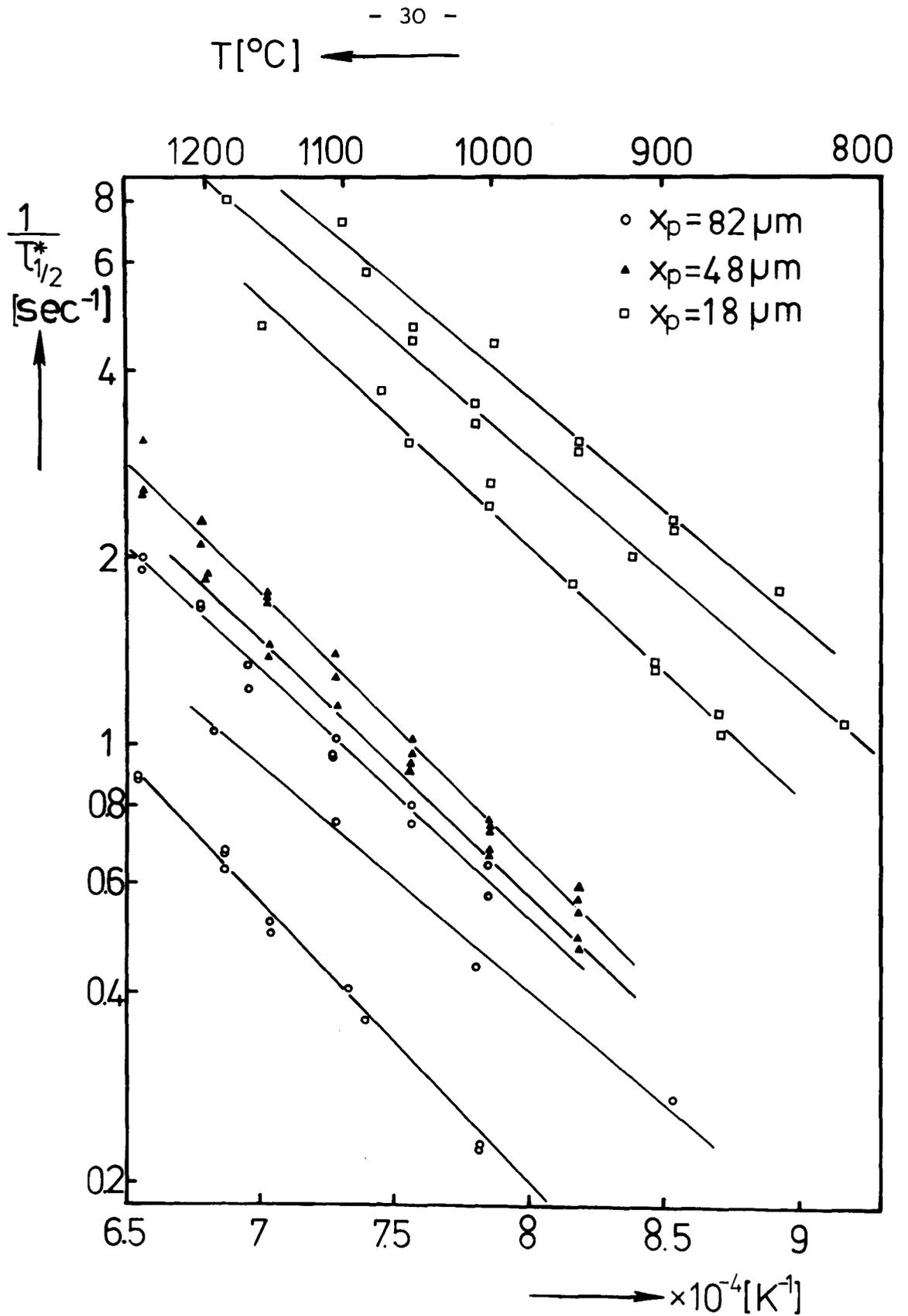


Abb. 13: Arrheniusauftragung der Kehrwerte der Zeitkonstanten $1/\tau_{1/2}^*$ der polykristallinen Proben

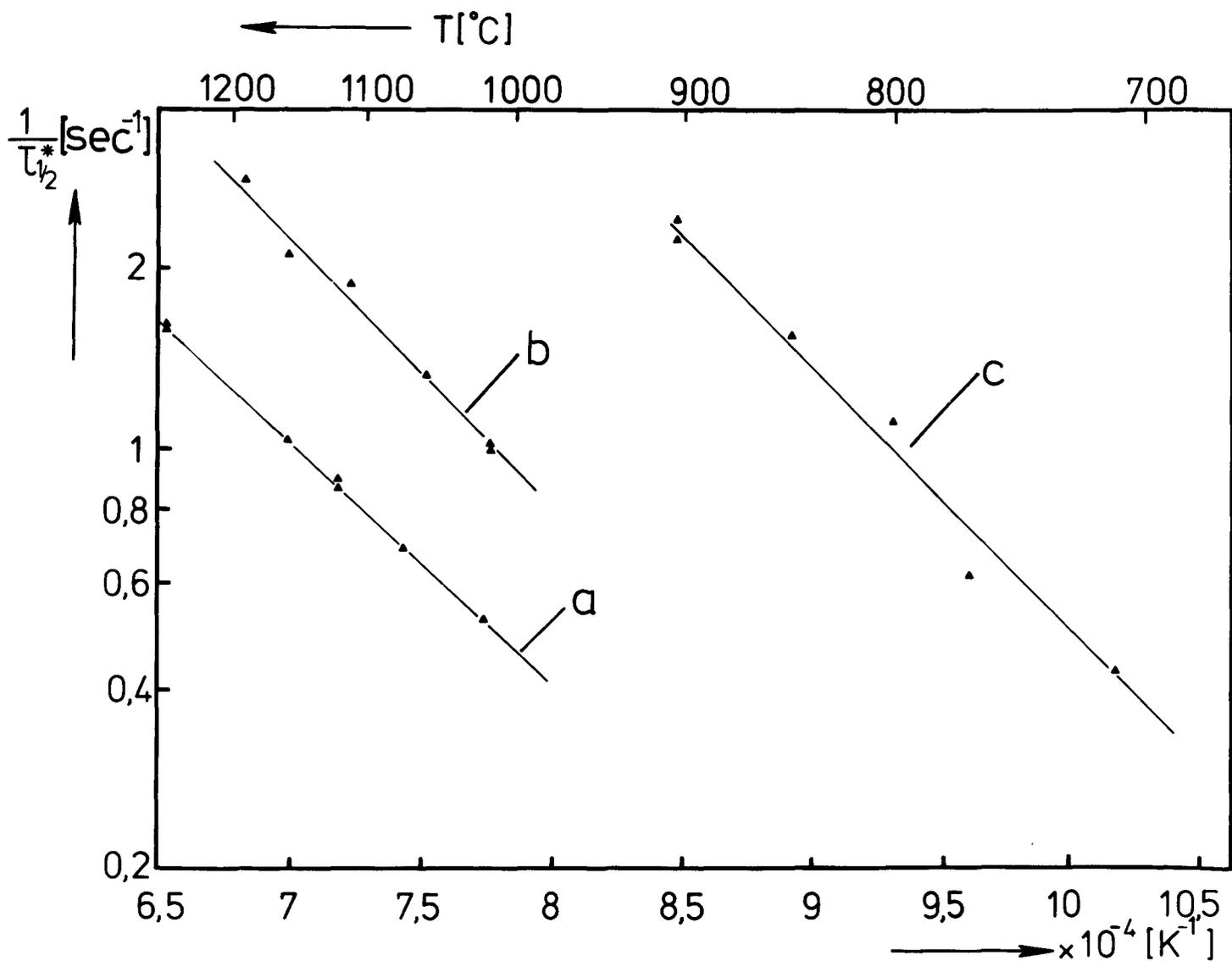


Abb. 14: Arrheniusauftragung der Kehrwerte der Zeitkonstanten $1/\tau_{1/2}^*$ des Einkristalls

$x_p = 48 \mu\text{m}$

a : $j_{\infty} = 30\%$

b : $j_{\infty} = 10\%$

c : $j_{\infty} = 3\%$

Aus Abb. 13 und 14 erkennt man einmal, daß die Lage der Arrheniusgeraden von der Eindringtiefe abhängt; sie unterscheidet sich aber auch bei gleicher Eindringtiefe und ist unterschiedlich für Poly- und Einkristall. Der Grund dafür liegt jeweils in der unterschiedlichen mittleren Schrittzahl $\langle n \rangle$ zur Oberfläche. Diese hängt naturgemäß von der Eindringtiefe aber auch vom Aufbau der inneren He-Senken ab; dies wird insbesondere noch bei der Ermittlung des Vorfaktors der Diffusionskonstante deutlich werden. Da unterhalb etwa 800°C das Gleichgewichtssignal j_{∞} drastisch abnimmt, und dies die Zeitkonstanten stark beeinflusst, konnte dort die Temperaturabhängigkeit der Zeitkonstanten nicht mehr gemessen werden.

2. Bestimmung des Vorfaktors

Im Gegensatz zur Aktivierungsenergie, die allein aus der Temperaturabhängigkeit von $\tau_{1/2}^*$ ermittelt wurde, muß für die Bestimmung des Vorfaktors das Diffusionsproblem gelöst werden. Für die praktische Ermittlung der Vorfaktoren wurde das Diffusionsproblem unter einigen vereinfachenden Annahmen gelöst, die im folgenden diskutiert werden sollen.

In Gleichung (4) wird angenommen, daß das He vom Zeitpunkt $t = 0$ an mit konstanter Rate in eine definierte x_p implantiert wird. Als Implantationstiefe x_p wurden theoretisch berechnete Reichweiten benutzt /36/. Fehler in der berechneten Reichweite und zusätzliche Unsicherheiten in x_p , die darin begründet sind, daß das Strahlfenster im Laufe der Zeit mit Nickel bedampft wird, wirken sich entsprechend $D \sim x_p^2$ auf D_0 aus.

Wegen der Vielfachstreuung der α -Teilchen in der Probe ist das implantierte He um eine mittlere Eindringtiefe verschmiert. Nimmt man ein um die mittlere Eindringtiefe x_p symmetrisches Implantationsprofil an, so beeinflusst diese Verschmierung in erster Näherung $\tau_{1/2}^*$ nicht. Wir haben D_0 daher unter der Annahme berechnet, daß das He in eine feste Tiefe x_p implantiert wird.

Mit diesen Annahmen und unter den Voraussetzungen, daß keine internen He-Senken und keine Oberflächenbarriere für das He vorliegen, gilt die Diffusionsgleichung

$$\frac{\partial c}{\partial t} = c(x,t) = D \cdot \frac{\partial^2 c(x,t)}{\partial x^2} + p \cdot \delta(x-x_p) \cdot \phi(t) \quad (4)$$

c: He-Konzentration

D: He-Diffusionskonstante

p: He-Produktionsrate

$\phi(t)$: 0 für $t < 0$

1 für $t \geq 0$

Gleichung (4) wird mit der Randbedingung $c(0,t) = 0$ von der Green-Funktion

$$G(x,t,x_p) = \frac{\phi(t)}{(4\pi Dt)^{1/2}} \left[e^{-\frac{(x-x_p)^2}{4Dt}} - e^{-\frac{(x+x_p)^2}{4Dt}} \right] \quad (5)$$

gelöst. Damit wird

$$c(x,t) = p \cdot \int_0^t G(x,t,x_p) \quad (6)$$

und der He-Strom aus der Oberfläche

$$\begin{aligned} j(x=0,t) &= -D \cdot \left. \frac{\partial c(x,t)}{\partial x} \right|_{x=0} \\ &= \frac{4p}{\pi} \cdot D \cdot x_p \int_0^t \frac{1}{(4\pi Dt')^{3/2}} e^{-\frac{x_p^2}{4Dt'}} dt' \end{aligned} \quad (7)$$

Die Diffusionskonstante ergibt sich aus

$$\operatorname{erfc} \left(\frac{x_p}{\sqrt{4D\tau_{1/2}^0}} \right) = 0.5 \quad \text{wo } \tau_{1/2}^0 \text{ die Zeitkonstante des He-Signals ohne Senken ist.}$$

$$\text{zu } D = \frac{x_p^2}{0.97 \tau_{1/2}^0} \quad (8)$$

Diese Lösung gilt ohne innere He-Senken. Die Absorption eines Teils des diffundierenden Heliums an inneren Senken führt nun bei gegebener Diffusionskonstante zu einer Abnahme von $\tau_{1/2}^0$ auf $\tau_{1/2}^*$. Diese Abnahme beruht anschaulich darauf, daß diejenigen He-Atome, die lange Diffusionswege auf ihrem Zufallsweg zur Oberfläche zurücklegen mit größerer Wahrscheinlichkeit absorbiert werden als diejenigen He-Atome, die kürzere Wege zurücklegen. Die mittleren Diffusionszeiten nehmen dadurch ab.

Der Einfluß der Senken auf die Diffusionszeiten ist auch von der räumlichen Verteilung der Senken abhängig. Wie in Bild 1, Kap. IV zu sehen, weisen die Senken bei $x_p = 44 \mu\text{m}$ ein Dichtemaximum um die Implantationsebene auf; zur Oberfläche nimmt die Dichte ab. Wir haben das Diffusionsproblem - und damit den Einfluß der Senken auf $\tau_{1/2}^*$ - einmal unter der Annahme gelöst, daß die He-Senken homogen in der Probe verteilt sind und einmal unter der Annahme, daß sie nur auf die Implantationsebene konzentriert sind. Diese extremen Annahmen über die Verteilung grenzen die tatsächliche Verteilung der Senken ein. Die Rechnung ist in Anhang III durchgeführt. In Abb. 15 ist das Verhältnis der Zeitkonstanten $\tau_{1/2}^*$ bezogen auf die Zeitkonstante $\tau_{1/2}^0$, die man ohne Senken erhält, in Abhängigkeit von dem Gleichgewichtssignal j_∞ für beide Verteilungen gezeigt.

Diese Kurven sind unabhängig von der Diffusionskonstante und der Implantationstiefe und erlauben für die jeweiligen Senken in Zusammenhang mit Gleichung (8) die Ermittlung der Diffusionskonstante bei gegebenen $\tau_{1/2}^*$ und j_∞ . Man sieht, daß der Unterschied des Einflusses der zwei Senkenverteilungen auf die Diffusionszeiten klein ist. Der Fehler, der in der Unkenntnis der genauen räumlichen Verteilung der Senken begründet ist, ist daher vergleichsweise klein gegen die anderen Fehler, die in die Bestimmung der Vorfaktoren eingehen.

In Tabelle 4 sind die Vorfaktoren sämtlicher Messungen angegeben. Sie wurden aus jeder Einzelmessung gewonnen, indem der Mittelwert der Aktivierungsenergie 0.81 eV zugrundegelegt und der Mittelwert der Korrektur der Zeitkonstanten der homogenen und der deltaförmigen Verteilung (gestrichelte Kurve, Abb. 15) verwandt wurde.

Tabelle 4

x_p μm	$\frac{j_\infty}{P}$ %	E_{He} eV	D_o cm^2/sec	
82	1.7	0.74	7.2×10^{-3}	} Polykristall
	1.6	0.87	2.5×10^{-3}	
	3	0.80	9.2×10^{-3}	
48	6	0.84	3.75×10^{-3}	} Einkristall
	5	0.79	3.17×10^{-3}	
	30	0.80	4.8×10^{-3}	
	10	0.88	5.8×10^{-3}	
	3	0.86	11.7×10^{-3}	
18	30	0.79	3.25×10^{-3}	} Polykristall
	28	0.78	3.13×10^{-3}	
	50	0.73	7.65×10^{-3}	

Die Vorfaktoren liegen in den Grenzen zwischen $3.1 \times 10^{-3} \leq D_o \leq 11.7 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{sec}$. Fehler in der Bestimmung der Vorfaktoren resultieren aus der fehlerhaften Bestimmung von j_∞ , in die sowohl die Messung des Stahlstromes p wie auch die Eichung des Massenspektrometers eingehen; systematische Fehler könnten aus Fehlern in der nominellen Eindringtiefe x_p resultieren. Solche systematischen Fehler sind aus Tabelle 4 aber nicht ersichtlich. Der Mittelwert \bar{D}_o aller Vorfaktoren beträgt $5.65 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{sec}$.

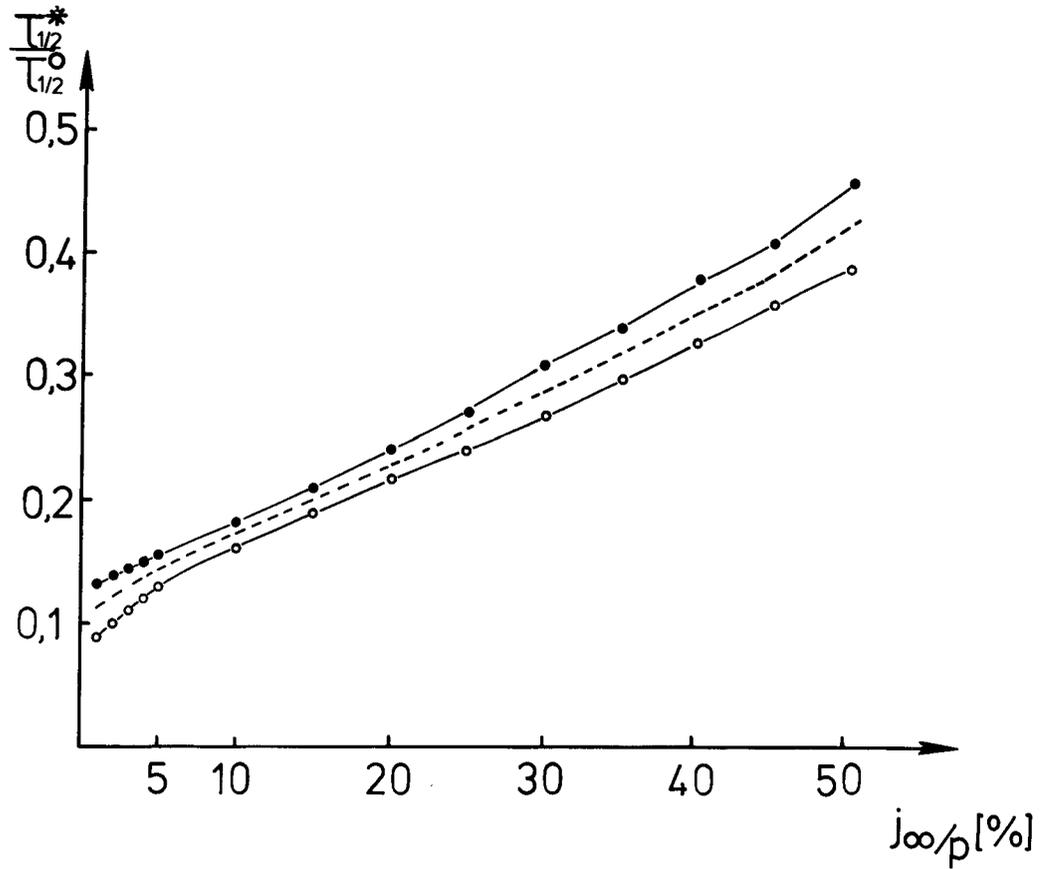


Abb. 15: Verhältnis der Zeitkonstanten $\tau_{1/2}^*$ und $\tau_{1/2}^0$ in Abhängigkeit von dem Gleichgewichtssignal j_{∞} .

- : deltaförmige Senkenverteilung
- : homogene Senkenverteilung

V. Diskussion

Die He-Atome müssen makroskopische Diffusionswege (18 - 82 μm) zurückgelegt haben, bevor sie die Probe verlassen und im Massenspektrometer nachgewiesen werden. Da das Gleichgewichtssignal j_{∞} im Einkristall nicht kleiner als im Polykristall ist und in beiden die gleiche Aktivierungsenergie gemessen wird, muß die Diffusion des He im Volumen erfolgen. Korngrenzendiffusion ist also auszuschließen. Dieser Schluß wird auch schon aus dem Ergebnis des Polykristalls nahegelegt, da deren Korngröße ca. ~ 1 mm war. Bei einer derartigen Korngröße ist die Oberfläche als Senke für das diffundierende He viel näher als die nächste Korngrenze.

Bei einer Volumendiffusion des He über Zufallswege müssen sich die Diffusionszeiten wie die Quadrate der Diffusionswege verhalten (9) $\tau_{1/2}^* \sim x_p^2$. Dies gilt, wenn keine Oberflächenbarriere für den Austritt des He aus der Probe vorliegt. Da die gemessenen Diffusionszeiten für unterschiedliche Implantationstiefen unterschiedlich durch die inneren Senken beeinflusst sind, sind in Abb. 15 die unbeeinflussten Diffusionszeiten in einem doppelt logarithmischen Maßstab gegenüber der Implantationstiefe aufgetragen. Die Meßpunkte stellen die Mittelwerte der korrigierten Diffusionszeiten aller Messungen bei 1000°C dar, wobei wieder entweder eine homogene oder eine delta-förmige Verteilung zugrundegelegt wurde. Die gestrichelte Linie entspricht dem erwarteten Zusammenhang nach (9). Man sieht, daß Meßpunkte gut der Beziehung (9) entsprechen. Ein Einfluß einer Oberflächenbarriere auf die Diffusionszeiten kann daher ausgeschlossen werden.

Die He-Diffusion könnte aber durch eine beschleunigte Diffusion entlang von Versetzungen bestimmt sein. Erfolgt die Diffusion des He entlang von Versetzungen mit der Diffusionskonstante D^d und im übrigen Kristall mit D^v , und ist der Diffusionsweg insgesamt groß gegenüber dem mittleren Abstand der Versetzungen, so läßt

sich eine effektive Diffusionskonstante /27/

$$D^{\text{eff}} = D^{\text{V}} (1 - f) + D^{\text{d}} \cdot f \quad (10)$$

angeben. Dabei bedeutet f den Volumenbruchteil, gegeben durch die Versetzungsdichte, in dem die Diffusion mit D^{d} erfolgt. Wenn die gemessene Diffusionskonstante durch die Diffusion entlang von Versetzungen bestimmt sein sollte, müßte nach (10) der Vorfaktor der gemessenen Diffusionskonstante sich aus dem Produkt von f und dem Vorfaktor von D^{d} , D_{O}^{d} , ergeben. Da D_{O}^{d} in der Größe des Vorfaktors der He-Volumendiffusion liegt /28/ und dieser ähnlich dem der Wasserstoffdiffusion in Nickel sein sollte ($10^{-3} - 2 \times 10^{-2} \text{ cm}^2/\text{sec}$) /29/, müßte der gesamte Vorfaktor in der Größe von $\approx 10^{-9} \text{ cm}^2/\text{sec}$ liegen. Dies ist im Widerspruch zu dem gemessenen Wert (Kap. IV, 2). Ein maßgeblicher Einfluß der Diffusion entlang von Versetzungen wird daher im vorliegenden Fall ausgeschlossen.

Auch ein Einfluß der bestrahlungsinduzierten Defekte auf die He-Diffusion läßt sich leicht ausschließen: Da die He-Diffusionszeiten über 800°C in der Größe einiger Sekunden liegen, die Lebensdauer der bestrahlungsinduzierten Defekte dagegen, wie unten gezeigt, wesentlich kleiner ist, kann nach Ausschalten des Implantationsstromes die Diffusion nicht durch bestrahlungsinduzierte Defekte bestimmt sein. Es ergeben sich aber bei Ein- und Ausschalten die gleichen Diffusionszeiten. Die Lebensdauer der Bestrahlungsdefekte wird in unserem Fall durch die Beweglichkeit der Zwischengitteratome bestimmt, da für sie die thermischen Leerstellen die dominierenden Senken sind. Daraus läßt sich eine Lebensdauer von $\approx 10^{-6} \text{ sec}$ für die bestrahlungsinduzierten Fehlstellen bei 1000°C abschätzen.

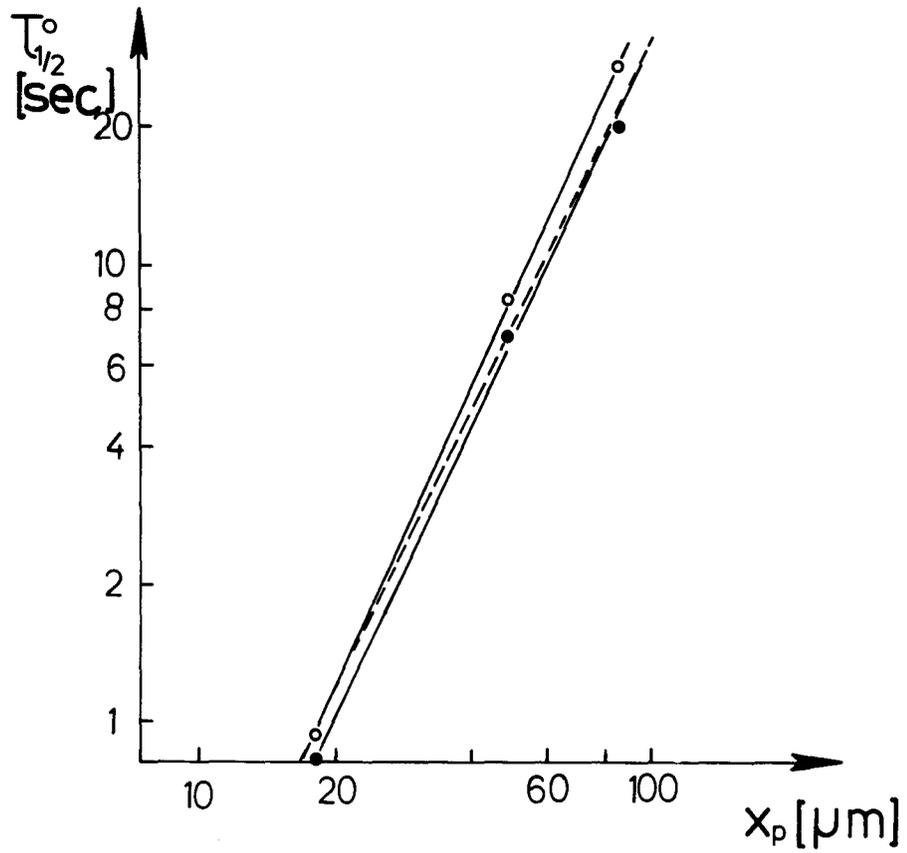


Abb. 16: Gemittelte korrigierte Anstiegszeiten $\tau_{1/2}^0$ für verschiedene Implantationstiefen
 $T = 1000^\circ\text{C}$
o : homogene Senkenverteilung
● : Deltaförmige Senkenverteilung
---- : $\tau_{1/2}^0 \sim x_p^2$

1. Diffusionsmechanismus

Bei der Diskussion der Frage, welchen Diffusionsmechanismus die gemessene Diffusionskonstante beschreibt, muß die bei den verwandten Meßtemperaturen hohe thermische Leerstellenkonzentration bedacht werden. Sie hat zur Folge, daß das He-Atom auf seinem Diffusionsweg schon nach vergleichsweise wenigen Diffusionsschritten eine thermische Leerstelle findet, an die das He mit relativ großer Energie gebunden ist und so zunächst unbeweglich liegen bleibt. Da das He auf seinem Zufallsweg zur Oberfläche in unserem Fall mehr als 10^5 Leerstellen findet, wir aber einen deutlichen He-Strom aus der Oberfläche messen, muß das von der Leerstelle eingefangene He-Atom auf irgendeine Art wieder beweglich werden.

Dies könnte sich einmal über den normalen Diffusionsmechanismus über Leerstellen vollziehen. Das substitutionelle He-Atom wird dabei beweglich, indem eine thermische Leerstelle einen nächsten Nachbarplatz besetzt und das He-Atom in die nächste Nachbarleerstelle springt. Das He-Atom könnte aber auch beweglich werden, indem es von seinem substitutionellen Platz auf einen Zwischengitterplatz thermisch dissoziiert. Das He führt dann eine Zwischengitterdiffusion aus, die durch den Einfang und die anschließende Dissoziation des He von thermischen Leerstellen immer wieder unterbrochen und neu gestartet wird. Diese Bewegung wird als eine behinderte Zwischengitterdiffusion bezeichnet. Um eine Entscheidung zu treffen, welcher Mechanismus die He-Diffusion bestimmt, werden die für beide Prozesse erwarteten Diffusionskonstanten im folgenden diskutiert.

1.1 Diffusion über den Leerstellenmechanismus

Die durch diesen Prozeß bestimmte Diffusionskonstante $D_{\text{He}}^{\text{V,M}}$ ist durch

$$D_{\text{He}}^{\text{V,M}} \sim \Gamma_2 \cdot c_v \cdot e^{-E_{\text{He,V}}^{\text{B}}} f(\Gamma_1, \Gamma_3, \Gamma_4, \Gamma) \quad (11)$$

bestimmt.

wobei:

- Γ_2 Sprungfrequenz des substitutionellen He-Atoms in eine nächste Nachbarleerstelle
- $E_{\text{He},V}^B$ Bindungsenergie einer Leerstelle an ein substitutionelles He-Atom
- f Korrelationsfaktor
- c_v thermische Leerstellenkonzentration
- $\Gamma_1, \Gamma_3, \Gamma_4, \Gamma$ sind die in Abb. 17 bezeichneten Sprungfrequenzen.

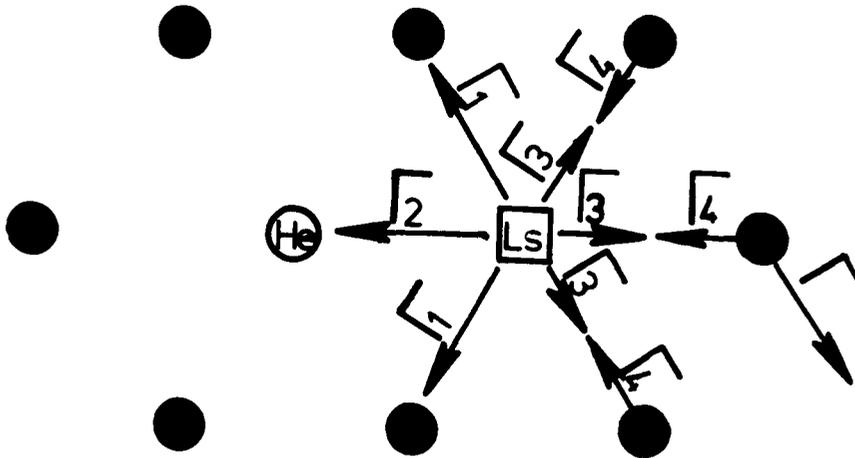


Abb. 17: Sprungfrequenzen für die He-Diffusion über Leerstellen (111-Ebene)

Γ_1 ist die Sprungfrequenz für die einen nächsten Nachbarplatz besetzende Leerstelle in eine andere nächste Nachbarlage. Nur diese Sprünge bewahren den He-Ls-Komplex. Die Sprünge mit den Sprungfrequenzen Γ_3 dissoziieren das He-Ls-Paar und beenden zunächst die weitere Bewegung des He-Atoms. Γ ist die Leerstellensprungfrequenz im ungestörten Gitter. Der Korrelationsfaktor f ergibt sich für ein fcc-Gitter zu /30/

$$f(\Gamma_1, \Gamma_3, \Gamma) = \frac{2\Gamma_1 + \Gamma_3 + F(\Gamma_4/\Gamma)}{2\Gamma_2 + 2\Gamma_1 + \Gamma_3 + F(\Gamma_4/\Gamma)} \quad (12)$$

wobei $F(\infty) = 2$, $F(1) = 5.15$, $F(0) = 7$.

Der Korrelationsfaktor läßt sich durch Betrachtung folgender Grenzfälle abschätzen:

1.1.1. Die Sprungfrequenz des substitutionellen He-Atoms in die benachbarte Leerstelle, Γ_2 , sei groß gegen $\Gamma_1 \gg \Gamma_3, \Gamma_4$.

Dann ist: $\Gamma_2 \cdot f \sim \Gamma_1$

und

$$D_{\text{He}}^{V,M} \sim c_V \cdot e^{E_{\text{He},V}^B} \cdot \Gamma_1$$

$$D_{\text{He}}^{V,M} \sim e^{-(E_V^F - E_{\text{He},V}^B + E_1)/kT}$$

mit $c_V \sim e^{-E_V^F/kT}$ E_V^F : Leerstellenbildungsenergie

E_1 : Aktivierungsenergie für Sprung Γ_1

Die Aktivierungsenergie, die diese Diffusion bestimmt, ist durch $(E_V^F - E_{\text{He},V}^B + E_1)$ gegeben. Sie läßt sich abschätzen, wenn man sich das substitutionelle He-Atom durch eine Leerstelle ersetzt denkt. Man betrachtet dann also eine Doppelleerstelle. Die Bindungsenergie einer Doppelleerstelle (E_{2V}^B) sollte eine obere Abschätzung für $E_{\text{He},V}^B$, ihre Wanderungsenergie (E_{2V}^M) dagegen eine untere Grenze für E_1 sein. Dies wird auch durch Rechnungen von Wilson et al. unterstützt /22/.

Es ist also

$$E_{\text{He}}^{V,M} \geq (2E_V^F - E_{2V}^B + E_{2V}^M) - E_V^F$$

Der Klammerausdruck, der die Aktivierungsenergie für die Selbstdiffusion über Doppelleerstellen beschreibt, ist zu 3.7 eV ermittelt worden /31/. Für die Bildungsenergie der Leerstelle in Nickel, die mit verschiedenen Methoden bestimmt wurde, werden Werte zwischen 1.4 und 1.6 eV angegeben z.B./ 32/33/34/. Daher wäre

$$E_{\text{He}}^{V,M} > 2 \text{ eV.}$$

1.1.2. Im zweiten möglichen Fall, wenn also die Sprungfrequenz des He in eine nächste Nachbarleerstelle, Γ_2 , kleiner als Γ_1 ist, bestimmt dieser langsame Sprung die He-Diffusion und die dafür benötigte Aktivierungsenergie muß größer als im Fall 1 sein.

Unabhängig davon, welcher Sprung die He-Diffusion bestimmt, läßt sich also eine untere Grenze von ~ 2 eV für die He-Diffusion über Leerstellen abschätzen.

Dieser Wert ist so drastisch von der gemessenen Aktivierungsenergie von 0.81 eV verschieden, daß der normale Fremdatomdiffusionsmechanismus in diesem Fall ausgeschlossen werden kann.

1.2. Behinderte Zwischengitterdiffusion

Für die behinderte Zwischengitterdiffusion des He läßt sich eine effektive Diffusionskonstante, $D_{\text{He}}^{\text{eff}}$ durch /35/

$$D_{\text{He}}^{\text{eff}} = D_{\text{He}}^{\text{I,M}} \frac{c_{\text{He}}^{\text{I}}}{c_{\text{He}}^{\text{I}} + c_{\text{He}}^{\text{S}}} = D_{\text{He}}^{\text{I,M}} \frac{1}{1 + \frac{c_{\text{He}}^{\text{S}}}{c_{\text{He}}^{\text{I}}}} \quad (13)$$

angegeben mit $D_{\text{He}}^{\text{I,M}}$ He-Zwischengitterdiffusionskonstante
 c_{He}^{I} , c_{He}^{S} He-Konzentration im Zwischengitter bzw. auf substitutionellen Gitterplätzen

Die effektive Diffusionskonstante ergibt sich nach obiger Beziehung aus der des He im Zwischengitter multipliziert mit dem relativen Anteil der He-Atome, die sich in Zwischengitterposition befinden, also diffusionsfähig sind.

Das Verhältnis $c_{\text{He}}^{\text{S}}/c_{\text{He}}^{\text{I}}$ ist durch die jeweilige freie Energie eines Kristalls mit einem He-Atom in substitutioneller- bzw. Zwischengitterposition bestimmt. Es gilt daher:

$$\frac{c_{\text{He}}^{\text{S}}}{c_{\text{He}}^{\text{I}}} = e^{(s_{\text{V}}^{\text{F}} - s_{\text{He(S)}}^{\text{B}})/k} \cdot e^{-(E_{\text{V}}^{\text{F}} - E_{\text{He(S)}}^{\text{B}})/k \cdot T} \quad (14)$$

wobei s_{V}^{F} die Bildungsentropie der Leerstelle

$E_{\text{He(S)}}^{\text{B}}$ den Energiegewinn eines He-Atoms beim Überführen von einer Zwischengitterposition in eine vorhandene Leerstelle

und $s_{\text{He(S)}} = s_{\text{He}}^{\text{I}} - s_{\text{He}}^{\text{S}}$ die Differenz der Entropie des He-Atoms in Zwischengitterposition (s_{He}^{I}) und substitutioneller Position (s_{He}^{S}) bezeichnet.

In Gleichung (14) erscheint die Differenz $E_V^F - E_{He(S)}^B$ deshalb, weil beim Überführen eines He-Atoms von einer Zwischengitter- in eine substitutionelle Position zuerst eine Leerstelle gebildet werden muß, die die Energie E_V^F kostet, ehe die Bindungsenergie $E_{H(S)}^B$ des He in der Leerstelle gewonnen werden kann.

Für die Entropie gilt

$$s_{He(S)}^B \approx k \ln \frac{\omega_{He}^S}{\omega_{He}^I}, \quad \text{wo}$$

ω_{He}^S und ω_{He}^I die Schwingungsfrequenzen des He-Atoms in substitutioneller- bzw. Zwischengitterposition bedeuten. Das Verhältnis $\frac{\omega_{He}^I}{\omega_{He}^S}$ läßt sich abschätzen, wenn man es vereinfachend durch

$$\frac{\omega_{He}^I}{\omega_{He}^S} \approx \frac{E_{He}^{I,M}}{E_{He(S)}^{diss}} \quad \text{mit der Aktivierungsenergie für die Zwischengit-}$$

terwanderung $E_{He}^{I,M}$ bzw. der Dissoziationsenergie des He von einem substitutionellen Gitterplatz, $E_{He(S)}^{diss}$, verknüpft. Mit

$$\frac{E_{He}^{I,M}}{E_{He(S)}^{diss}} \approx \frac{1}{6}, \quad s_V^F = 0.45 k / 32/ \quad \text{ergibt sich der Vorfaktor aus}$$

Gleichung 14 zu ≈ 0.26 .

Das Verhältnis c_{He}^V / c_{He}^I läßt sich auch aus der Bedingung, daß für stationäre Verhältnisse in der Zeiteinheit genausoviel He-Atome von substitutionellen Gitterplätzen dissoziieren, wie bewegliche Zwischengitter-He-Atome von Leerstellen eingefangen werden, bestimmen.

Es gilt:

$$c_{He}^S \cdot v_o^{diss} \cdot e^{-G_{He(S)}^{diss}/k \cdot T} = c_{He}^I \cdot 4\pi \cdot R_V \cdot D_{He}^{I,M} \cdot c_V \quad (14')$$

mit ν_0^{diss} Versuchsfrequenz für die Dissoziation des He-Atoms von einem substitutionellen Gitterplatz

$G_{\text{He}(S)}^{\text{diss}}$ Gibb'sche freie Energie für die Dissoziation des He-Atoms von einem substitutionellen Gitterplatz = $G_{\text{He}(S)}^{\text{B}} + G_{\text{He,I}}^{\text{M}}$

R_V Einfangradius der Leerstelle für den Einfang von He-Zwischengitteratomen

Durch Vergleich von Gleichung 14' mit Gleichung 14 folgt:

$$\frac{4\pi \cdot R_V \cdot D_{\text{O,He}}^{\text{I,M}}}{\nu_0^{\text{diss}} \cdot \Omega} = 1$$

wo $D_{\text{O,He}}^{\text{I,M}}$ den Vorfaktor für die He-Zwischengitterdiffusion und

Ω das Atomvolumen bezeichnet.

Setzt man $D_{\text{O,He}}^{\text{I,M}} = \frac{1}{6} \left(\frac{a}{\sqrt{2}} \right)^2 \nu_0^{\text{I}}$

mit a : Gitterkonstante

ν_0^{I} : Versuchsfrequenz für den He-Zwischengittersprung

so folgt

$$\frac{\nu_0^{\text{I}}}{\nu_0^{\text{diss}}} = \frac{a}{R_V} \cdot 0.238$$

für $\frac{\nu_0^{\text{I}}}{\nu_0^{\text{diss}}} \approx \frac{1}{6}$, wie oben angenommen, folgt $R_V \approx 1.4 a$. Der abgeschätzte Wert für $\frac{\nu_0^{\text{I}}}{\nu_0^{\text{diss}}}$ liefert also einen sinnvollen Wert

für den Einfangradius R_V ($\approx 1/2$ des Einfangradius für ein Eigenzwischengitteratom).

Zurückkommend auf Gleichung 13 ergibt sich folgendes: Wenn die Zeit, die das He-Atom für die Diffusion von einer Leerstelle zur nächsten benötigt, groß gegenüber der Zeit ist, die es an

der Leerstelle gebunden ist, ist die effektive Diffusionskonstante $D_{\text{He}}^{\text{eff}}$ durch die Helium-Diffusion im Zwischengitter bestimmt. Die Behinderung durch die Leerstellen ist dann schwach. Wenn aber umgekehrt die Zeit, die das He an die Leerstelle gebunden ist, überwiegt, ist die Behinderung der He-Zwischengitterbewegung stark und für die effektive He-Diffusion bestimmend. Diese beiden Grenzfälle sollen nun genauer diskutiert werden.

1.2.1. schwache Behinderung

In diesem Fall befindet sich das He-Atom überwiegend auf Zwischengitterplätzen; das Verhältnis $c_{\text{He}}^{\text{S}}/c_{\text{He}}^{\text{I}}$ ist also $\ll 1$ und die effektive Diffusionskonstante ist nach (13) durch die Zwischengitterdiffusionskonstante bestimmt.

$c_{\text{He}}^{\text{S}}/c_{\text{He}}^{\text{I}}$ bleibt z.B. in dem betrachteten Temperaturintervall < 0.1 , sobald $E_{\text{He}(\text{S})}^{\text{B}} \lesssim 1.3$ eV ist ($E_{\text{V}}^{\text{F}} = 1.6$ eV). Die effektive He-Diffusion ist also durch die Diffusion des He im Zwischengitter bestimmt, sobald die Bindungsenergie des He an einen substitutionellen Gitterplatz $\lesssim 1.3$ eV ist. Der Vorfaktor der Diffusionskonstante, der in diesem Fall zu erwarten wäre, sollte ähnlich dem der Wasserstoffdiffusion in Nickel sein ($\sim 5 \times 10^{-3}$ cm²/sec /29/).

1.2.2. starke Behinderung

In diesem Fall befindet sich das He-Atom überwiegend auf einem substitutionellen Gitterplatz. Das Verhältnis $c_{\text{He}}^{\text{V}}/c_{\text{He}}^{\text{I}}$ ist $\gg 1$ und die effektive He-Diffusion nach (13) und (14) durch

$$\begin{aligned}
 D_{\text{He}}^{\text{eff}} &= D_{\text{He}}^{\text{I,M}} \cdot \frac{c_{\text{He}}^{\text{I}}}{c_{\text{He}}^{\text{S}}} \\
 &= D_{\text{O,He}}^{\text{I,M}} \cdot e^{(S_{\text{He}(\text{S})}^{\text{B}} - S_{\text{V}}^{\text{F}})/k} \cdot e^{-(E_{\text{He}(\text{S})}^{\text{diss}} - E_{\text{V}}^{\text{F}})k \cdot T}
 \end{aligned}
 \tag{16}$$

gegeben.

Der Vorfaktor in Gleichung (16) ergibt sich zu $1.9 \times 10^{-2} \text{ cm}^2/\text{sec}$, wenn man für $D_{\text{O,He}}^{\text{I,M}} = D_{\text{O,H}}^{\text{I,M}} = 5 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{sec} /29/$ und für

$e^{(S_{\text{He(S)} }^{\text{B}} - S_{\text{V}}^{\text{F}})/K}$ wieder $0,26^{-1}$ setzt.

Die He-Diffusion ist in diesem Fall durch die Differenz der Dissoziationsenergie des He von seinem substitutionellen Gitterplatz und der Bildungsenergie der Leerstellen bestimmt. Dies ist anschaulich zu verstehen, da die Diffusion einerseits von der Dissoziationszeit des He von seinem Gitterplatz abhängt, wie auch davon, wie oft das He auf seinem Diffusionsweg eingefangen wird. Die Zahl der Dissoziationsprozesse bei vorgegebenem Weg ist durch die thermische Leerstellenkonzentration bestimmt und nimmt daher mit der Temperatur ab, wohingegen die Dissoziationszeit mit fallender Temperatur zunimmt. Die effektive Aktivierungsenergie für die He-Diffusion ist daher nur durch die Differenz $(E_{\text{He(S)}}^{\text{diss}} - E_{\text{V}}^{\text{F}})$ bestimmt.

Es zeigt sich, daß sowohl der schwach behinderte wie auch der stark behinderte Zwischengitterdiffusionsmechanismus mit der gemessenen Diffusionskonstante verträglich sind. Im Fall schwacher Behinderung entspricht die Aktivierungsenergie von 0.81 eV der Zwischengitterwanderungsenergie. Der gemessene Vorfaktor von $\bar{D}_{\text{O}} = 5.65 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{sec}$ liegt in der gleichen Größe wie der Vorfaktor für die Wasserstoffdiffusion in Nickel, und ist so durchaus mit einer Zwischengitterbewegung in Übereinstimmung. Aus der Aktivierungsenergie für die Zwischengitterdiffusion, die in diesem Fall 0.81 eV betrage und der Bindungsenergie des He an seinen Gitterplatz, die in diesem Fall $\leq 1.3 \text{ eV}$ sein müßte, (siehe Kap. V, 1.2.1), läßt sich eine obere Grenze von $E_{\text{He(S)}}^{\text{diss}} = E_{\text{He(S)}}^{\text{B}} + E_{\text{He}}^{\text{I,M}} \leq 2.1 \text{ eV}$ abschätzen.

Dieser Wert ist noch mit Werten für $E_{\text{He(S)}}^{\text{diss}}$ verträglich, die aus He-Entgasungsexperimenten ermittelt wurden (2-2.5 eV). Gegen diese Erklärung der gemessenen Diffusionskonstante spricht, daß alle Modellrechnungen /18-22/ ergeben, daß $c_{\text{He}}^{\text{I}} \ll c_{\text{He}}^{\text{S}}$ sein sollte, d.h. daß die Bindungsenergie des He an eine Leerstelle deutlich größer als die Bildungsenergie der Leerstelle sein sollte. Die in der Literatur zu findenden experimentellen Werte für $E_{\text{He}}^{\text{I,M}}$ in Nickel von 0.35 bzw. 0.4 - 0.5 eV /7/37/ sind leider derart unsicher (siehe Einleitung), daß auch sie keine sichere Entstehung erlauben. Diese Werte deuten lediglich darauf hin, daß die He-Zwischengitterdiffusion in unserem Fall nicht die effektive He-Diffusion bestimmt und der Fall starker Behinderung wahrscheinlicher ist.

Im Fall starker Behinderung entspricht die gemessene Aktivierungsenergie von 0.81 eV der Differenz der Dissoziationsenergie des He von einem substitutionellen Gitterplatz und der Bildungsenergie der Leerstelle ($E_{\text{He(S)}}^{\text{diss}} - E_{\text{V}}^{\text{F}}$). Mit $E_{\text{V}}^{\text{F}} = 1.6$ eV ergibt sich damit $E_{\text{He(S)}}^{\text{diss}}$ zu 2.4 eV. Dieser Wert ist in guter Übereinstimmung mit den aus Entgasungsexperimenten erhaltenen Werten (2 - 2.5 eV). Der Vorfaktor, der für den Fall starker Behinderung abgeschätzt wurde, stimmt gut mit dem gemessenen überein.

In diesem Modell sind die thermisch erzeugten Leerstellen die dominierenden Senken für das im Zwischengitter diffundierende He. Die ermittelte Diffusionskonstante kann daher im Rahmen dieses Modells die He-Diffusion dann nicht mehr beschreiben, wenn die athermisch erzeugte, bestrahlungsinduzierte Defektkonzentration vergleichbar mit der thermischen wird. Dies wird in dem beschriebenen Experiment gerade in dem Temperaturbereich erreicht, indem der He-Strom aus der Oberfläche drastisch abnahm, (~ 700 °C).

Zusammenfassung

Zur Untersuchung der He-Diffusion in Nickel wurde eine Apparatur aufgebaut, bei der He in ein- und polykristalline Ni-Proben bei konstanten Temperaturen bis 1300 °C in Tiefen bis zu 80 µm mit konstanter Stromstärke implantiert wird. Gleichzeitig wird in einer UHV-Meßkammer die Freisetzung des He aus der Probe mit einem Massenspektrometer verfolgt. Aus der Verzögerung der He-Freisetzung, nach Beginn der He-Implantation läßt sich die Diffusionskonstante bestimmen. Dadurch konnte die He-Diffusion im Temperaturbereich von 800° bis 1250° gemessen werden, ohne daß bestrahlungsinduzierte Defekte die Diffusion behinderten. Die Diffusionskonstante ergibt sich zu:

$$D_{\text{He}} = D_{\text{O}} \cdot e^{-(0.81 \pm 0.04) \text{ eV/k} \cdot \text{T}} \text{ cm}^2/\text{sec}$$

mit $D_{\text{O}} = 10^{-2.2 \pm 0.3} \text{ cm}^2/\text{sec}$.

Die He-Diffusion ist weder durch Korngrenzendiffusion noch durch eine Diffusion entlang von Versetzungen bestimmt. Die Volumendiffusion erfolgt durch eine Zwischengitterbewegung, die durch den Einfang an thermischen Leerstellen mit anschließender Dissoziation immer wieder unterbrochen wird. Wenn die Diffusionszeit im Zwischengitter vergleichsweise klein gegenüber der Einfangzeit an Leerstellen ist, was aufgrund theoretischer Rechnungen über die He Aktivierungsenergie im Zwischengitter und die Bindungsenergie des He an einem substitutionellen Platz zu erwarten ist, entspricht die gemessene Aktivierungsenergie der Differenz der Dissoziationsenergie des He von einem substitutionellen Gitterplatz und der Bildungsenergie der Leerstelle. Mit der gemessenen Aktivierungsenergie von 0.81 eV ergibt sich damit eine Dissoziationsenergie von $E_{\text{He(S)}}^{\text{diss}} \approx 2.4 \text{ eV}$. Die ermittelte Diffusionskonstante ist aber auch mit einem Modell verträglich, in dem die Diffusionszeit im Zwischengitter groß gegenüber der Einfangzeit an Leerstellen ist. Dann wäre die gemessene Aktivierungsenergie von 0.81 eV gleich der Wanderungsenergie des intersti-

tiellen Heliums und die Bindungsenergie des He an einem substitutionellen Platz müßte $\leq \sim 1.3$ eV sein. Theoretische Modellrechnungen sprechen allerdings zugunsten des ersten Modells.

Bei allen Bestrahlungstemperaturen bis 1250 °C scheidet sich das He in Blasen aus, jedoch mit außerordentlich kleinen Blasendichten. Die im Temperaturbereich oberhalb 800 °C beobachtete geringere Nukleationsrate der He-Senkenbildung am Einkristall gegenüber den polykristallinen Proben deutet auf einen heterogenen Nukleationsmechanismus der He-Blasen hin. Unterhalb etwa 800 °C bilden sich in Nickel bei Bestrahlung neue stabile He-Senken in einer wesentlich dichteren Verteilung.

Anhang I Blasenwachstum

Das Wachstum der Blasen erfolgt unter Gleichgewichtsbedingungen, wenn die Oberflächenspannung der Blase dem inneren He-Druck in der Blase entspricht. Dann gilt:

$$n_{\text{He}}(r_B) = \frac{8 \cdot \pi \cdot \gamma \cdot r_B^2}{3 \cdot k \cdot T} \quad (\text{Gl. 2, Kap. III})$$

- γ : spezifische Oberflächenenergie 2000 erg / cm²
- k : Boltzmann-Konstante
- $T = 1400^\circ\text{K}$

Wenn $c_s = \text{const.}$ ergibt sich bei homogener Senkenverteilung der Sättigungsstrom aus:

$$j_\infty(t) = p \cdot e^{-\sqrt{A_2} x_p} = p \cdot e^{-\sqrt{4 \pi c_s r_B(t)} \cdot x_p} \quad (17)$$

(Gl. 26), Anhang III)

wo $r_B(t) = \sqrt{n_{\text{He}}(t) \cdot 3 k / 8 \pi \gamma}$

$n_{\text{He}}(t)$ ergibt sich aus der Lösung von

$$p(1 - e^{-\sqrt{c_o} |n_{\text{He}}(t)|^{1/2}}) = b \frac{d n_{\text{He}}(t)}{dt} \quad (18)$$

- p : Implantationsstromdichte
- b : Zahl der He-Blasen/cm²

$$c_o: 4\pi c_s x_p^2 \sqrt{3k/8\pi\gamma}$$

Anhang II Separation der Zeitkonstanten des Meßsystems von den Zeitkonstanten des He-Anstiegs

Die Zeitkonstante a des He-Partialdruckes in unserem Vakuum-system ergibt sich nach

$$p_{\text{He}} = p_0 e^{-\frac{t}{a}} \quad (\text{Gl. 1, Kap. II})$$

Bei einer He-Quellrate Q (Torrliter/sec.) stellt sich stationär ein Druck

$$p_{\text{He}} = \frac{Q}{s} \quad \text{ein} \quad (19)$$

wobei: s effektive Saugleistung der Pumpe ist |liter/sec|.

(1) und (19) führen zu

$$\dot{p}_{\text{He}} + \frac{p_{\text{He}}}{a} - \frac{Q}{V} = 0 \quad (20)$$

daraus folgt:

$$p_{\text{He}} = e^{-\frac{t}{a}} \int_0^t \frac{Q}{V} e^{-\frac{t'}{a}} dt' + c \quad (21)$$

$$\text{mit } Q(t) = Q_0 \int_0^t \frac{1}{4D^{1/2} t^{3/2}} e^{-\frac{x_p^2}{4Dt'}} dt' \quad (\text{Gl. (7), Kap. IV})$$

folgt:

$$p = \frac{Q_0}{V} \cdot e^{-\frac{t}{a}} \int_0^t \left[\int_0^{t'} \frac{1}{4D^{1/2} t^{3/2}} e^{-\frac{x_p^2}{4Dt''}} dt'' \right] e^{\frac{t'}{a}} dt' \quad (22)$$

$$Q_0 = p \cdot 2.83 \times 10^{-20} \text{ Torr} \cdot \text{liter} / \text{He} \cdot F$$

wo p : He-Produktionsrate |He/sec cm²|

F : implantierte Fläche |cm²|

durch partielle Integration ergibt sich:

$$\begin{aligned}
 p(t) = \frac{Q_o \cdot a}{v} & \int_0^t \frac{1}{4D^{1/2} t^{3/2}} e^{-\frac{x_p^2}{4Dt'}} dt' - \\
 & e^{-\frac{t}{a}} \int_0^t e^{\frac{t'}{a}} \frac{1}{4D^{1/2} t^{3/2}} e^{-\frac{x_p^2}{4Dt'}} dt'
 \end{aligned} \tag{23}$$

Die Zeitkonstanten wurden einmal mit und einmal ohne die Verzögerung durch das Meßsystem berechnet. Die Differenz der sich ergebenden Zeitkonstanten ist in Abb. 18 für $a = 0.147 \text{ sec.}$ mit $\tau_{1/2}$ verglichen.

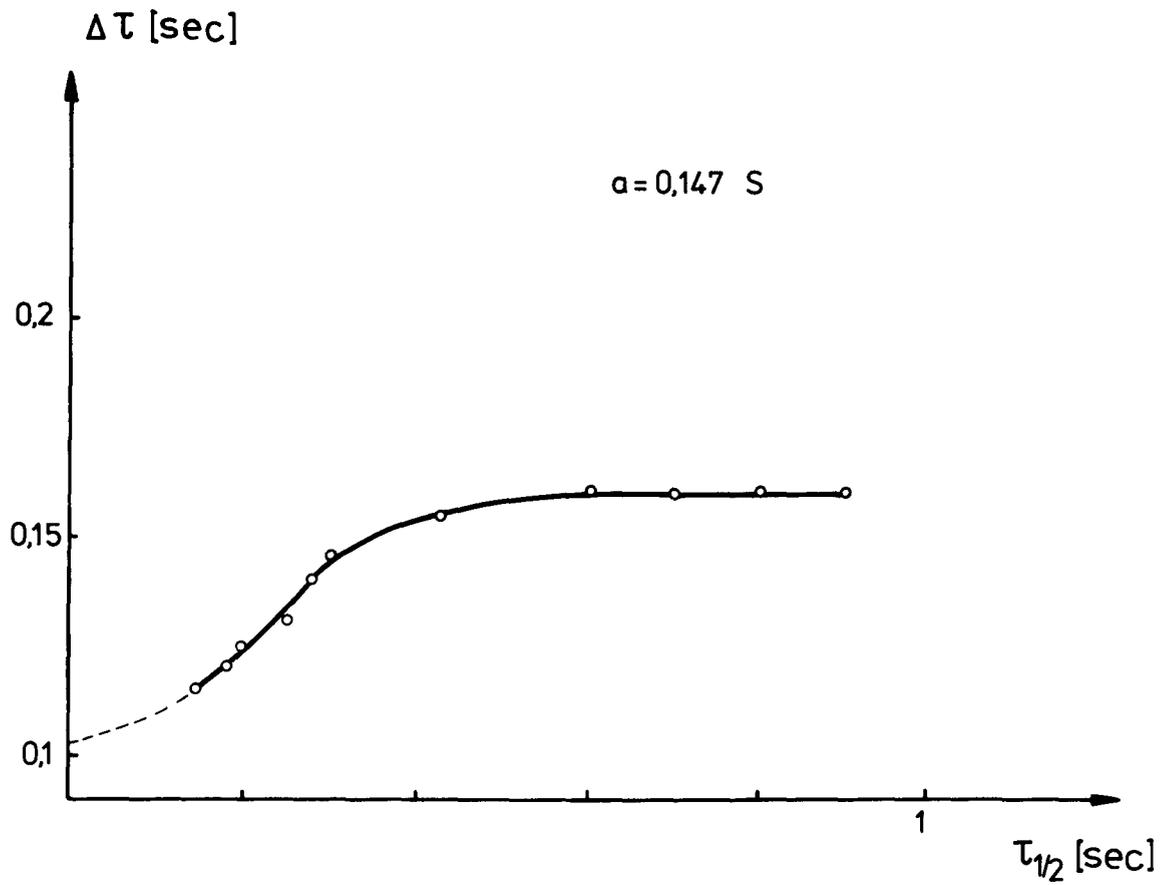


Abb. 18: Abhängigkeit der Differenz der Zeitkonstanten, berechnet einmal mit und einmal ohne die Verzögerung durch das Meßsystem, von $\tau_{1/2}$.

Anhang III.1

1. homogene Verteilung der Senken, Absorptionskoeffizient

$$A_2 = 4\pi r_B \cdot c_s \quad \text{mit } r_B: \text{Blasenradius} \quad c_s: \text{Blasenkonzentration}$$

Es gilt die Diffusionsgleichung

$$\frac{\partial c(x,t)}{\partial t} = D \cdot \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} - A_2 \cdot D \cdot c + p \cdot \delta(x-x_p) \phi(t) \quad (24)$$

- $c(x,t)$: He-Konzentration
- D : He-Diffusionskonstante
- p : He-Produktionsrate
- $\phi(t)$: 0 für $t < 0$
1 für $t \geq 0$

Randbedingung: $c = 0$ für $x = 0$

Diffusionsgleichung (24) wird durch die Green-Funktion

$$G(x, x_p, t) = \frac{\phi(t)}{(4\pi Dt)^{1/2}} \left[e^{-\frac{(x-x_p)^2}{4Dt}} - e^{-\frac{(x+x_p)^2}{4Dt}} \right] e^{-A_2 \cdot D \cdot t} \quad (25)$$

gelöst.

Damit wird: $c(x,t) = p \int_0^t G(x, x_p, t') dt'$

und $j(x=0, t) = -D \cdot \frac{\partial c(x,t)}{\partial x} \Big|_{x=0}$

$$j(x=0, t) = p \cdot \frac{4}{\sqrt{\pi}} \cdot x_p \cdot D \int_0^t \frac{1}{(4Dt_1)^{3/2}} \cdot e^{-\frac{x_p^2}{4Dt_1}} \cdot e^{-A_2 \cdot D \cdot t_1} dt_1 \quad (26)$$

durch die Transformation

$$y = \frac{x_p}{\sqrt{4Dt_1}}$$

geht Gleichung (26) in

$$j(\alpha, \beta) = p \cdot \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_{\alpha}^{\infty} e^{-y^2} \cdot e^{-\frac{\beta^2}{y^2}} dy \quad \text{über} \quad (27)$$

wo $\alpha = \frac{x_p}{\sqrt{4Dt}}$ $\beta = \frac{\sqrt{A_2} \cdot x_p}{2}$

für lange Zeiten $t \rightarrow \infty$, entsprechend $\alpha \rightarrow 0$ ergibt sich

$$j(\beta) = p \cdot \frac{2}{\pi} \int_0^{\infty} e^{-y^2} \cdot e^{-\frac{\beta^2}{y^2}} dy$$

$\frac{dj}{d\beta}$ und Substitution $x = \frac{\beta}{y}$ liefert

$$\frac{dj}{d\beta} = -2p \cdot \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^{\infty} e^{-x^2} \cdot e^{-\frac{\beta^2}{x^2}} dx = -2j$$

Diese Differentialgleichung mit der Randbedingung

$$j(\beta=0) = p \cdot \frac{2}{\pi} \int_0^{\infty} e^{-y^2} dy = p$$

liefert

$$j(\beta) = p \cdot e^{-2\beta}$$

also

$$j(t \rightarrow \infty) = j_{\infty} = p \cdot e^{-\sqrt{A_2} \cdot x_p} \quad (28)$$

Aus Gleichung (28) läßt sich bei bekanntem j_∞ und x_p der Absorptionskoeffizient berechnen. Er wird in Kap. III mit den aus den mikroskopischen Bildern ermittelten Absorptionskoeffizienten verglichen. Die Zeitkonstante $\tau_{1/2}^*$ des He-Stromes wurde aus Gleichung (26) für verschiedene Absorptionskoeffizienten A_2 und damit verschiedene Gleichgewichtssignale j_∞ numerisch berechnet. Sie sind in Abb. 15, Kap. III gegenüber j_∞ aufgetragen.

Anhang III.2

Deltaförmige Verteilung der Senken bei x_p , Absorptionskoeffizient $A_1 = 4\pi \cdot r_B \cdot b$; r_B : Blasenradius, b : Blasenzahl/cm². Es gilt

$$\frac{\partial}{\partial t} c(x,t) = D \cdot \frac{\partial^2}{\partial x^2} c(x,t) - c(x,t) \cdot A_1 \cdot D \cdot \delta(x-x_p) + p \cdot \delta(x-x_p) \phi(t) \quad (29)$$

p : Produktionsrate

D : Diffusionskonstante

$\phi(t) = 0$ für $t < 0$

$= 1$ für $t \geq 0$

mit Randbedingung: $c(0,t) = 0$ (keine Oberflächenbarriere) ohne Absorption wird das entsprechende Diffusionsproblem durch die Green Funktion

$$\overset{\circ}{G}(x, x_p, t) = \frac{1}{\sqrt{4Dt}} \left[e^{-\frac{(x-x_p)^2}{4Dt}} - e^{-\frac{(x+x_p)^2}{4Dt}} \right] \text{ gelöst.}$$

(Gleichung 5, Kap. III)

Gesucht: Green-Funktion, die Gleichung (29) löst: $G^{A_1}(x, x_p, t)$

Durch die Absorption bei x_p wird die ohne Absorption bestehende Wahrscheinlichkeit, ein Teilchen zum Zeitpunkt t am Ort x zu finden, die durch $\overset{\circ}{G}(x, x_p, t)$ bestimmt ist, um

die Wahrscheinlichkeit, daß dieses Teilchen bei x_p absorbiert wird, verringert. Die Absorptionswahrscheinlichkeit kann man als eine negative Produktion bei $x=x_p$, deren Gewicht durch die momentane Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Teilchens bei x_p $G^{A1}(x_p, x_p, t)$, die Diffusionskonstante und die Absorptionskonstante A_1 bestimmt ist, beschreiben. Dadurch ergibt sich

$$G^{A1}(x, x_p, t) = G^0(x, x_p, t) - \int_0^t G(x, x_p, t_1) \cdot G^{A1}(x_p, x_p, t) \cdot A_1 \cdot D \, dt_1 \quad (30)$$

Laplace - Transformation: $f(t) \rightarrow f_L(s)$

$$f_L(s) = \int_0^{\infty} e^{-st} f(t) \, dt$$

$$\rightarrow G_L^{A1}(x, x_p, s) = G_L^0(x, x_p, s) - A_1 \cdot D \cdot G_L^0(x, x_p, s) \cdot G_L^{A1}(x_p, x_p, s)$$

für $x=x_p$ ergibt sich

$$G_L^{A1}(x_p, x_p, s) = G_L^0(x_p, x_p, s) - A_1 \cdot D \cdot G_L^0(x_p, x_p, s) \cdot G_L^{A1}(x_p, x_p, s)$$

$$\rightarrow G_L^{A1}(x_p, x_p, s) = \frac{G_L^0(x_p, x_p, s)}{1 + A_1 \cdot D \cdot G_L^0(x_p, x_p, s)}$$

damit wird

$$\begin{aligned} G_L^{A1}(x, x_p, s) &= G_L^0(x, x_p, s) - A_1 \cdot D \cdot G_L^0(x, x_p, s) \frac{G_L^0(x_p, x_p, s)}{1 + A_1 \cdot D \cdot G_L^0(x_p, x_p, s)} \\ &= G_L^0(x, x_p, s) \left[1 - A_1 \cdot D \frac{G_L^0(x_p, x_p, s)}{1 + A_1 \cdot D \cdot G_L^0(x_p, x_p, s)} \right] \quad (31) \end{aligned}$$

Laplace - Transformation:

$$G_L^0(x, x_p, s) = \int_0^t e^{-st} \frac{1}{\sqrt{4\pi D \cdot t}} \left[e^{-\frac{(x-x_p)^2}{4D \cdot t}} - e^{-\frac{(x+x_p)^2}{4D \cdot t}} \right] dt$$

$$= \frac{1}{2D} \sqrt{\frac{D}{s}} \left[e^{-\sqrt{\frac{s}{D}} |x-x_p|} - e^{-\sqrt{\frac{s}{D}} |x+x_p|} \right]$$

$$G_L^0(x_p, x_p, s) = \int_0^t e^{-st} \frac{1}{\sqrt{4\pi D \cdot t}} e^{-\frac{|2x_p|^2}{4D \cdot t}} dt$$

$$= \frac{1}{2D} \cdot \sqrt{\frac{D}{s}} (1 - e^{-\sqrt{\frac{s}{D}} 2|x_p|})$$

Damit wird:

$$G_L^{0A1}(x, x_p, s) = \frac{1}{2D} \sqrt{\frac{D}{s}} \left[e^{-\sqrt{\frac{s}{D}} |x-x_p|} - e^{-\sqrt{\frac{s}{D}} |x+x_p|} \right]$$

$$x \left[1 - \frac{\frac{A_1}{2} (1 - e^{-\sqrt{\frac{s}{D}} 2|x_p|})}{\sqrt{\frac{s}{D}} + \frac{A_1}{2} (1 - e^{-\sqrt{\frac{s}{D}} 2|x_p|})} \right]$$

(32)

Bei kontinuierlicher Produktion bei x_p mit Rate p |He/cm²sec|

$$c(x, x_p, t) = p \int_0^t G(x, x_p, t_1) dt_1$$

Laplace - Transformation:

$$c_L(x, x_p, s) = \frac{p}{s} G_L^{A1}(x, x_p, s)$$

Strom durch Oberfläche bei $x = 0$

$$j(t) = -D \cdot \left. \frac{\partial c(x, x_p, t)}{\partial x} \right|_{x=0}$$

Laplace - Transformation:

$$j_L(s) = -D \cdot \left. \frac{\partial c_L(x, x_p, s)}{\partial x} \right|_{x=0}$$

(32)

$$= \frac{p}{s} \cdot \left(e^{-\sqrt{\frac{s}{D}} |x_p|} \right)$$

$$x \quad 1 - \frac{\frac{A_1}{2} (1 - e^{-\sqrt{\frac{s}{D}} 2|x_p|})}{\sqrt{\frac{s}{D}} + \frac{A_1}{2} (1 - e^{-\sqrt{\frac{s}{D}} 2|x_p|})}$$

mit

$$\frac{\frac{A_1}{2} (1 - e^{-\sqrt{\frac{s}{D}} 2|x_p|})}{\sqrt{\frac{s}{D}} + \frac{A_1}{2} (1 - e^{-\sqrt{\frac{s}{D}} 2|x_p|})}$$

$$= 1 - \frac{\sqrt{\frac{s}{D}}}{\sqrt{\frac{s}{D}} + \frac{A_1}{2} (1 - e^{-\sqrt{\frac{s}{D}} 2|x_p|})}$$

ergibt sich:

$$j_L(s) = \frac{p}{s} e^{-\sqrt{\frac{s}{D}} x_p} \frac{1}{1 + \sqrt{\frac{D}{s}} \frac{A_1}{2} (1 - e^{-2x_p \sqrt{\frac{s}{D}}})} \quad (33)$$

für lange Zeiten, $t \rightarrow \infty$, dem $s \rightarrow 0$ entspricht, ergibt sich:

$$j(s \rightarrow 0) = \frac{1}{s} \quad j(t \rightarrow \infty) = j_\infty \cdot \frac{1}{s}$$

$$j_L(\infty) = p \cdot \frac{1}{1 + A_1 \cdot x_p} \quad (34)$$

Durch numerische Rücktransformation des Laplace transformierten Stromes $j_L(s)$ (33) in $j(t)$ wurden für verschiedene Absorptionskoeffizienten A_1 und damit verschiedene Gleichgewichtssignale j_∞ jeweils die Zeitkonstanten $\tau_{1/2}^*$ berechnet (Kurve siehe Abb. 15). Aus (34) läßt sich wieder bei bekannten j_∞ und x_p , A_1 berechnen.

Literaturverzeichnis

- /1/ W.N. Mc Elroy, H. Farrar,
Proc. Radiation produced voids in metals,
Albany 1971, S. 187

- /2/ G.L. Kulcinski, R.G. Brown, R.G. Lott, P.A. Sanger
Nuclear Technology 22, 20 (1974)

- /3/ H.von den Driesch, Dissertation, RWTH Aachen,
Report der KFA Jülich, 1980

- /4/ Donnelly S.E.
Vacuum (G.B.), 28, No. 4, 163 (1978)

- /5/ R.O. Rantanen, A.L. Moen, E.E. Donaldson
The journal of Vac. Science and Technology, 7, No. 1,
18, (1969)

- /6/ D. Edwards, Jr. und E.V. Kornelson
Surface science 44, 1, (1974)

- /7/ J.R. Cost und R.G. Hickman
J. Vac. Sci. Technol. 12, No. 1, 516 (1974)

- /8/ J.P. Biersack, D. Fink, R.A. Henkelmann, K. Müller,
Research report, IBM, 4/11/79

- /9/ D.S. Whitmell und R.S. Nelson
Radiation effects 14, 249 (1972)

- /10/ D.J. Reed, F.T. Harris, D.G. Armour und G. Carter
Vacuum, 24, No. 4, 179 (1974)

- /11/ W. Bauer und W.D. Wilson
Proc. Radiation produced voids in metals
Albany 1971, S. 230

- /12/ D.J. Reed, D.G. Armour, G. Carter
Vacuum, 24, No. 10, 455 (1974)
- /13/ M. Hufschmidt, V. Heintze, W. Möller, D. Kamke,
Nuclear Instruments and Methods 124,
573 (1975)
- /14/ A. Taylor, T.E. Klippert (ANL)
Trans. Am. Nucl. Soc. (USA), 16, 82 (1973)
- /15/ J.P. Biersack, D. Fink, P. Mertens
Proc. Inter. Conf., KFA Jülich,
Plasma-wall-Interactions, Pergamon 1976
- /16/ R.S. Blewer
Journal of Nucl. Materials 53, 268 (1974)
- /17/ siehe beispielsweise: F.A. Smidt Jr., A.G. Pieper,
Semiannual Progr. Rep. N.R.L., Wash. DC, 1974
- /18/ W.D. Wilson
Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals,
Herausgeber: M.T. Robinson and F.W. Young, USA
ERDA Konf. 75 1006, 6-100 , Gatlinburg, USA, S. 1025
- /19/ N.R. Kestner, J. Jortner, M.H. Cohen,
und S.A. Rice,
Phys. Rev. 140, A60
- /20/ W.D. Wilson and C.L. Bisson,
Radiation Effects, 19, 53 (1973)
- /21/ W.D. Wilson, M.I. Basker, C.L. Bisson,
Physical Review B 13, Nr. 6, S. 2470 (1971)

- /22/ W.D. Wilson, C.F. Melius,
International Conference Rare Gases in metals and
ionic Solids, Harwell 1979
- /23/ H.R. Glyde, K.I. Mayne
Phil. Mag. 12, II, 997 (1965)
- /24/ H.R. Glyde, K.I. Mayne,
Phil. Mag. 12, II, 917 (1965)
- /25/ H.-G. Haubold,
Arbeitstagung der GSI-Darmstadt, GSI 73-7 (1973)
- /26/ R.S. Barnes , R.S. Nelson, in: Metallurgical Soc. Conf.
37, (Radiation effects), 1965, Herausgeber: W.F. Sheely, S. 217
- /27/ A.D. Le Claire,
Treatise on Solid State chemistry, 4,
Herausgeber: Bruce Hannay
- /28/ siehe beispielsweise: J.T. Robinson und N.L. Peterson,
Acta Met. 21, 1181 (1973; Surface Sci. 31, 586 (1972)
- /29/ Diffusion in Solids (Herausgeber: A.S. Nowick, J.J. Burton
Academic Press (1975) S. 272
- /30/ A.D. Le Claire,
Journal of nuclear materials, 69/70, 73 (1978)
- /31/ K. Maier, H.E. Lessmann und W. Schüle
Phys. stat. sol. (b) 78, 689 (1976)
- /32/ W. Wycisk und M. Feller-Kniepmeier
Journal of nuclear materials 69/70, 616 (1978)
- /33/ H. Matter, J. Winter, W. Triftshäuser
Appl. Phys. 20, 135 (1979)

- /34/ S. Snead Jr., K.G. Lynn, K. Farrell
Proceed. on the 5th Internat. Conf. on Positron
Annihilation
Lake Yamanaka, Japan, April 1979
- /35/ siehe beispielsweise: A.B. Lidiard,
Consultant Symposium, Rare Gases in Metals and
ionic solids, Harwell, 1979
- /36/ L.C. Northcliffe und R.F. Schilling,
Nuclear Data Tables A7, 233 (1970)
- /37/ G.J. Thomas, W.A. Swansiger, M.I. Baskes, J. Applied
Phys. 50, 11 (1979)

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

Herrn Prof. Dr. W. Schilling danke ich für die Anregung und Unterstützung dieser Arbeit sowie für viele klärende Diskussionen.

Herrn Dr. K. Sonnenberg und Herrn Dr. J.M. Williams danke ich für die aktive Hilfe bei allen auftretenden Problemen und der Auswertung der Meßergebnisse.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Dr. K. Schroeder für viele Diskussionen sowie insbesondere für die Erarbeitung der Lösung des Diffusionsproblems sowie Frau U. Hirdes für die Durchführung der numerischen Rechnungen.

Ferner gilt mein Dank dem Bedienungspersonal des Zyklotrons für ihre stete Hilfe und Geduld bei der Durchführung der Experimente sowie besonders auch Frl. G. Koll für das Schreiben des Manuskriptes.

Schließlich danke ich allen Mitarbeitern, die auf irgendeine Weise am Fortgang dieser Arbeit beteiligt waren.