

**Oberflächennahe Fehlstellen
infolge plastischer Verformung**

von

Christoph Bommas

Diplomarbeit in Physik
angefertigt am
Institut für Strahlen- und Kernphysik

vorgelegt der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der
Bonn

Im Januar 2000

Ich versichere, daß ich diese Arbeit selbständig verfaßt und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt sowie die Zitate kenntlich gemacht habe.

Referent: Prof. Dr. K. Maier

Korreferent: Prof. Dr. P. Herzog

1 EINLEITUNG	4
2 PHYSIKALISCHE GRUNDLAGEN.....	5
2.1 FEHLSTELLEN UND PLASTISCHE VERFORMUNG VON METALLEN	5
2.1.1 <i>Punktdefekte</i>	6
2.1.2 <i>Versetzungen</i>	6
2.1.3 <i>Weitere Fehlstellentypen</i>	12
2.2 POSITRONEN.....	13
2.2.1 <i>Positronenquellen</i>	13
2.2.2 <i>Positronen im Festkörper</i>	14
2.2.3 <i>Positronenspektroskopie</i>	17
2.2.4 <i>Wechselwirkung von Positronen mit Kristallfehlern</i>	19
2.3 WECHSELWIRKUNG VON WASSERSTOFF MIT KRISTALLFEHLERN	20
3 MESSVERFAHREN.....	21
3.1 DER LANGSAME POSITRONENSTRAHL	21
3.1.1 <i>Aufbau</i>	21
3.1.2 <i>Automatische Steuerung</i>	23
3.1.3 <i>Moderatorwechsel - Programm „SlowPos“</i>	24
3.2 BULKMESSUNGEN.....	25
3.3 PROBENPRÄPARATION	27
4 MESSUNGEN.....	29
4.1 DER EINFLUß DES CHEMISCHEN POLIERENS.....	29
4.1.1 <i>Unverformtes Kupfer</i>	29
4.1.2 <i>Verformtes Kupfer</i>	31
4.1.3 <i>Diskussion</i>	32
4.2 TIEFENVERLAUF DER VERSETZUNGSDICHTE	33
4.2.1 <i>Polykristallines Kupfer</i>	33
4.2.2 <i>Einkristallines Kupfer</i>	35
5 LITERATURVERZEICHNIS	37

. EINLEITUNG

1 Einleitung

2 Physikalische Grundlagen

2.1 Fehlstellen und plastische Verformung von Metallen

Kristalle sind niemals fehlerfrei. Dies ist eine Konsequenz thermodynamischer Gesetze. Die verschiedenen Arten von Kristallbaufehlern können nach ihren Dimensionen eingeordnet werden. Die makroskopischen mechanischen Eigenschaften von Metallen und anderen kristallinen Stoffen werden durch die Gitterfehler bestimmt. Träger der plastischen Verformung sind Versetzungen, die bereits 1934 postuliert wurden [Pol34]. Diffusionsprozesse sind eng mit Leerstellen verknüpft. Rekristallisation kann mit der Erzeugung und Bewegung von Korngrenzen beschrieben werden. Für das Verständnis der in dieser Arbeit beschriebenen Messungen sind vor allem die Versetzungsbewegung und die an Versetzungen assoziierten Leerstellen bedeutend. Dieses Kapitel soll die wichtigsten Eigenschaften der Kristallfehler kurz darstellen. Für umfassende Darstellungen sei auf die Fachliteratur verwiesen.

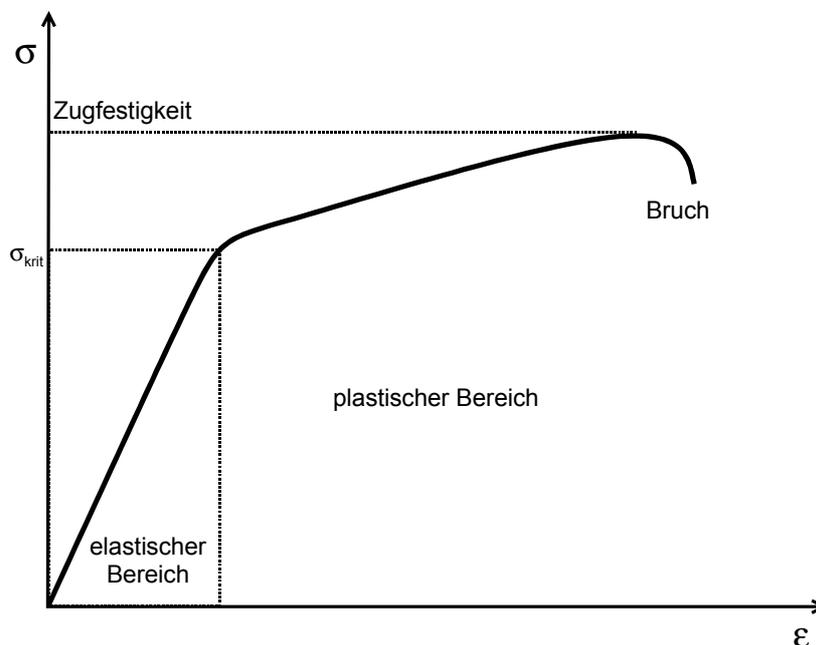


Abbildung 1: Spannungs-Dehnungs-Kurve für einen Zugversuch. Im Bereich kleiner Längenänderungen gilt das Hooksche Gesetz $\sigma = E \varepsilon$. Die Verformung ist dann elastisch und reversibel. Wird die kritische Spannung σ_{krit} überschritten, beginnt die plastische Verformung.

2.1.1 Punktdefekte

Atomare Leerstellen und Zwischengitteratome sind als 0-dimensionale Fehler der Gitterstruktur die einfachsten denkbaren Fehlstellen. Leerstellen können bei hohen Temperaturen im thermischen Gleichgewicht entstehen. Die Bildungsenergie einer Leerstelle ist die Energie, die benötigt wird, um ein Atom von seinem Gitterplatz zu entfernen. Sie ist in Metallen etwa proportional der Verdampfungswärme [Hor94] und liegt zwischen 0,8 und 2 eV¹. Daher kann die thermische Bildung von Leerstellen bei Raumtemperatur vernachlässigt werden. Zwischengitteratome liegen bei hohen Temperaturen nicht vor [Sim60, Sim63].

Leerstellen können auch in der Folge plastischer Verformung entstehen. Die Energie für die Erzeugung der Leerstellen stammt dann aus der mechanischen Verformungsarbeit. Dies wird im Abschnitt XXX näher beschrieben.

2.1.2 Versetzungen.

2.1.2.1 Versetzungstypen

Linienhafte Störungen des Kristallgitters werden *Versetzungen* genannt. Diese eindimensionalen Fehler setzen sich aus zwei fundamentalen Typen zusammen: der Stufen- und der Schraubenversetzung (s. Abbildung 2). Eine Versetzung kann durch die Richtung der Versetzungslinie \vec{s} und den Burgersvektor \vec{b} beschrieben werden. Der Burgersvektor ist die Summe der elastischen Verschiebungen aller Atome für einen Umlauf um die Versetzungslinie.

¹ In Kupfer beträgt die Bildungsenergie etwa 1,3 eV.

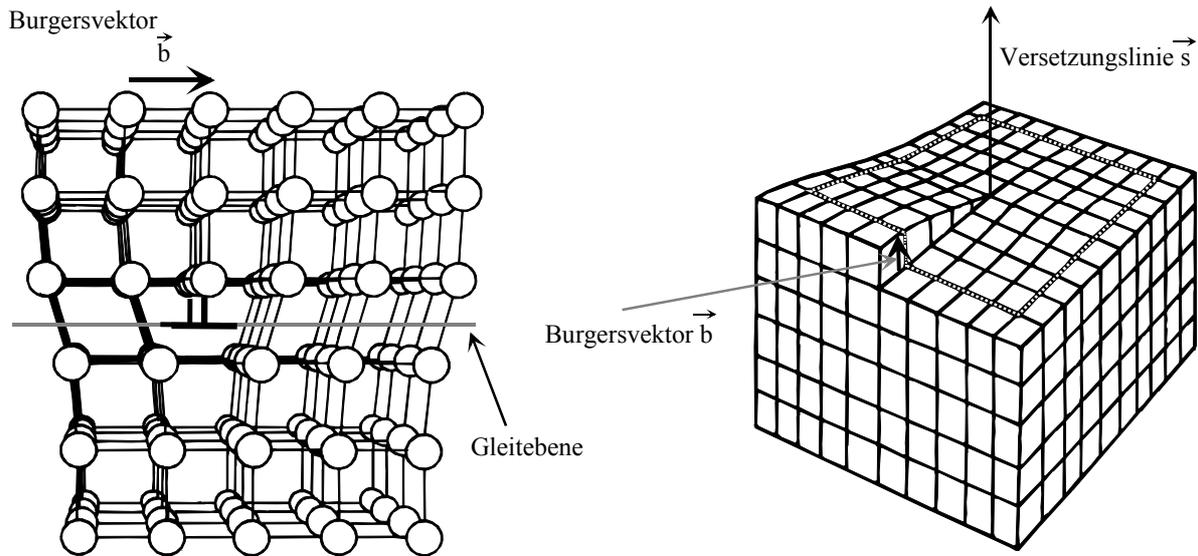


Abbildung 2: Stufenversetzung (links) und Schraubenversetzung (rechts) im kubisch primitiven Gitter. Beide Versetzungstypen werden durch die Richtung der Versetzungslinie \vec{s} und den Burgersvektor \vec{b} beschrieben. Bei der Stufenversetzung tritt \vec{s} aus der Zeichenebene hinaus.

Ein charakteristischer Unterschied zwischen Stufen- und Schraubenversetzung ist die Orientierung der beiden Vektoren zueinander. Während \vec{s} und \vec{b} einer reinen Stufenversetzung orthogonal zueinander sind, liegen die beiden Vektoren bei einer reinen Schraubenversetzung parallel. Da sich \vec{s} entlang der Versetzungslinie ändern kann, der Burgersvektor aber konstant bleibt, ist der Charakter einer Versetzung entlang ihrer Linie veränderlich. Der Burgersvektor einer solchen gemischten Versetzung ist die

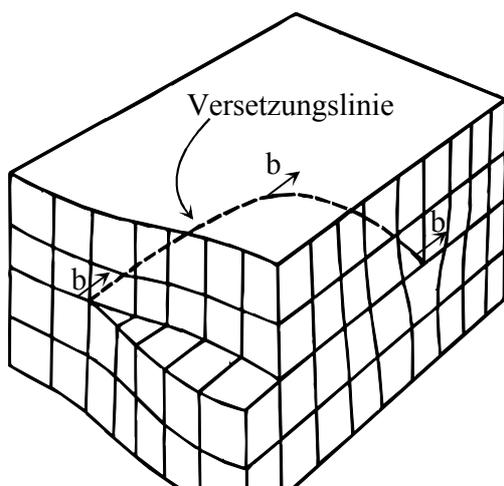


Abbildung 3: Verändert sich die Richtung der Versetzungslinie, ändert sich auch der Charakter der Versetzung.

Summe der Burgersvektoren von Stufen- und Schraubenanteil. Praktisch kommen beliebig gemischte Versetzungen vor.

In der Umgebung der Versetzungslinie entspricht die Anordnung der Atome nicht der Gleichgewichtslage im perfekten Kristall. Die Verzerrung des Gitters erzeugt ein Spannungsfeld, das mit $1/r$ abfällt. Dabei entspricht r dem Abstand von der Versetzungslinie. Diese weitreichenden Spannungsfelder verursachen komplexe Wechselwirkungen der Versetzungen untereinander und mit anderen Gitterfehlern.

Unterscheiden sich zwei parallele Versetzungen

durch das Vorzeichen entweder des Burgersvektors oder der Richtung der Versetzungslinie, nennt man sie antiparallel. Antiparallele Stufenversetzungen können als gegeneinander eingeschobene Teilebenen dargestellt werden. Antiparallele Schraubenversetzungen unterscheiden sich in ihrem Schraubensinn [Got98]. Wenn zwei antiparallele Stufenversetzungen aufeinander treffen, können sie sich auslöschen oder eine stabile Versetzungsanordnung wie z.B. einen Dipol bilden. Solche unbeweglichen Hindernisse, zu denen auch Sprünge (siehe unten) gehören, schränken die Bewegungsmöglichkeit von Versetzungen ein.

2.1.2.2 Versetzungsbewegung

Bei der plastischen Verformung eines Kristalls wird seine Gestalt geändert. Da hierbei die Gitterstruktur erhalten bleibt, müssen ganze Kristallbereiche um ganzzahlige Vielfache eines Atomabstands in einer kristallographischen Ebene verschoben werden. Eine solche Bewegung wird *Gleiten* genannt und kann durch die Bewegung von Versetzungen beschrieben werden (s. Abbildung 3).

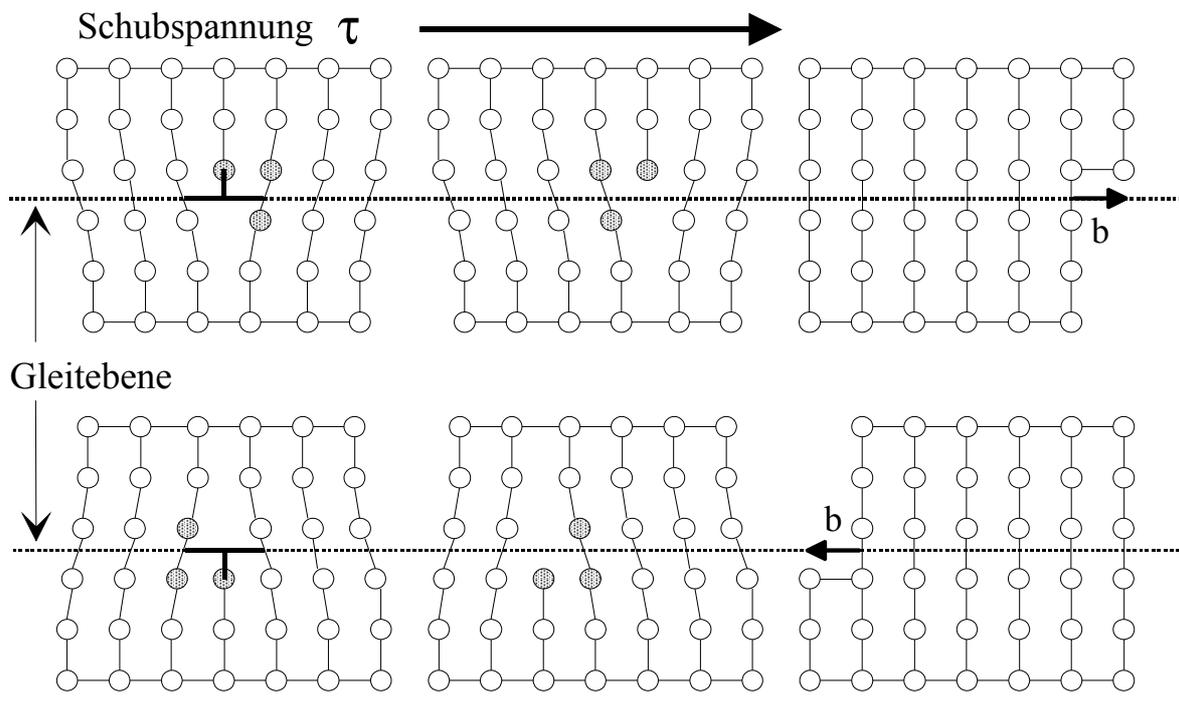


Abbildung 3: Wird die kritische Schubspannung τ überschritten, kann eine Stufenversetzung parallel zur Gleitebene durch das Gitter gleiten (links, Mitte). Erreicht sie die Oberfläche (rechts), bleibt eine Stufe von der Höhe des Burgersvektor \bar{b} zurück. Antiparallele Versetzungen bewegen sich dabei entgegengesetzt.

Die Bewegung findet auf einer dichtest gepackten kristallographischen Ebene statt, der sogenannten *Gleitebene*². Für eine Stufenversetzung wird die Gleitebene von \vec{s} und \vec{b} aufgespannt. Schraubenversetzungen besitzen keine ausgezeichnete Gleitebene, da \vec{s} und \vec{b} parallel verlaufen. Eine Gleitebene bildet zusammen mit einer Gleitrichtung ein Gleitsystem. Abhängig von der Anzahl der aktiven Gleitsysteme wird bei der plastischen Verformung zwischen Einfach- und Mehrfachgleitung unterschieden.

Die potentielle Energie einer Versetzung ändert sich mit der Bewegung auf der Gleitebene. Der Prozeß kann mit Hilfe des periodischen Peierls-Potentials beschrieben werden, durch das sich die Versetzungslinie bewegt. Die Gleichgewichtslagen entlang der Gittergeraden werden Peierls-Täler genannt [Schi92].

Versetzungen können sich auch quer zu den Gleitebenen bewegen. Diese Vorgänge werden als *Klettern* oder *Quergleitung* bezeichnet. Beim Klettern wechseln Stufen- oder gemischte Versetzungen die Gleitebene. Dieser Prozeß ist nur durch die Erzeugung und Vernichtung von Punktdefekten möglich. Dadurch verändert sich das Volumen des Kristalls.

Schraubenversetzungen besitzen keine ausgezeichnete Gleitebene und können durch Quergleitung die Gleitebene wechseln. Dies führt zur Bildung nicht-gleitfähiger Sprünge.

2.1.2.3 Versetzungssprünge

Bewegt sich eine Versetzung durch den Kristall, kann es zu verschiedenen Fehlern der Versetzungslinie kommen. Wechselt eine Versetzung auf einem Segment der Versetzungslinie in ein benachbartes Peierls-Tal, wird dies als *Kinke* bezeichnet. Wenn eine Versetzung auf eine parallele Gleitebene übergeht, nennt man dies einen *Sprung*. Der Sprung besitzt eine andere Gleitebene als die Versetzung.

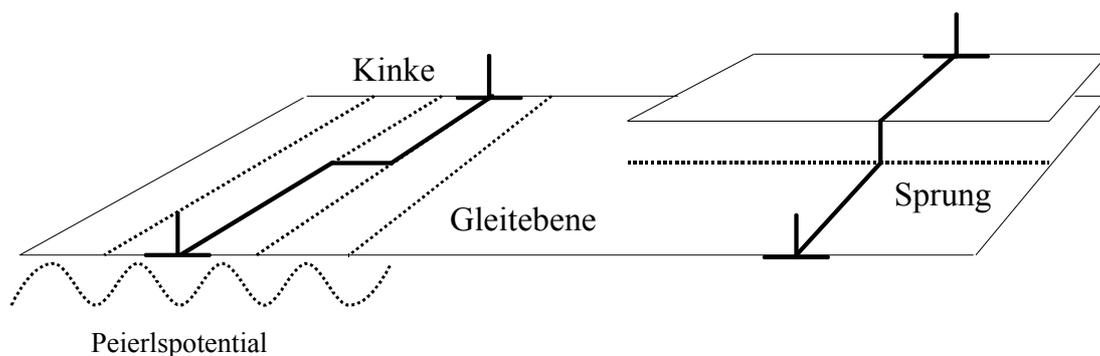


Abbildung 4: Defekte entlang der Versetzungslinie.

² Für kubisch-flächenzentrierte Kristalle wie Kupfer sind dies die $\{111\}$ Ebenen.

Versetzungen können sich aufspalten. Die Folge ist die Bildung von Stapelfehlern. Zur Erzeugung des Verzerrungsfelds um eine Versetzung ist eine elastische Energie E_{el} notwendig. Zwischen dieser Energie und dem Burgersvektor besteht ein quadratischer Zusammenhang. Dadurch kann bei der Aufspaltung in zwei Partialversetzungen ein energetisch günstigerer Zustand erreicht werden. Zusätzlich muß die Stapelfehlerenergie berücksichtigt werden, die zur Erzeugung des mit der Aufspaltung verbundenen Stapelfehlers benötigt wird. Ist die Stapelfehlerenergie kleiner als die beim Aufspalten gewonnene Energie, kann sich die Versetzung spalten. Eine niedrige Stapelfehlerenergie bewirkt eine große Aufspaltungsweite³.

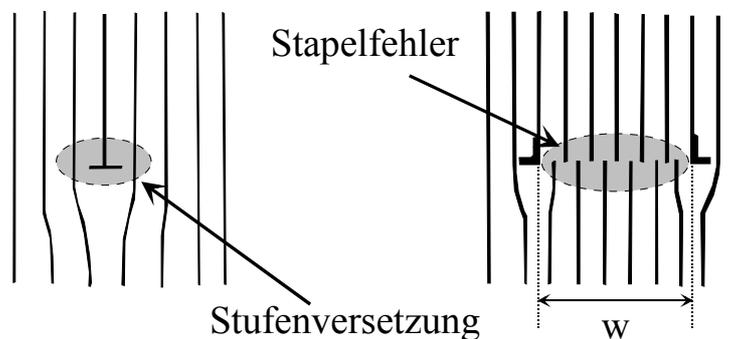


Abbildung 5: Die beiden Teilversetzungen einer aufgespaltenen Stufenversetzung begrenzen einen Stapelfehler. Die Weite der Aufspaltung w wird durch die Stapelfehlerenergie bestimmt.

2.1.2.4 Mittlere freie Weglänge von Versetzungen

Wird ein Kristall mit einer kleinen Schubspannung τ verformt, so daß nur Einfachgleitung vorliegt, gibt es hauptsächlich einen Fluß von Stufenversetzungen. Das Verhalten der Versetzungsdichte kann daher als eindimensionales Problem in Gleitrichtung betrachtet werden (siehe Abbildung 6) Dabei bewegen sich Stufenversetzungen mit positivem Vorzeichen in Richtung der Schubspannung τ . Die antiparallelen Versetzungen mit negativem Vorzeichen bewegen sich genau entgegengesetzt. Erreichen die Versetzungen die Oberfläche oder eine Korngrenze, rekombinieren sie und verschwinden.

Treffen die Versetzungen auf ein Hindernis, zum Beispiel einen nicht gleitfähigen Sprung oder einen Versetzungsdipol, werden sie aufgehalten. Dies begrenzt die mittlere freie Weg-

³ In Kupfer beträgt die Aufspaltung etwa fünf Gitterkonstanten.

länge \bar{L} . Sie ist temperaturabhängig und beträgt für Kupfer bei Raumtemperatur etwa 2 mm [Liv62].

Zunächst werden Kristalle betrachtet, deren Ausdehnung in Gleitrichtung $L > 2\bar{L}$ ist.

Versetzungen mit negativem Vorzeichen bewegen sich von der linken Oberfläche S_L in Richtung der rechten Oberfläche S_R . Erreichen sie S_R , verschwinden sie dort. Gleichzeitig können bei S_L keine neuen Versetzungen entstehen. Geht man davon aus, daß die Versetzungsquellen homogen verteilt sind und ihr Abstand klein ist gegen die mittlere freie Weglänge der Versetzungen, nimmt die Versetzungsdichte an der Oberfläche S_L ab. Der gleiche Prozeß findet für die Versetzungen mit positivem Vorzeichen in umgekehrter Richtung statt. Werden die Versetzungsdichten addiert, ergibt sich eine Zunahme der Versetzungsdichte von der Oberfläche bis zur Tiefe \bar{L} . Im Inneren ist die Versetzungsdichte konstant [Fou67].

Kristalle mit $\bar{L} < L < 2\bar{L}$ sollten statt eines Plateaus ein Maximum der Versetzungsdichte im Inneren aufweisen. Kristalle und Körner mit $L < \bar{L}$ sollten über die gesamte Ausdehnung eine konstante Versetzungsdichte aufweisen.

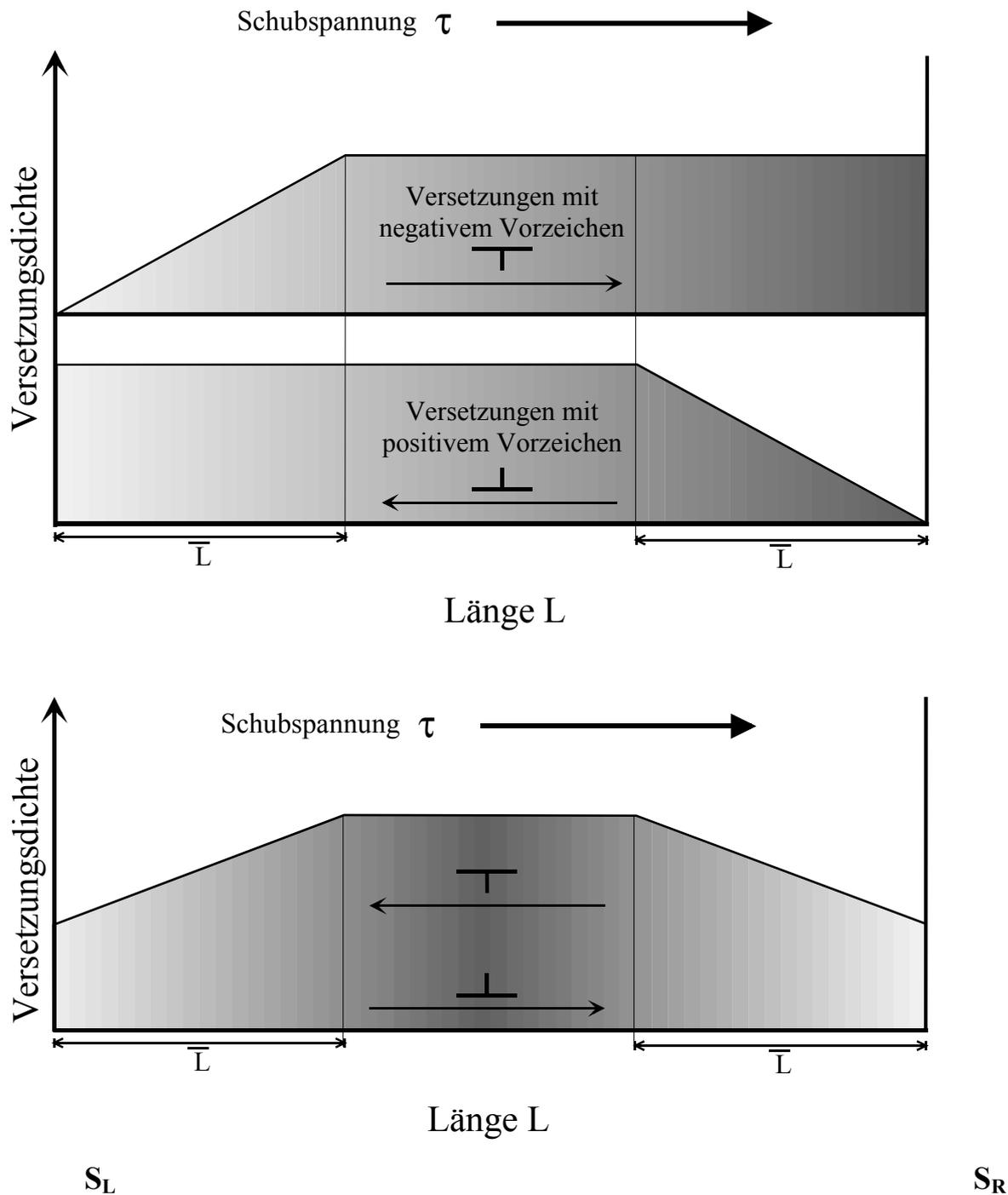


Abbildung 6: Tiefenabhängigkeit der Versetzungsdichte

2.1.3 Weitere Fehlstellentypen

Neben Punktdefekten und Versetzungen existieren weitere Fehler in der Gitterstruktur. Bereits erwähnt wurden die Stapelfehler. Sie entstehen nicht nur durch die Aufspaltung von Versetzungen sondern auch durch die Zusammenlagerung von Leerstellen oder Zwischengitteratomen. Stapelfehler werden immer durch eine Teilversetzung begrenzt, deren Burgervektor

kleiner als eine primitive Gittertranslation ist (siehe Abbildung 5). Neben diesen zweidimensionalen Strukturen können sich Leerstellen auch zu dreidimensionalen Clustern zusammenlagern. Diese Hohlräume können eine Größe einiger Nanometer erreichen.

Ein weiterer bedeutender dreidimensionaler Gitterfehler ist die Korngrenze. Sie begrenzt einkristalline Bereiche gleicher Struktur aber unterschiedlicher Orientierung. Kleinwinkelkorngrenzen können durch eine Ansammlung von Stufenversetzungen beschrieben werden. Für Großwinkelkorngrenzen kann das Versetzungsmodell keine allgemeingültige Beschreibung liefern [Got98].

2.2 Positronen

2.2.1 Positronenquellen

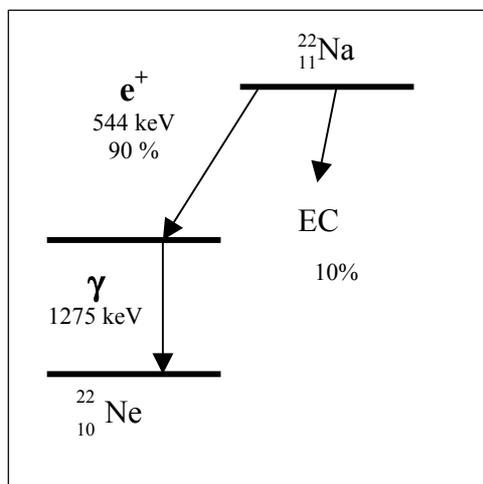


Abbildung 7: Zerfallsschema von ^{22}Na

Als Antiteilchen des Elektrons wurde das Positron 1928 von Dirac vorhergesagt. Wenige Jahre später, 1932, konnte Anderson zum ersten Mal Positronen im Experiment nachweisen. Die von ihm gefundenen Positronen stammten vom Zerfall von Myonen der Höhenstrahlung $\mu^+ \rightarrow e^+ + \nu_\mu + \nu_e$. Positronen entstehen außerdem bei der Paarbildung. Dieser Effekt wird auch an großen Beschleunigern zur Erzeugung eines intensiven Positronenstrahls genutzt. Als dritte Quelle ist der β^+ Zerfall neutronenarmer Atomkerne von besonderer technischer Bedeutung. Dabei wandelt sich ein Proton unter Emission eines Positrons und eines Elektronenneutrinos in ein Neutron um: $p \rightarrow e^+ + n + \nu_e$. Verschiedene Isotope können als Quellen mit ausreichender Aktivität durch Kernreaktionen hergestellt werden. Besonders geeignet ist ^{22}Na . Es zeichnet sich durch eine vergleichsweise große Halbwertszeit⁴ von 2,6 Jahren aus. Bei der Verwendung für Lebensdauermessungen kann das prompte γ -Quant mit 1275 keV Energie als Startsignal genutzt werden. Die maximale kinetische Energie der Positronen beträgt 544 keV. In den Experimenten und Geräten dieser Arbeit wurden ausschließlich ^{22}Na -Quellen verwendet.

⁴ Halbwertszeit anderer häufig genutzter Positronenquellen XXX

Im Vakuum ist das Positron stabil, die theoretische Halbwertszeit $\tau_{1/2}$ beträgt mehr als $2 \cdot 10^{22}$ Jahre [Schu88]. In Materie hingegen zerstrahlt es schon nach 10^{-10} bis 10^{-9} Sekunden. Die Lebensdauer von Positronen kann durch Bildung von Positronium verlängert werden.

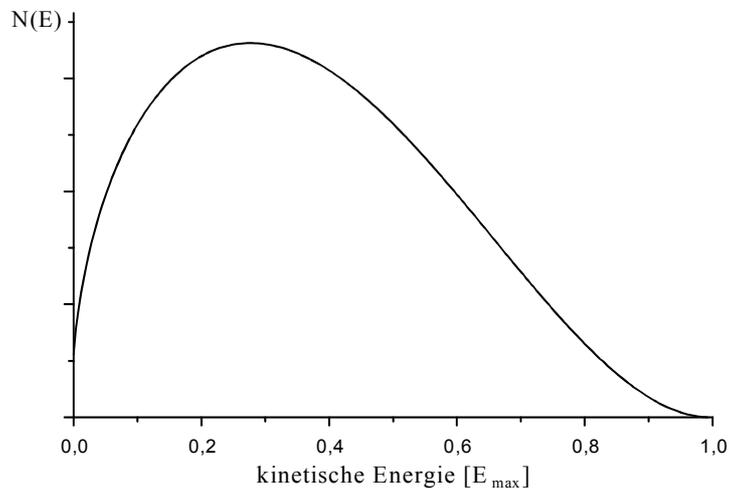


Abbildung 8: β^+ -Spektrum ohne Coulomb-Korrektur

Positronium ist ein gebundener Zustand zwischen einem Elektron und einem Positron. Es kann im Vakuum oder in Isolatoren gebildet werden. Die Lebensdauer wird durch die Spinoorientierung bestimmt. Der Singulett-Zustand besitzt eine Lebensdauer von 125 ps und zerfällt in eine gerade Anzahl Photonen. Wegen der Spinerhaltung muß der Triplett-Zustand in eine ungerade Anzahl Photonen zerstrahlen. Dies führt zu einer Lebensdauer von 140 ns. Das Besetzungsverhältnis zwischen Triplett- und Singulett-Zustand beträgt entsprechend der Multiplizität 3/1. Der Triplett-Zustand beeinflusst die Messungen wenig, da Photonen aus dem 3 γ Zerfall kaum zur 511 keV Linie beitragen. Photonen aus dem Singulett-Zustand können die Messung stark beeinflussen. Schon ein geringer Positronium Anteil überdeckt Meßsignale aus der Zerstrahlung im Festkörper. Ein Beispiel zeigt die Messung in Abschnitt Polykristallines Kupfer.

2.2.2 Positronen im Festkörper

2.2.2.1 Thermalisierung

Positronen, die in einen Festkörper eindringen, geben innerhalb weniger Picosekunden ihre kinetische Energie ab. Im Endzustand befinden sie sich im thermischen Gleichgewicht mit dem Festkörper. Ihre kinetische Energie liegt dann in der Größenordnung $E_{th} = 3/2 k_b T \approx 1/25$ eV. Obwohl Positronen Fermionen sind, ist davon auszugehen, daß sie immer den energetisch

niedrigsten Zustand einnehmen. Durch die geringe Anzahl der Positronen und die kurze Lebensdauer befindet sich im Mittel immer nur ein Positron in der Probe. Für den Prozeß der Thermalisierung sind Zeitskala und Energie korreliert.

Innerhalb von 0.1 ps nach dem Eindringen in den Festkörper verliert das Positron den größten Teil seiner kinetischen Energie von einigen MeV bis auf wenige eV. Die dominierenden Prozesse sind Bremsstrahlung im Kernfeld und anschließend Mottstreuung. Entsprechend der verbleibenden kinetischen Energie werden zunächst kernnahe Elektronen angeregt. Sind diese nicht mehr erreichbar, kommt es zur Anregung von Valenzelektronen.

Der nun folgende Energieverlust von wenigen eV bis zu thermischen Energien dauert bis zu 10 ps. Oberhalb der Fermienergie E_F erfolgt der weitere Energieverlust durch inelastische Streuung an Leitungselektronen⁵ unter der Bildung von Elektron-Loch-Paaren und Plasmonenanregung. Die letzte Stufe der Thermalisierung unterhalb E_F bildet die inelastische Streuung an Phononen.

2.2.2.2 Diffusion

Bis zur Thermalisierung vergehen nur wenige ps. Die die mittlere Positronenlebensdauer in Metallen beträgt jedoch 100 – 200 ps. Das Positron diffundiert den weitaus größten Teil seiner Lebensdauer durch den Festkörper. Es bewegt sich dabei als freies Teilchen annähernd isotrop⁶ durch das Gitter und wird dabei quasi-elastisch an Phononen gestreut. Mit Hilfe der effektiven Lebensdauer τ_{eff} und des Diffusionskoeffizienten D_+ kann die mittlere Diffusionslänge L_+ bestimmt werden:

$$L_+ = \sqrt{6 \cdot D_+ \cdot \tau_{eff}} \quad (1)$$

Für einkristallines Kupfer wurde experimentell $D_+ = 0.9 \text{ cm}^2/\text{s}$ gefunden [Schu88]. Mit der theoretischen Lebensdauer des Positrons von ca. 110 ps [Pus94, Häk90] in einem ungestörten Kupferkristallgitter ergibt sich eine mittlere Diffusionslänge von $L_+ = 240 \text{ nm}$.

Treffen die Positronen auf ihrem Weg durch das Gitter auf Potentialmulden, wie sie durch Fehlstellen entstehen, werden sie eingefangen. Sie können diese Haftstellen bis zur Zerstrahlung nicht mehr verlassen, da die Bindungsenergie in der Größenordnung von 1 eV deutlich größer als die Positronenenergie von 1/25 eV ist.

Die Wechselwirkung von Positronen mit Kristallfehlern wird im Kapitel 2.2.4 näher beschrieben.

⁵ In Isolatoren ist die Thermalisierung durch die Bandlücke zwischen Valenz- und Leitungsband gehemmt und gegenüber Leitern verlangsamt [Pus94, Schu88].

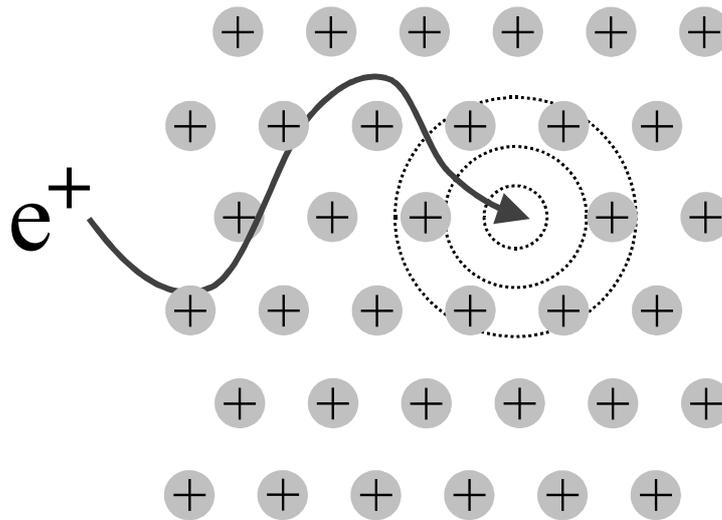


Abbildung 9: Atomare Leerstellen bilden ein attraktives Potential für diffundierende Positronen

2.2.2.3 Eindringtiefe

Bestimmend für die Eindringtiefe von Positronen in ein Material sind im wesentlichen ihre kinetische Energie und die Massendichte der Substanz ρ . Die Positronenintensität $I(z)$ läßt sich als Funktion der Tiefe z durch ein Exponentialgesetz beschreiben:

$$I(z) = I_0 e^{-\alpha_+ z} \quad (2)$$

Die Größe $1/\alpha_+$ ist dann die charakteristische Eindringtiefe. Für Positronen aus einem radioaktiven Präparat mit der maximalen Energie E_{max} wurde ein empirischer Ausdruck für α_+ gefunden [Pus94]:

$$\alpha_+ \approx 17 \frac{\rho}{E_{max}^{1.43}} \quad (3)$$

Für Kupfer mit $\rho = 8.9 \text{ g/cm}^3$ ergibt sich daraus bei der Verwendung eines ^{22}Na -Präparates mit $E_{max} = 544 \text{ keV}$ eine charakteristische Eindringtiefe von $30 \text{ }\mu\text{m}$. Die Informationen der Messung werden also entsprechend der Energieverteilung des Präparates aus der Integration über ein Volumen in der Probe gewonnen.

Sollen die Informationen nur aus einer bestimmten Schicht kommen, benötigt man monoenergetische Positronen, wie sie zum Beispiel durch den SlowPos oder die Mikrosonde⁷ geliefert werden. Da die hier verwendeten Positronen niederenergetisch sind müssen bei der

⁶ Die Bewegung ist nur annähernd isotrop, da die Atome als Streuzentren durch die Anisotropie des Gitters nicht isotrop verteilt sind.

⁷ Strahlenergien: Slowpos 0.5-17 keV durchstimbar, Mikrosonde 30 keV konstant

Bestimmung der Eindringtiefe Oberflächeneffekte berücksichtigt werden. Monte-Carlo-Simulationen liefern hier gute Übereinstimmung mit experimentellen Ergebnissen [Val84].

Für die mittlere Eindringtiefe in Abhängigkeit von der Dichte ρ gilt:

$$\bar{z} = \frac{A}{\rho} \cdot E_+^n \quad (4)$$

Mit Hilfe der Simulation für die Stoppverteilung wurden Werte für die Konstante $A \approx 4\mu\text{g}/\text{cm}^2$ und den Exponenten $n = 1.54$ für Kupfer gewonnen. Die Eindringtiefe kann dann als Funktion der Strahlenergie aufgetragen werden (siehe Abbildung 10).

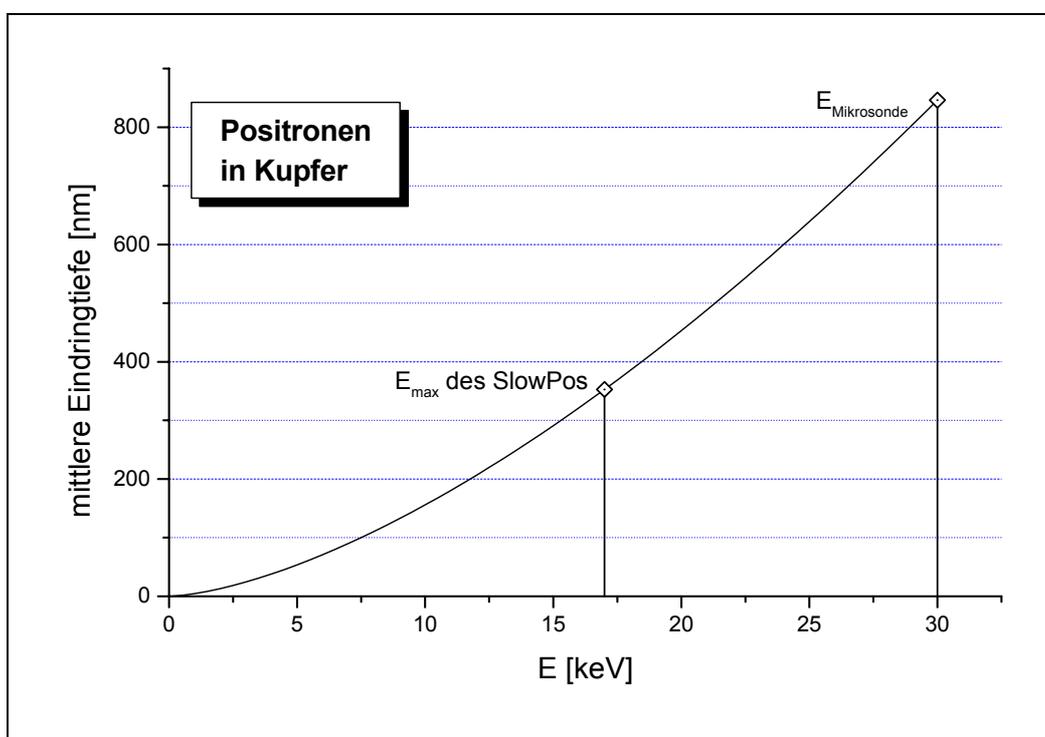


Abbildung 10: Mittlere Eindringtiefe von Positronen in Kupfer nach Gleichung (4)

2.2.3 Positronenspektroskopie

Die Positronenannihilation erlaubt die Beobachtung zweier wichtiger Kenngrößen. Dies sind die Positronenlebensdauer sowie die Impulsverteilung der Annihilationsquanten im Laborsystem. Die Impulsverteilung kann in longitudinaler Richtung durch energieauflösende Messung und in transversaler Richtung durch winkelauflösende Messung bestimmt werden. In dieser Arbeit werden Daten aus energieauflösenden Messungen verwendet.

Bei der energieauflösenden Messung wird die Dopplerverbreiterung der 511 keV-Annihilationslinie beobachtet. Betrachtet man die 2- γ -Annihilation im Schwerpunktsystem,

besitzen beide γ -Quanten eine Energie von 511 keV und werden unter einem Winkel von 180° zueinander emittiert. Die gemeinsame Ruhemasse von Elektron und Positron von 1022 keV ist symmetrisch auf beide γ -Quanten verteilt und der Gesamtimpuls des Systems ist Null. Geht man zum Laborsystem über, muß der Impuls von Elektron und Positron berücksichtigt werden. Dabei ist das Positron fast immer thermalisiert (siehe Abschnitt 2.2.2), sein Impuls kann gegenüber dem Impuls des Elektrons vernachlässigt werden. Der Gesamtimpuls P_{ges} ist also ungefähr dem Impuls des Elektrons gleich. Definiert man die Linie zwischen dem Zerstrahlungsort und dem Detektor als longitudinale Achse und p_l als longitudinale Komponente des Paarimpulses, ergibt sich für die Energie $E_{1,2}$ der γ -Quanten:

$$E_{1,2} = \frac{1}{2} E'_{total} \left(1 \pm \frac{p_l}{2m_0c} \right) \quad (5)$$

Dabei ist E'_{total} die Gesamtenergie im Laborsystem. Sie ergibt sich aus der relativistischen Transformation:

$$E'_{total} = E_{total} / \sqrt{1 - v^2/c^2} \quad (6)$$

v bezeichnet die Geschwindigkeit des Schwerpunktes des Elektron-Positron-Paares.

Die Annihilationslinie ist also symmetrisch um E'_{total} und um p_l verbreitert. Verschiebungen der Annihilationslinie, die durch Änderungen in E'_{total} hervorgerufen werden, können in den meisten Fällen vernachlässigt werden. Wichtige Meßgröße ist jedoch die Verbreiterung der Linie durch p_l . Zerstrahlt ein ruhendes Positron mit einem Elektron mit einer kinetischen Energie von 10 eV, wird die Energie der γ -Quanten um maximal ca. 1,6 keV verändert. Diese Verbreiterung kann mit stabilisierten Germaniumdetektoren nachgewiesen werden.

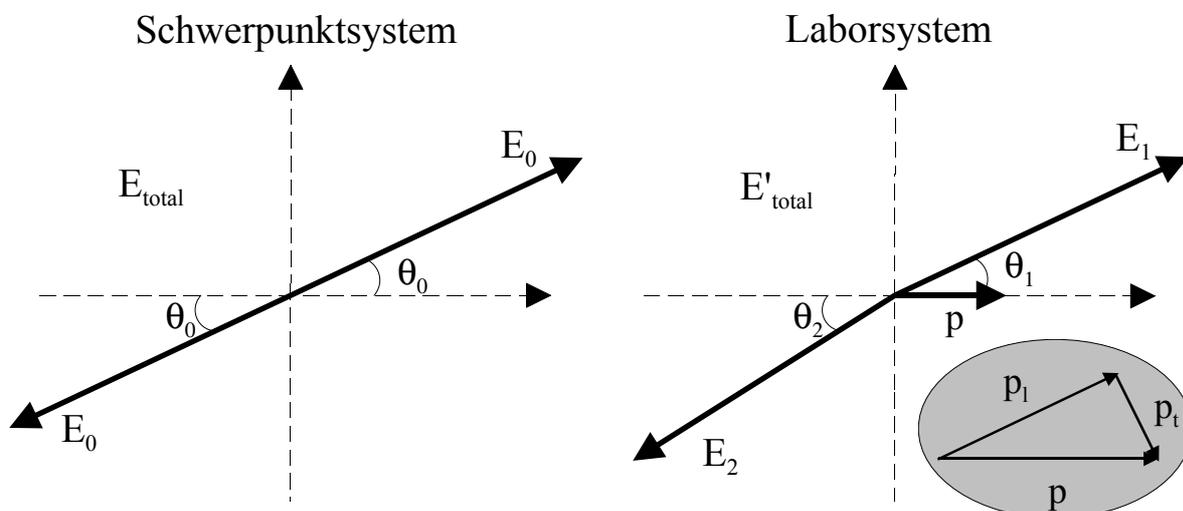


Abbildung 11: Zerstrahlung im Schwerpunktsystem und im Laborsystem. Meßgröße ist die longitudinale Impulskomponente p_l .

Eine Analyse der Doppler-verbreiterten 511 keV Linie ergibt eine Aussage über den Impuls der Elektronen, die mit den Positronen zerstrahlen. Valenzelektronen mit einer niedrigen Bindungsenergie besitzen einen kleinen Impuls, dagegen tragen kernnahe Elektronen mit hoher Bindungsenergie einen deutlich höheren Impuls. Werden durch Veränderungen im Festkörper die Anteile der an der Zerstrahlung beteiligten Elektronenzustände verschoben, ergibt sich eine meßbare Formänderung der Annihilationslinie. Um die Formänderung quantitativ zu analysieren, wird das Flächenverhältnis eines schmalen zentralen Bereiches zur Gesamtfläche der Linie gebildet [Hau79]. Der dabei berechnete Parameter heißt S-Parameter (shape-parameter, siehe Abbildung 12).

$$S \equiv \frac{\int_b^c N(E) dE}{\int_a^d N(E) dE}$$

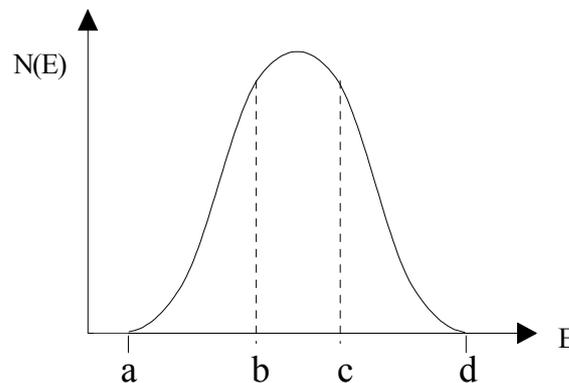


Abbildung 12: Zur Definition des S-Parameters

Der S-Parameter ergibt dabei lediglich relative Aussagen, die durch Vergleich mit Referenzmessungen bewertet werden können. Die direkte Berechnung absoluter Größen wie z.B. der Schubspannung τ in einem verformten Kristall ist nicht möglich.

2.2.4 Wechselwirkung von Positronen mit Kristallfehlern

Positronen können mit den verschiedenen Fehlern des Kristalls wechselwirken. Jeder Potentialtopf kann abhängig von seiner Tiefe und Ausdehnung sowie der Temperatur als Haftstelle dienen. Die verschiedenen Fehlertypen wirken sich insbesondere auf die Positronen-Lebensdauer aus. Durch das Anfitten verschiedener Lebensdauern wird versucht, Fehlstellentypen zu unterscheiden. Die Impulsmessungen mit Dopplereffekt oder Winkelkorrelation ergeben keine Differenzierung der Gitterfehler.

Besondere Bedeutung für den Positroneneinfang haben Leerstellen. Separate Leerstellen stel-

len mit einer Potentialtiefe von 1,6 eV die tiefsten Potentialtöpfe dar. An Versetzungen oder Stapelfehler elastisch gebundene Leerstellen sind mit 0,8 eV bzw. 1,2 eV etwas flachere Haftstellen. Positronen mit thermischen Energien können einmal eingefangen aus einem solchen Potential nicht mehr entkommen und verbleiben dort bis zu ihrer Zerstrahlung.

Wenn die Leerstellen im Kristall beweglich werden, können sie an Versetzungen annihilieren oder elastisch gebunden werden. Dadurch wird die Anzahl der zur Verfügung stehenden Haftstellen kleiner. Einen ähnlichen Effekt hat in den Kristall diffundierender Wasserstoff. Die Haftstellen werden durch den Einfang von Protonen flacher.

Die Wechselwirkung von Positronen mit Versetzungen ist noch nicht genau aufgeklärt.

2.3 Wechselwirkung von Wasserstoff mit Kristallfehlern

Um die vorliegenden Untersuchungen durchführen zu können, mußten verformte Proben weiter bearbeitet werden. Um den Einfluß der mechanischen Präparationsschritte auf die Meßwerte zu minimieren, wurde die Proben unter anderem abgeätzt. Dabei kann Wasserstoff in das Kristallgitter gelangen. Aus diesem Grund muß der Einfluß von eingelagertem Wasserstoff auf die Meßwerte beachtet werden.

Die Diffusion von Wasserstoff in Kupfer ist ein thermisch aktivierter Prozeß [Kat71]. Ab ca. 140 K können sich einzelne Atome durch das Zwischengitter bewegen [Wam76]. Dabei besetzen die H-Atome oktaedrische Zwischengitterplätze. Dieser Zustand wird verändert, wenn zum Beispiel durch plastische Verformung eine große Anzahl von Einfachleerstellen im Gitter entsteht.

Einfachleerstellen im Gitter bilden ein attraktives Potential kurzer Reichweite für den Wasserstoff [Fri72, Pop74]. Dieser Effekt ist besonders stark in Metallen, die auch einen starken Positroneneinfang an Leerstellen aufweisen. Der Einfang beginnt, sobald die Wasserstoffatome im Gitter beweglich werden, im Kupfer also ab 140 K. Anlaßexperimente zeigen, daß die Wasserstoffatome erst ab Temperaturen über 450 K aus den Leerstellen entkommen können. Dies erlaubt die Abschätzung, daß die Bindungsenergie für die Leerstellen-Wasserstoff-Bindung $> 0,4$ eV ist.

Sind Leerstellen im Kristall mit Wasserstoff besetzt, wird das attraktive Potential für weitere positive Ladungsträger verringert. Solche Leerstellen können also auch nur mit deutlich kleinerer Wahrscheinlichkeit als Haftstellen für Positronen dienen [Len78].

3 Messverfahren

3.1 Der langsame Positronenstrahl

3.1.1 Aufbau

Die Apparatur besteht aus einer Na-22 Quelle auf einem Kühlfinger und einer Strahlführung und -beschleunigung. Die Quelle kann durch den Helium-Verdampfungskryostaten auf eine Betriebstemperatur von 42 K gekühlt werden. Läßt man bei dieser Temperatur Kryptongas in die Anlage strömen, friert es als fester Edelgasfilm auf der Quelle fest. Diese Schicht moderiert einen Teil der austretenden Positronen. Die Quelle liegt dabei auf einer Hochspannung V_0 , die von 150 V bis 8 kV eingestellt werden kann. Zur Isolation der Quelle vom Kühlfinger wird eine Saphirscheibe verwendet. Neben der hohen Durchschlag-Festigkeit ist besonders die gute Wärmeleitung im Bereich der Betriebstemperatur von Bedeutung.

Die moderierten Positronen werden anschließend durch ein Zwischenpotential von $V_0 - 80$ V abgesaugt. Sie gelangen dann durch einen S-förmig gebogene Solenoiden, der die nicht-moderierten Positronen abtrennt. Neben der Energieselektion ermöglicht diese Konstruktion die Abschirmung der Detektoren von der direkten γ -Strahlung aus der Quelle.

Die Positronen verlassen dann das auf Hochspannung liegende Strahlrohr und werden durch eine Kupfer-Lochblende, die auf Erdpotential liegt, beschleunigt. Der Strahl wird dabei durch eine Kreuzspule und einen Weicheisenstab auf die Probe fokussiert. Um höhere Beschleunigungsenergien zu verwirklichen, wurde ein Teflon isolierter Probenträger mit Hochspannungsdurchführung gebaut. Dadurch werden die Positronen von der Kupferblende mit bis zu 10kV negativer Hochspannung zur Probe weiter beschleunigt. Die Zerstrahlungsquanten werden durch zwei auf beiden Seiten der Probe angebrachte Detektoren (Germanium und BGO in Koinzidenz) gemessen.

Für eine detaillierte Beschreibung der Anlage und der verwendeten Materialien sei auf frühere Arbeiten verwiesen [Gre94, Män96].

Der hier verwendete Edelgas-Moderator hat eine wesentlich höhere Effizienz als die oft verwendeten Wolfram-Moderatoren. Man muß dafür allerdings den Nachteil einer deutlich geringeren Standzeit in Kauf nehmen. Verantwortlich für den Verlust der Effizienz ist das

Restgas im Vakuum, das ebenfalls auf der Quelle gefriert⁸. Bei den durchgeführten Messungen lag die Halbwertszeit für moderierte Positronen zwischen 20 und 60 Minuten. Spätestens nach einer Stunde Messzeit muß daher der Moderator erneuert werden. Vor allem dadurch erforderte die Anlage im Ausgangszustand ständige Aufmerksamkeit des Bedieners. Nach einer Meßzeit von 20 bis 60 Minuten mußte mit einer immer gleichen Reihe von Arbeitsschritten die Anlage für eine neue Messung präpariert werden. Daher bot es sich an, diesen Ablauf zu automatisieren und die Steuerung einer ganzen Messreihe dem Computer zu übergeben.

⁸ Die Quelle wirkt als Kryopumpe, während des Einkühlens der Apparatur sinkt der Restdruck fast auf die Hälfte ab.

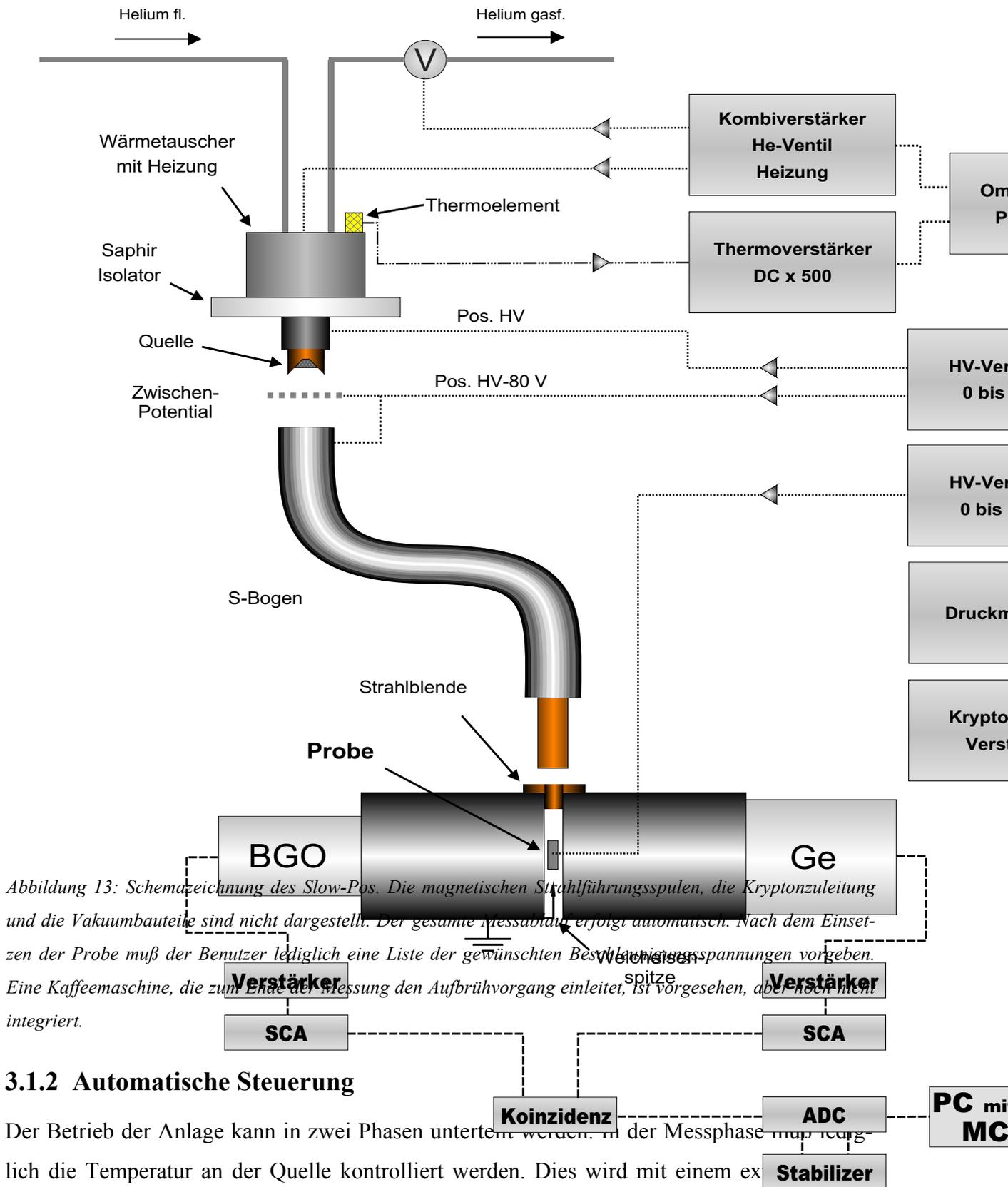


Abbildung 13: Schemazeichnung des Slow-Pos. Die magnetischen Strahlführungsspulen, die Kryptonleitung und die Vakuumbauteile sind nicht dargestellt. Der gesamte Messablauf erfolgt automatisch. Nach dem Einsetzen der Probe muß der Benutzer lediglich eine Liste der gewünschten Betriebsspannungen vorgeben. Eine Kaffeemaschine, die zum Ende der Messung den Aufbrühvorgang einleitet, ist vorgesehen, aber noch nicht integriert.

3.1.2 Automatische Steuerung

Der Betrieb der Anlage kann in zwei Phasen unterteilt werden. In der Messphase muß regelmäßig die Temperatur an der Quelle kontrolliert werden. Dies wird mit einem externen Regler verwirklicht. Beim Moderatorwechsel ist die Steuerung wesentlich komplexer. Hier

übernimmt der Messrechner mit einer AD-DA-Karte und einer für diesen Zweck entwickelten Software die Kontrolle.

3.1.2.1 Temperatursteuerung

Die Temperatur wird durch einen PID-Regler gesteuert, der mit der seriellen Schnittstelle des PC verbunden ist. Die thermische Trägheit des Systems ist so hoch, daß dabei eine Regelungsfrequenz von 2 Hz ausreicht.

Der vom Rechner vorgegebene Sollwert wird von dem Regler mit der Thermospannung eines AuFe-Thermoelements verglichen. Das Thermoelement ist elektrisch isoliert am Wärmetauscher angebracht.

Das Ausgangssignal des Reglers wird durch einen Verstärker auf zwei gegenläufige Leitungen aufgeteilt. Über eine Leistungsstufe kann eine Kette von Heizwiderständen an der Quelle angesteuert werden. Eine zweite Leistungsstufe steuert ein elektromagnetisches Ventil in der Helium-Leitung. Diese gegenläufige Regelung hat zwei wichtige Vorteile: Zum einen kann ein größerer Maximaldurchfluß eingestellt werden, um die Abkühlzeiten zu verkürzen. Andererseits wird durch diese Regelung der Verbrauch an flüssigem Helium gegenüber dem Ausgangszustand um $\frac{1}{4}$ vermindert.

Der PID-Regler kann unabhängig vom Computer arbeiten, so daß der Rechner nach dem Wechsel des Moderators als Meßrechner verwendbar ist.

3.1.3 Moderatorwechsel - Programm „SlowPos“

Während des Moderatorwechsels übernimmt ein speziell für diesen Zweck entwickeltes Programm die Kontrolle über den Rechner. Für diese Aufgabe ist der Computer mit einer Mehrkanal 12Bit AD-DA Wandler-Karte ausgestattet worden.

Nach der Aufnahme eines Messpunktes werden zunächst die Beschleunigungsspannungen ausgeschaltet. Dann wird die Quelle aufgewärmt, bis sämtliches Krypton abgedampft ist. Beim Erwärmen wird als erstes die Luftkontamination freigesetzt, unmittelbar danach folgt in zwei Druckwellen⁹ der Kryptonmoderator. Dabei wird kurzzeitig ein Druck von 10⁻³ mbar erreicht. Beim weiteren Erwärmen sinkt der Druck wieder ab. Sobald 10⁻⁵ mbar unterschritten sind, wird das System wieder abgekühlt.

⁹ Der Grund für das Auftreten zweier Kr-Druckwellen ist die elektrische Isolation der Quelle. Zwar ist die thermische Leitfähigkeit des Saphirisolators sehr gut, trotzdem gibt es zwischen dem Wärmetauscher und der Quelle bei Temperaturänderungen einen Gradienten. Vermutlich erwärmt sich der Wärmetauscher schneller, hier sublimiert das Krypton zuerst. Dann folgt der eigentliche Moderator von der Quelle.

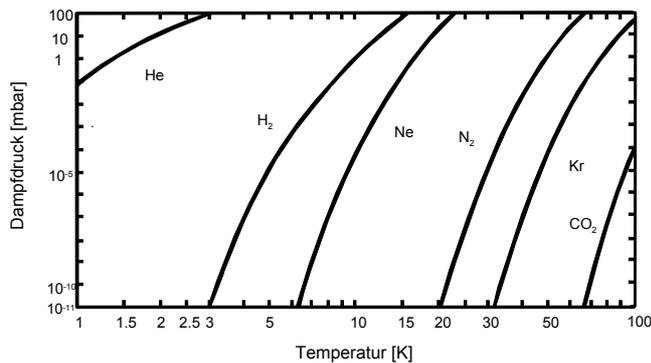


Abbildung 14: Dampfdruck-Kurve für niedrige Temperaturen [Han86].

bei ist die Kühlleistung des Systems ausreichend, um den Zufluß des warmen Kryptions zu kompensieren. Schon während sich das Ventil schließt, wird ein Druck von unter 10^{-5} mbar erreicht. Nun wird die gewünschte Beschleunigungsspannung eingeschaltet. Die Netzteile für positive und negative HV wurden so modifiziert, daß sie direkt durch Steuerspannungen vom Rechner kontrolliert werden.

Das Steuerprogramm wird nun beendet, und das MCA-Programm beginnt mit der Messung. Die Anfangszählrate kann nahezu verdoppelt werden, wenn nach dem Auffrieren der Moderator für kurze Zeit erwärmt wird. Eine Beobachtung mit dem Massenspektrometer zeigt, daß zunächst Sauerstoff und Stickstoff freigesetzt werden. Dadurch wird der Moderator gereinigt, die Effizienz steigt. Als günstig hat sich eine Heizzeit von 40 - 60 Sekunden erwiesen.

3.2 Bulkmessungen

Herkömmliche Bulkmessungen erfordern, daß die Quelle ganz von der Probe umschlossen wird, um den Untergrund zu minimieren. Man möchte hierbei erreichen, daß möglichst alle emittierten Positronen in der Probe annihilieren. Mit dieser Forderung sind allerdings Einschränkungen der Probenform verbunden. Es müssen entweder hohle Proben oder eine Sandwichkonstruktion verwendet werden. Für die Messung ist dann nur ein stabilisierter Germanium-Detektor und ein Rechner erforderlich.

Alternativ ist die Verwendung von Lebensdauermessungen möglich. Dabei wird Fast-Slow-Koinzidenz ausgenutzt, um nur Ereignisse zu zählen, die in der Probe stattgefunden haben. Verwendet man ein solches Verfahren, sind verschiedene Probenformen möglich. Mit einem geeigneten Aufbau lassen sich auch orts aufgelöste Messungen verwirklichen. Allerdings ist der Aufwand an Auswerteelektronik deutlich größer als beim ersten Verfahren.

Nach dem Erreichen der Betriebstemperatur von 42 K öffnet ein Motor das Nadelventil in der Kryptonzuleitung. Die Position des Ventils wird mit einem Präzisionspotentiometer überwacht. Nach schnellem Öffnen bis zu einer vorher bestimmten Position schaltet der Rechner auf Kontrolle des Drucks um. Der Moderator wird dann für 5 Minuten bei einem Druck von $9 \cdot 10^{-4}$ mbar aufgefroren. Da-

Um die Vorteile beider Verfahren zu kombinieren, wurde ein Aufbau eingesetzt, bei dem fast beliebige Probenformen mit einem Ge-Detektor untersucht werden können. In einem Vakuumtopf mit 20 cm Radius und 25 cm Höhe wird die Probe in der Mitte des Bodens plaziert. Darüber befindet sich die an einem Hubsystem befestigte Na-22 Quelle. Die in den unteren Halbraum emittierten Positronen gelangen nahezu vollständig in die Probe. Für die folgenden Annihilationsquanten deckt der Germaniumdetektor fast die Hälfte des Raumwinkels ab. In den oberen Halbraum emittierte Positronen zerstrahlen in der Wand oder in dem Deckel des Topf. Der Raumwinkelanteil des Detektors liegt für die hier entstehenden Gammaquanten bei unter 2%. Der durch diese Quanten entstehende Fehler kann vernachlässigt werden.

Der fahrbare Probentisch ist durch Magnete an einen unter dem Boden montierten XY-Tisch gekoppelt. Dadurch sind orts aufgelöste Messungen möglich. Das Hubsystem für die Quelle gewährleistet dabei die genaue Position der Quelle über der Mitte des Detektors, um keine Linienformänderungen durch einen verschobenen Absorptionsschwerpunkt im Detektor zu erzeugen.

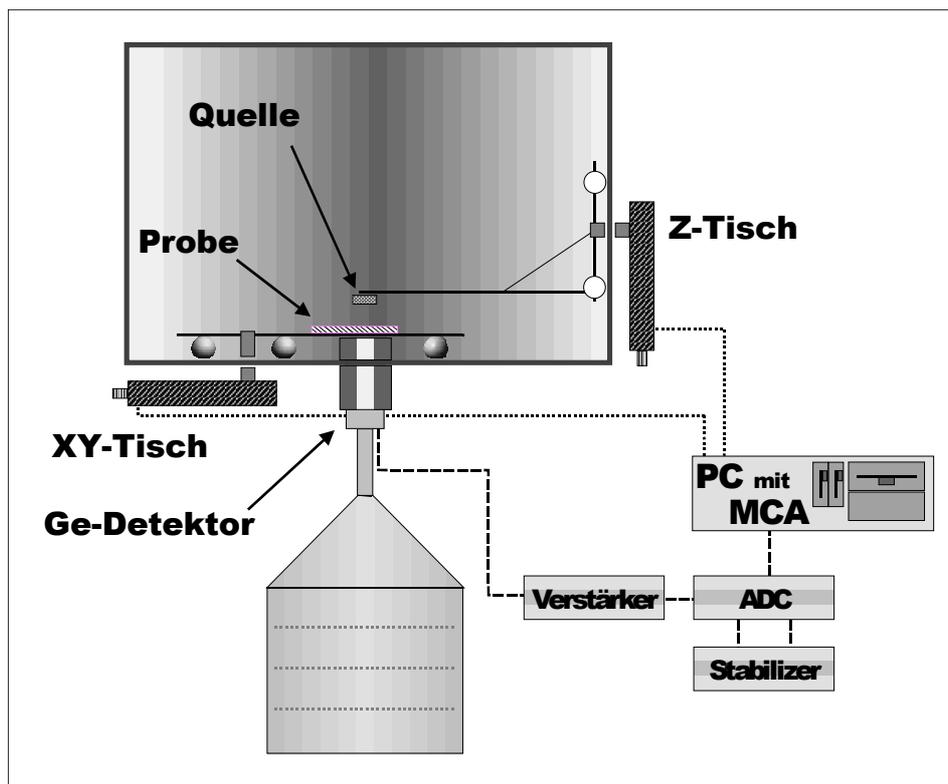


Abbildung 15: Positronentopf für untergrundreduzierte Bulkmessungen. Der XY-Tisch erlaubt das Positionieren der Probe. Während der Probenverschiebung wird die Quelle durch den Z-Tisch angehoben. Die Kraftübertragung erfolgt für alle Bewegungen durch Magnete. Vakuumelemente sind nicht dargestellt.

3.3 Probenpräparation

Mit den folgenden Messungen wurden verschiedene Proben untersucht.

Als **polykristalline Kupferproben** wurden Streifen aus OFC¹⁰ Kupfer hergestellt. Die Proben hatten einen Querschnitt von $(5 \times 2) \text{ mm}^2$ und waren zwischen 40 und 50 mm lang. Diese Dimensionen wurden durch die maximale Probengröße im SlowPos festgelegt. Die Proben wurden zunächst auf der Fräse in die gewünschte Form gebracht und anschließend mit SiC bis zur Körnung 4000 poliert. Danach wurden die Kupferstreifen bei 900° im Vakuum für zirka 8 Stunden ausgeheizt. Eine langsame Abkühlung über mehrere Stunden verhinderte das Einfrieren von thermischen Leerstellen. Durch die Rekristallisation bildeten sich gut sichtbare Körner in der Größenordnung 1 mm. Der Einfluß der Korngrenzen auf den Positroneneinfang konnte daher für die Messungen mit dem SlowPos und die Bulkmessungen vernachlässigt werden. Dies gilt auch für die Messungen in der Mikrosonde, da ein paralleler Strahlengang gewählt wurde. Der Strahl hatte dadurch einen Durchmesser von xxx μm .

Für die **Messungen an der dünnen Schicht** wurde ein polykristalliner Kupferstreifen vor dem Ausheizen chemisch und elektrochemisch poliert. Als chemisches Poliermittel wurde eine Mischung von HNO_3 , H_3PO_4 und CH_3COOH zu gleichen Volumenteilern genutzt. Bei einer Temperatur von über 70°C und unter ständigem Rühren konnte eine gleichmäßige Materialabtragung¹¹ ohne die Bildung von Ätzgruben erzielt werden.

Um eine möglichst glatte Oberfläche zu erzielen, wurde die Probe im Anschluß elektrochemisch poliert. Als Elektrolyt wurde 50% H_3PO_4 benutzt, die Anode bildete ein Kupferblech, die Polierspannung lag bei 2 V. Die Probe wurde eine Minute poliert. Längere Polierzeiten erwiesen sich als ungeeignet, da sich dann eine Wellenstruktur auf der Oberfläche bildete.

Die polierte Seite der Probe wurde dann nacheinander mit einer XXX nm Wolfram-Schicht und einer 140 nm Kupferschicht bedampft. Die Kupferschicht wurde mit optischer Mikroskopie kontrolliert.

Um den **Tiefenverlauf der Versetzungsdichte** zu untersuchen, wurden zunächst ebenfalls polykristalline Kupferstreifen untersucht. Sie wurden nach dem oben beschriebenen Verfahren hergestellt, allerdings wurden sie nur mechanisch poliert.

Um die Proben in der Mikrosonde untersuchen zu können, mußte eine zirka 3 mm dicke Scheibe aus den Proben geschnitten werden. Die Proben wurden mit einer Diamantdrahtsäge geschnitten. Anschließend wurde die Probe in dem chemischen Polierbad behandelt, um die

¹⁰ „Oxygen free copper,“

¹¹ Der Abtrag lag je nach Temperatur in der Größenordnung von 10 bis 20 μm pro Minute

. MESSVERFAHREN

durch das Sägen entstandenen Schädigungen zu entfernen. Dabei wurden ungefähr $180\ \mu\text{m}$ chemisch abgetragen. Um die durch dieses Verfahren entstehende Veränderung der Meßergebnisse einschätzen zu können, wurden Referenzproben für die verschiedenen Präparations-schritte untersucht. Die Ergebnisse dieser Untersuchung werden im folgenden Abschnitt beschrieben.

Der Tiefenverlauf der Versetzungsdichte wurde außerdem an einem Einkristall aus OFC Kupfer untersucht. Der zylindrische Kristall hatte einen Durchmesser von ca. 8 mm. Für die Verformung wurden mit der Diamantdrahtsäge ca. 9 mm lange Stücke abgetrennt. Anschließend wurden die Proben wie oben beschrieben geätzt.

4 Messungen

4.1 Der Einfluß des chemischen Polierens

Wie in Abschnitt 3.3 beschrieben, mußten Proben vor der Messung geätzt werden, ohne daß durch anschließendes Ausglühen eindiffundierter Wasserstoff entfernt werden konnte. Daher mußte der Einfluß der Leerstellen-Abschirmung durch die Protonen auf die Linienform untersucht werden. Dazu wurden verformte und unverformte Kupferproben teilweise geätzt und mit der Mikrosonde untersucht.

Um vergleichbare Ergebnisse zu erhalten, wurden die beiden folgenden Messungen mit zwei Proben durchgeführt, die aus dem gleichen Kupferstück hergestellt wurden. Beide Proben wurden zusammen im Vakuum ausgeglüht. So sollte insbesondere verhindert werden, daß durch unterschiedliches Abkühlen verschiedene Leerstellen-Konzentrationen eingefroren wurden.

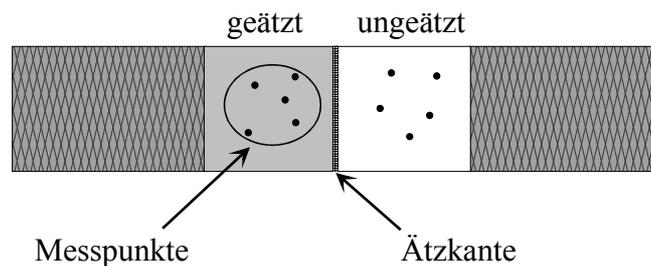


Abbildung 16: Verformte Kupferprobe. Die Außenbereiche sind durch das Einspannen in die Verformungsapparatur nicht nutzbar. Die Messpunkte wurden zufällig verteilt und mehrfach gemessen, um systematische Fehler zu verringern.

4.1.1 Unverformtes Kupfer

Ein gut ausgeheiltes polykristallines Kupferstäbchen wurde mit säurefestem Klebeband so abgedeckt, daß in der Mitte ein etwa 1,5 cm langer Bereich ungeschützt blieb. Anschließend wurde die Probe 2 Minuten lang bei 75°C chemisch poliert. Dabei entstanden zwei Ätzkanten, von denen eine gut definiert war. Die zweite Kante war unscharf, da sich durch Unterätzen die Abdeckfolie gelöst hatte. Die Probe wurde dann in der Mikrosonde quer zu den Ätzkanten ausgemessen. Die Meßpunkte lagen in Richtung der langen Probenachse äquidistant, der Ab-

stand zur Achse wurde zufällig verteilt. Um den Einfluß von Verunreinigungen oder Korngrenzen zu minimieren, wurde mit einem leicht defokussierten Strahl gemessen.¹²

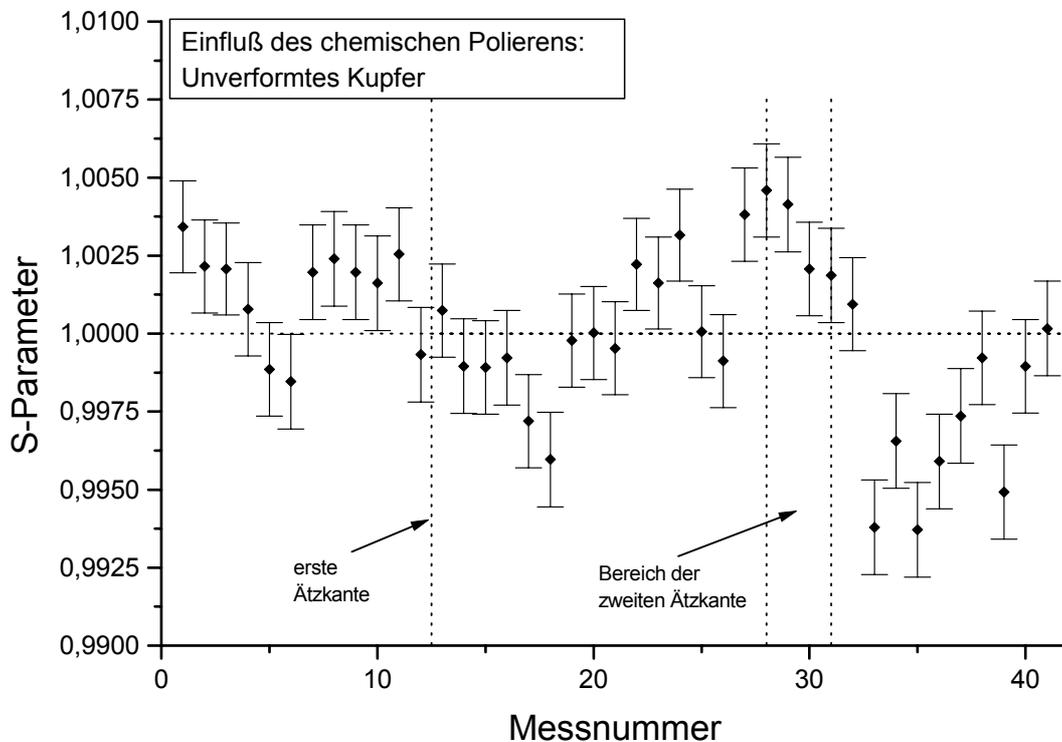


Abbildung 17: Der S-Parameter wird relativ zum Mittelwert der Messung angegeben. Die Abfolge der Zonen ist ungeätzt - geätzt - ungeätzt. Die zweite Ätzkante ist durch Unterätzung nicht scharf definiert. Die Fehlerbalken erscheinen im Vergleich zu der folgenden Graphik sehr groß, dies wird allerdings durch den Maßstab der Y-Achse verursacht. Bis auf einige Punkte rechts der zweiten Ätzkante sind Schwankungen der 511 keV Linie und der ⁷Be Monitor-Linie nicht korreliert.

Der S-Parameter variiert maximal ein halbes Prozent um den Mittelwert. Die im Bereich rechts der zweiten Ätzkante liegenden niedrigen Werte korrespondieren mit einer plötzlichen Verringerung des S-Parameters der 478 keV ⁷Be-Linie um vier Prozent. Dies ist eventuell auf thermische oder Elektronikeffekte zurückzuführen. Dieser Effekt trat in den folgenden Messungen nicht mehr auf. In Anbetracht der Größe des Meßfehlers ist kein signifikanter Einfluß der Ätzung auf die Meßwerte zu erkennen. Die vorhandenen Leerstellen haben offensichtlich

¹² Korngrenzen haben vermutlich keine Auswirkungen auf die Messwerte. Bei mehreren Messungen mit der Positronenmikroskopie ergaben sie keinen meßbaren Effekt [Haa99].

einen so kleinen Einfluß auf die Form der Annihilationslinie, daß ihre Abschirmung durch eingefangene Protonen unter der Empfindlichkeitsschwelle bleibt.

4.1.2 Verformtes Kupfer

Eine zweite Kupferprobe wurde nun bis zu einer Schubspannung von $\tau \approx 30$ MPa verformt. Durch das Einspannen in die Piezo-Verformungsmaschine verblieb ein nutzbarer Bereich von 15 mm. Die Hälfte dieser Oberfläche wurde wie bei der vorhergehenden Messung abgedeckt (s. Abbildung 16). Anschließend wurde die Probe zwei Minuten lang bei 73°C chemisch poliert. Die Probe wurde dann in der Mikrosonde vermessen. Dazu wurden auf jeder Zone fünf Messkoordinaten zufällig gewählt. Für jede Koordinate wurden vier Messpunkte aufgenommen, über die anschließend gemittelt wurde. Durch dieses Verfahren soll der Einfluß der Gerätedrift minimiert werden.

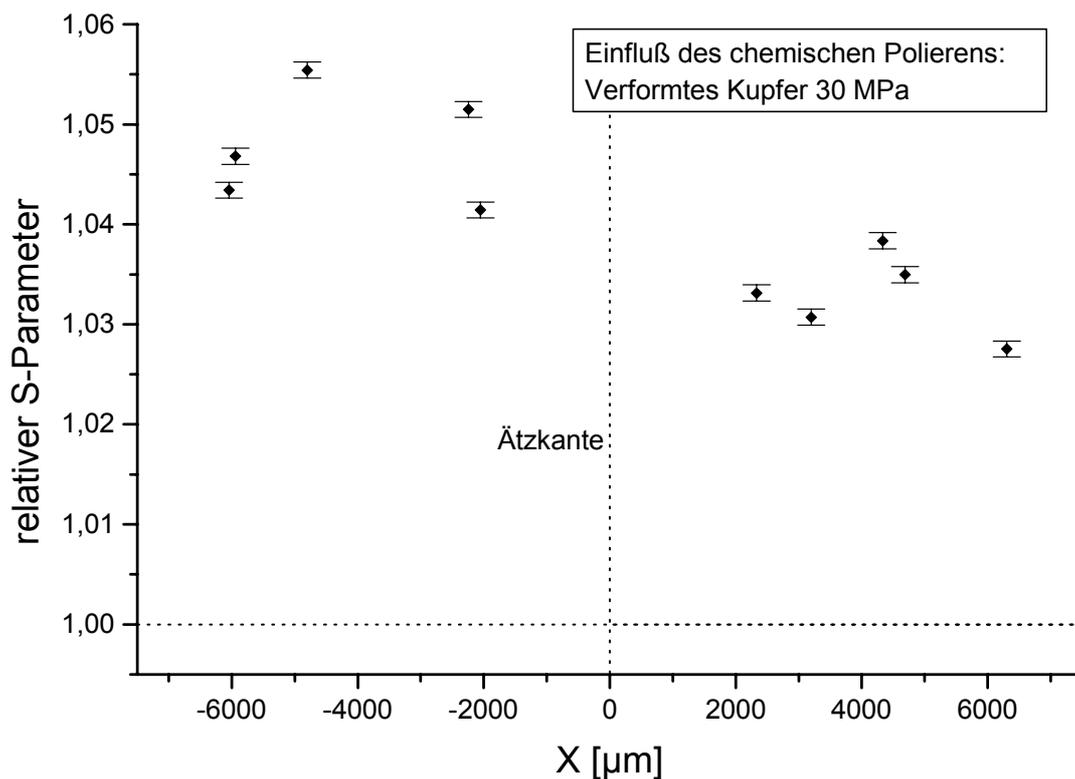


Abbildung 18: Der S-Parameter wird relativ zum Mittelwert der unverformten Probe angegeben (s. Abbildung 17). Die Abfolge der Zonen ist ungeätzt - geätzt. Dargestellt ist die Projektion der Messpunkte auf die Längsachse der Probe. Der mittlere Hub des S-Parameters beträgt im ungeätzten Bereich 4,8% und im geätzten Bereich 3,3% gegenüber der unverformten Probe. Dabei trat keine über statistische Schwankungen hinausgehende thermische Drift der ^7Be Monitor-Linie auf.

Der mittlere Hub des S-Parameter von 4,8 % steht im Einklang mit früheren Messungen [Wid99]. Die geätzte Seite der Probe zeigt nun eine deutliche Änderung des S-Parameters. Der Hub ist um ein Drittel verkleinert. Durch die Abschirmung der Leerstellen mit eingefangenen Protonen wird die Einfangrate der Positronen verkleinert. Dies führt zu scheinbar kleineren Versetzungsdichten.

4.1.3 Diskussion

Die Temperatur des Polierbades von ca. 70°C reicht nicht aus, um in der kurzen Polierzeit die Versetzungsstruktur in der Probe zu verändern. Änderungen werden durch zwei konkurrierende Mechanismen verursacht. Zum einen dringt Wasserstoff in die Oberfläche ein, andererseits wird diese Oberfläche im Ätzbad abgetragen. Entscheidend ist das Verhältnis der Diffusionsgeschwindigkeit zur Abtragegeschwindigkeit. Außerdem muß die Wasserstofflöslichkeit berücksichtigt werden, die sich für ausgeheiltes und verformtes Kupfer deutlich unterscheidet XXX.

Ein in den folgenden Messungen zu berücksichtigender Hub des S-Parameter durch chemisches Polieren ist nur bei einer Leerstellenkonzentration oberhalb der Empfindlichkeitsschwelle gemessen worden. Hierbei wird der S-Parameter um ca. ein Drittel kleiner gegenüber Wasserstoff-freien Oberflächen. Dieser Effekt wird anscheinend vollständig durch die Abschirmung der Leerstelle durch die Protonen verursacht. Da S-Parameter und Schubspannung τ in guter Näherung linear zusammenhängen [Wid99], müssen die Ergebnisse der folgenden Messung entsprechend interpretiert werden.

Dagegen zeigt sich keine Auswirkung der flachen Haftstellen, die durch Wasserstoff auf Zwischengitterplätzen gebildet werden. Dies sollte auch bei Raumtemperatur in ausgeheiltem Kupfer meßbar sein [Len78]. Der Wasserstoffeintrag ist durch die kurzen Ätzwgänge und die geringe Löslichkeit im unverformten Gitter offenbar zu klein, um den Effekt sichtbar zu machen. Da die Messung nur mit 30 keV Positronen aus der Mikrosonde durchgeführt wurde kann der Effekt auch mit den unterschiedlichen Eindringtiefen erklärt werden. Es ist möglich, daß der Wasserstoff nur in einer sehr dünnen, oberflächennahen Schicht eingelagert wurde, die Positronen jedoch größtenteils tiefer zerstrahlten.

Da die Messung nur einen bei der gewählten Probenpräparation entstehenden systematischen Fehler untersuchen sollte, wurde auf weitere Messungen verzichtet.

4.2 Tiefenverlauf der Versetzungsdichte

4.2.1 Polykristallines Kupfer

Um die Tiefenabhängigkeit der Versetzungsdichte zu untersuchen, wurde eine Probe bis 30 MPa verformt. Unter Berücksichtigung der Empfindlichkeit der Positronenzerstrahlung [Wid99] und der Ergebnisse der Messungen von Fourie [Fou67] sollte bei dieser Schubspannung der Kern der Probe weit über die Ansprechschwelle verformt worden sein.

Damit sollte es möglich sein, kleinere Versetzungsdichten nahe der Oberfläche nachzuweisen. Nach der Verformung wurde eine 2 mm dünne Scheibe aus der Mitte der Probe herausgesägt. Um die durch das Sägen entstandenen Schädigungen zu verkleinern, wurden im Polierbad ca. 150 μm entfernt. Die Sägefläche wurde dann mit der Mikrosonde vermessen. Die Messlinie bestand aus 45 Punkten mit einer Schrittweite von 15 μm (s. Abbildung 19).

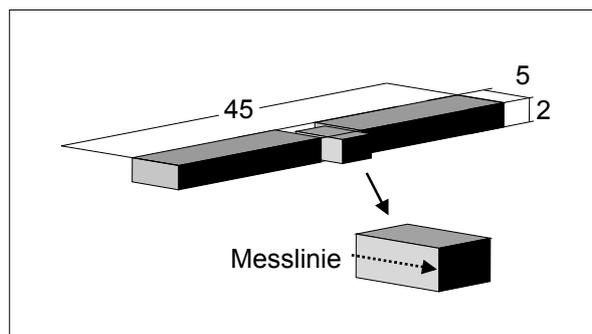


Abbildung 19: Polykristalline Kupferprobe zur Untersuchung des Tiefenverlaufs der Versetzungsdichte.

Eine zweite Probe wurde bis auf die Verformung identisch präpariert. Auf der Sägefläche dieser Probe wurden drei Messpunkte aufgenommen. Beide Scheiben wurden auf einen Proben-träger aufgebracht und zusammen gemessen.

Als Referenz dient die vorherige Messung an einer der beiden Kupferproben nach dem Ausglühen. Dabei wurden 24 zufällig verteilte Punkte vermessen.

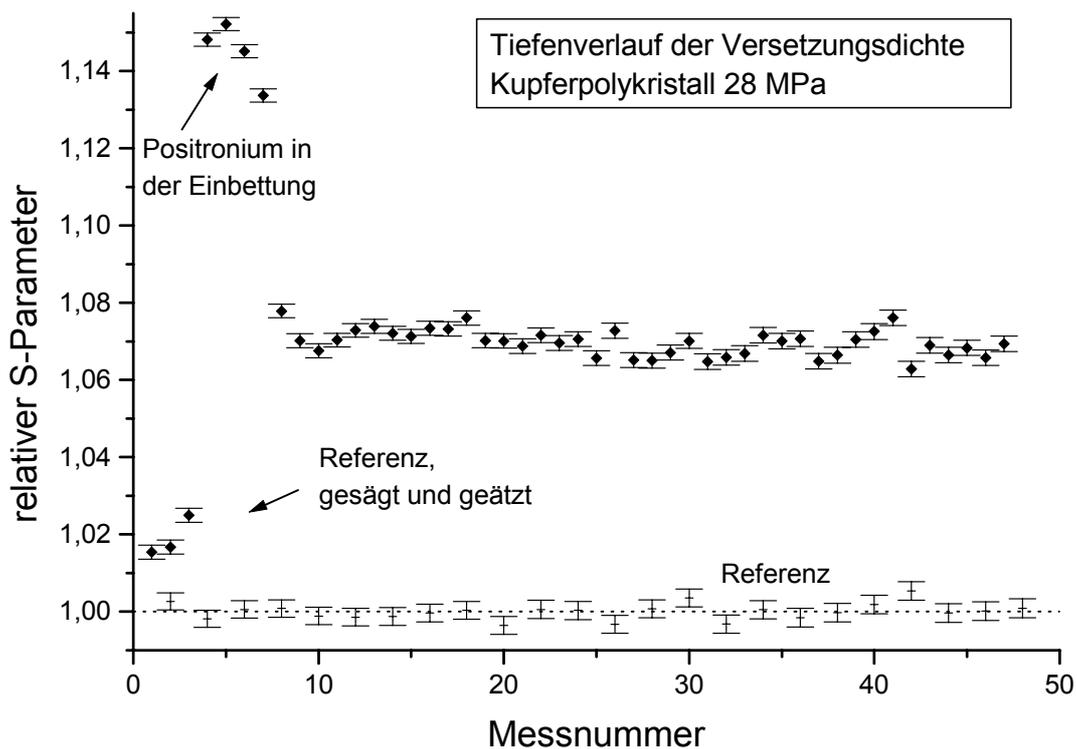


Abbildung 20: In einem verformten Kupfer-Polykristall läßt sich keine tiefenabhängige Veränderung des S-Parameters nachweisen. Die Referenzprobe zeigt einen leichten Anstieg des S-Parameters durch die Präparation, der jedoch gegen über dem durch die Verformung erzeugten Hub vernachlässigt werden kann. Messpunkte auf der Einbettmasse zeigen einen großen Positronium-Anteil.

Die Messung zeigt wie erwartet keine tiefenabhängigen Effekte. Die Probendimension und die Korngrößen sind deutlich kleiner als zwei mittlere freie Weglängen der Versetzungen. So kann sich im Kern der Probe kein Gebiet mit deutlich erhöhter Versetzungsdichte bilden. Der Anstieg des S-Parameters um ca. 7% ist etwas größer als erwartet. Dafür gibt es verschiedene mögliche Ursachen. Am wahrscheinlichsten ist ein Fehler bei der Berechnung der Schubspannung τ . Zum Beispiel wurde die Verringerung des Probenquerschnitts durch die Dehnung vernachlässigt. XXX

Beachtet werden sollte das Verhalten der Referenzprobe. Die Kombination von Sägen und Ätzen erzeugt einen leichten Anstieg des S-Parameters. Dies ist besonders bemerkenswert, da das Ätzen alleine den S-Parameter bei ausreichender Leerstellenkonzentration senkt. Es muß daher angenommen werden, daß die durch das Sägen entstandene Schädigung nicht vollständig entfernt werden konnte.

4.2.2 Einkristallines Kupfer

Mit dem gleichen Messverfahren wie im vorhergehenden Abschnitt wurde ein Kupfer Einkristall untersucht, den das Max-Planck-Institut für Metallphysik, Stuttgart zur Verfügung gestellt hatte. Der zylindrische Kristall wurde mit der Diamantsäge in zwei 9 mm lange Stücke geteilt. Beide Proben wurden vor und nach der Verformung mit einer Schieblehre auf 0,01 mm genau vermessen. Die Proben wurden mit der Piezo-Verformungsapparatur druckverformt. Durch Einfachgleitung verschob sich der kreisförmige Querschnitt zum Oval. Durch die Stauchung der Probe wurde dabei die Gesamtfläche größer. Als Messlinien wurden die große und die kleine Achse des Ovals festgelegt. Nach der Verformung wurde aus der Mitte der Probe eine etwa zwei mm dicke Scheibe gesägt. Die durch das Sägen entstandenen Schädigungen wurden durch chemisches Polieren entfernt.

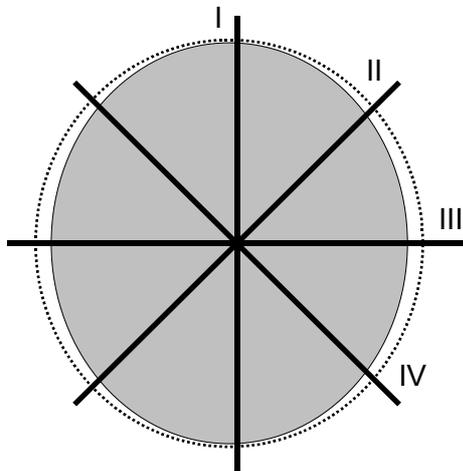


Abbildung 21: Nach der Verformung hatten die Proben einen ovalen Querschnitt. Sie wurden vor dem zweiten Sägen mit der Schieblehre vermessen.

Querschnitte	Probe 1	Probe 2
σ	16 Mpa	30 MPa
I	7,76 mm	
II	7,81 mm	
III	7,84 mm	
IV	7,77 mm	

Tabelle 1: Die Proben wurden deutlich verformt. Der ursprüngliche Durchmesser betrug 7,73 mm.

Das Protokoll des Druckversuches zeigt sehr schön die Auswirkungen plastischer Verformung. Im ersten Schritt geht die Probe ohne sichtbaren elastischen Bereich sofort in den plastischen Teil der Verformungskurve. Nachdem die maximale Auslenkung des Piezo-Kristalls von 150 μm erreicht war, mußte die Probe umgespannt werden. Im zweiten Verformungsschritt wird zunächst ein großer elastischer Bereich durchlaufen, der durch die im ersten Schritt entstandenen Kristallfehler erzeugt wird.

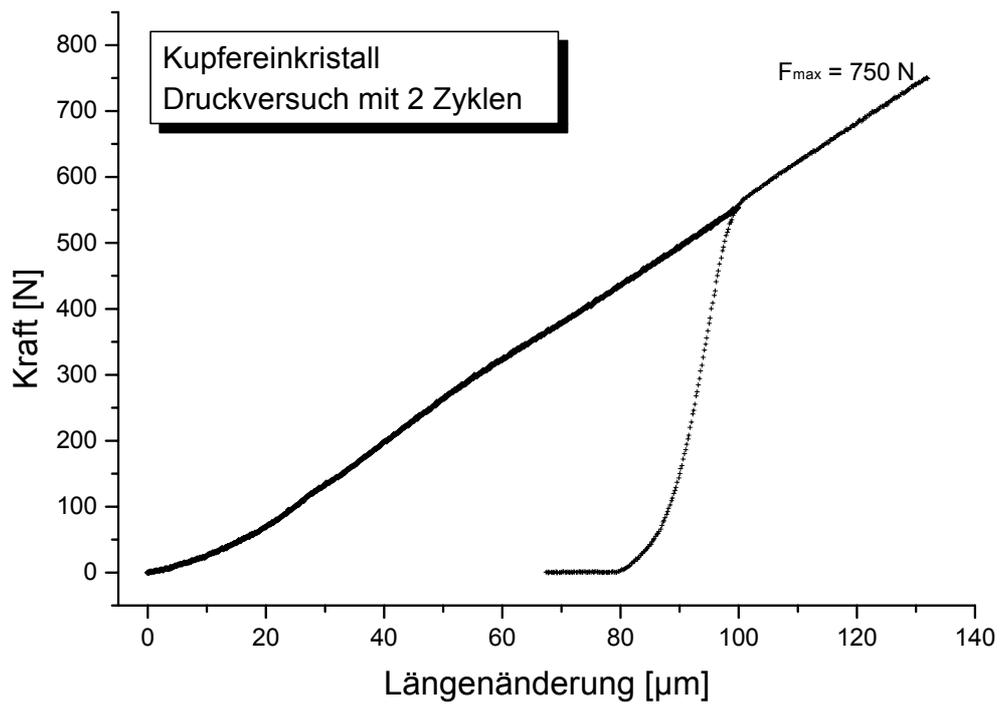


Abbildung 22: Die Verformung des Einkristalls musste in zwei Schritten durchgeführt werden, da die maximale Auslenkung des Piezokristalls erreicht war. Dadurch wird die Vergrößerung des elastischen Bereichs in Folge der plastischen Verformung gut erkennbar.

5 Literaturverzeichnis

- [Fou67] J.T. Fourie, *Phil. Mag.* **17**, (1967), 735-756
- [Got98] G. Gottstein, *Physikalische Grundlagen der Materialkunde*, Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York (1998)
- [Gre94] H. Greif, *Aufbau und Erprobung eines mobilen Positronenstrahls*, Diplomarbeit, Universität Bonn 1994
- [Haa99] M. Haaks, persönliche Mitteilung
- [Häk90] H. Häkkinen, S.Mäkinen und M. Manninen, *Phys. Rev. B*, Vol. 41, No. 18 (1990) 12441-12449
Edge dislocation in fcc metals: Microscopic calculations of core structure and positron states in Al and Cu
- [Han86] B.A. Hands, *Cryogenic Engineering*, Academic Press, London 1986
- [Hau79] P. Hautojärvi und A. Vehanen, in: *Positrons in Solids*, edited by P. Hautojärvi, Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York (1979) 1-23
Introduction to Positron Annihilation
- [Hor94] E. Hornbogen, *Werkstoffe* Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York (1994)
- [Kat71] L.Katz, M. Guinan und R.J. Borg, *Phys. Rev. B*, Vol. 4, No. 2 (1971) 330-341
- [Len78] B. Lengeler, S. Mantl und W. Triftshäuser, *J.Phys. F: Metal Phys.* **8**, 1691 (1978)
- [Liv62] J.D. Livingston, *Acta metall.*, **10**, (1962), 229
- [Män96] U. Männig, *Tiefenaufgelöste Fehlstellenuntersuchung mit langsamen Positronen*, Diplomarbeit Universität Bonn, 1996
- [Pol34] M. Polanyi, *Zeitschrift für Physik*, **89**, (1934) 660
Über eine Art Gitterstörung, die einen Kristall plastisch machen könnte
- [Pus94] M.J. Puska und R.M. Nieminen, *Reviews of Modern Physics* **66**, 841 (1994)
- [Schi92] W. Schilling, in: Bergmann und Schäfer: *Lehrbuch der Experimentalphysik - Festkörper*, Band 6, Walter de Gruyter, Berlin, New York 1992, S. 297
- [Schu88] P.J. Schultz und K. G. Lynn, *Reviews of Modern Physics* **60** (1988) 701-773
Interaction of positron beams with surfaces, thin films and interfaces
- [Sim60] R.O. Simmons und R.W. Balluffi, *Phys. Rev.* **117** 62 (1960)
- [Sim63] R.O. Simmons und R.W. Balluffi, *Phys. Rev.* **129** 1553 (1963)

. LITERATURVERZEICHNIS

- [Val84] S. Valkealahti, R. M. Nieminen: Appl. Physics A 35, 51, 1984
- [Wam76] WR. Wampler, T. Schober und B. Lengeler, Phil. Mag. **34**, No.1 (1976), 129-141
- [Wid97] T. Wider, *In situ Positronenspektroskopie an ermüdetem Kupfer*, Diplomarbeit, Universität Bonn 1997
- [Wid99] T. Wider, *Der Einfluß von Versetzungen auf die Positronenzerstrahlung*, Dissertation, Universität Bonn 1999