

KFK-158

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

Februar 1964

KFK 158

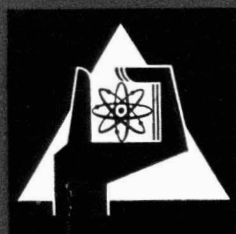
Institut für Angewandte Reaktorphysik

Bestrahlungsstimulierte Einebnung an Kupferoberflächen

Ulrich Dänert

Gesellschaft für Kernforschung m. B. H.
Zentralbücherei

7. Apr 1964



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE

Februar 1964

KFK 158

Institut für Angewandte Reaktorphysik

BESTRAHLUNGSSTIMULIERTE EINEBNUNG AN KUPFEROBERFLÄCHEN

Ulrich Däunert

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H.
Zentralbücherei

7. Apr 1964

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

Diese Arbeit wurde im Auftrage der Kernreaktor Bau- und Betriebs-Gesellschaft Karlsruhe am Laboratorium für technische Physik der Technischen Hochschule in München durchgeführt. Es ist mir ein herzliches Bedürfnis, allen am Zustandekommen dieser Dissertation Beteiligten zu danken, ganz besonders

dem Direktor des Laboratoriums für technische Physik der TH-München, Herrn Prof.Dr.N. R i e h l für seine über den Rahmen wissenschaftlicher Beratung hinausgehende Betreuung

Herrn Privatdozenten Dr.R. S i z m a n n , dem ich aus vielen unermüdlichen Diskussionen die Klärung theoretischer Probleme und wertvolle Anregungen für die Durchführung der Experimente verdanke

dem Geschäftsführer der Gesellschaft für Kernforschung in Karlsruhe, Herrn Dr.R. G r e i f e l d , dessen persönliche Fürsprache diese Arbeit überhaupt erst ermöglicht hat.

Die elektronenmikroskopischen Aufnahmen entstanden im Siemens-Forschungs-Laboratorium München, ermöglicht durch das besondere Entgegenkommen von Herrn Prof.Dr.W. K l e e n , unter der Anweisung des Leiters der Abteilung Elektronenmikroskopie, Herrn Dr.E. F u c h s .

Karlsruhe, den 13. Dezember 1963

Wolfgang Steinert

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H.
Zentralbücherei

Inhaltsverzeichnis

I.	<u>Einleitung</u>	1
II.	<u>Kinetik der Oberflächeneinebnung</u>	
	1. thermisch aktivierte Einebnung	3
	2. bestrahlungsstimulierte Einebnung	7
III.	<u>Experimentelle Durchführung</u>	
	1. Herstellung und Auswahl der Proben	11
	1.1. manuelle Vorbehandlung	11
	1.2. elektrolytische Nachbehandlung	12
	1.3. Auswahl, Kontrollaufnahmen	13
	2. Bestrahlungsquellen	16
	2.1. kurze Biografie des Po^{210}	16
	2.2. Strahlenschutzmaßnahmen	17
	2.3. Messung der Präparatstärke	18
	3. Proben- und Präparathalterung	21
	4. Beschreibung der Hochvakuumapparatur	21
	5. Temperierung der Proben	23
	6. Elektronenmikroskopie	26
	6.1. Abdruckverfahren, Bedampfungstechnik	26
	6.2. Vergrößerungsmaßstab, Vergrößerungsfehler	29
	6.3. Höhenbestimmung aus der Schrägbeschattung	30
IV.	<u>Auswertung der Experimente</u>	
	1. statistische Auswertung der Aufnahmen	33
	2. Fourieranalyse des Oberflächenprofils	36
	2.1. Bestimmung der Korrekturfaktoren	36
	2.2. Wichtung der Meßgrößen	39

3.	Bestimmung des Exponenten "n"	43
3.1.	Ausgleichsrechnung	43
3.2.	Fehler für den Exponenten n	46
3.3.	numerische Auswertung	48
3.3.1.	thermisch aktivierte Einebnung bei 483°K	48
3.3.2.	thermisch aktivierte Einebnung bei 513°K	49
3.3.3.	bestrahlungsstimulierte Einebnung bei 296°K	50
4.	Bestimmung der Aktivierungsenthalpie " H_v "	51
4.1.	Berechnungsgrundlagen	51
4.2.	numerische Auswertung	54
4.2.1.	H_v für die thermisch aktivierte Einebnung	54
4.2.2.	H_v für die bestrahlungsstimulierte Einebnung	54
5.	Bestimmung des Rekombinationskoeffizienten " α "	55
5.1.	Berechnungsgrundlagen	55
5.2.	numerische Auswertung	57
6.	Bestimmung des Faktors " D_0 " des Diffusionskoeffizienten	58
6.1.	Berechnungsgrundlagen	58
6.2.	numerische Auswertung	
6.2.1.	D_0 für die thermisch aktivierte Einebnung	60
6.2.2.	D_0 für die bestrahlungsstimulierte Einebnung	61
6.2.3.	Fehlerrechnung für D_0	62
7.	Zusammenstellung der Ergebnisse	63
V.	<u>Diskussion der Meßergebnisse</u>	66
VI.	<u>Zusammenfassung</u>	69
VII.	<u>Literaturverzeichnis</u>	70
VIII.	<u>Bilderanhang</u>	72

I. Einleitung

Viele Eigenschaften eines Festkörpers hängen nicht so sehr von seiner Struktur ab, als vielmehr von deren Unregelmäßigkeiten, den Gitterdefekten. Solche Störungen, insbesondere Punktfehler wie Leerstellen und Zwischengitteratome, lassen sich z.B. durch eine Bestrahlung mit hochenergetischen Teilchen erzeugen. Strahlungsinduzierte Veränderungen bedingen meist eine Verschlechterung der Materialeigenschaften, weswegen man sie oft als Strahlenschäden - radiation damage - bezeichnet.

Während über bestrahlungsbedingte Veränderungen im Inneren des festen Körpers schon Informationen in größerem Umfang verzeichnet werden können /1/, gibt es nur wenige Arbeiten, welche die Möglichkeiten einer direkten visuellen Beobachtung strahlungsinduzierter Prozesse durch die, in letzter Zeit hochentwickelte, Elektronen- und Ionenoptik ausnutzen. Daraus ließen sich wertvolle zusätzliche Kenntnisse über die Art der strukturellen Veränderungen in Festkörpern gewinnen.

W.Marth /2/ fand 1959 an Kupfer erstmalig eine elektronenmikroskopisch gut nachweisbare Oberflächenveränderung durch α -Beschluß. Die ursprünglich rauhen Kupferoberflächen (Welligkeit ca. 1000 Å) glätteten sich bei Bestrahlung mit ca. $5 \times 10^{15} \alpha / \text{cm}^2$ von 5,3 MeV. Als Mechanismus für diesen Einebnungsvorgang wurde eine Auffüllung der Vertiefungen durch Zwischengitteratome diskutiert, die während der Bestrahlung in der oberflächennahen Grenzschicht erzeugt werden. Abschätzungen zeigten, daß zwar grundsätzlich Einebnung durch diese Volumendiffusion der Zwischengitteratome erreicht wird, jedoch hätte unter den gegebenen Versuchsbedingungen die Bestrahlungsdosis um Größenordnungen höher sein müssen, um den beobachteten Effekt quantitativ zu deuten. Diese Diskrepanz war Anlaß zu der nachfolgend eingehender beschriebenen quantitativen Untersuchung der bestrahlungsbedingten Oberflächeneinebnung an Metallen. Die Methodik des Experimentes und der Auswertung wurde auf ihre Richtigkeit an den Vorgängen

der thermisch aktivierten Oberflächeneinebnung
überprüft. Die vorzügliche Übereinstimmung der Versuchsergebnisse mit
der, in den letzten Jahren von W.W.Mullins /3/4/ entwickelten Theorie
der thermischen Oberflächenglättung, rechtfertigte die Anwendung auf
den noch unbekanntem Prozess der strahlungsinduzierten
Oberflächenglättung.

II. Kinetik der Oberflächeneinebnung

II.1 thermisch aktivierte Einebnung

Die Beschreibung der kinetischen Vorgänge bei einer bestrahlungsinduzierten Einebnung von Metalloberflächen wird aus einem Vergleich mit dem Mechanismus der thermisch aktivierten Oberflächenglättung hergeleitet. Nach W.W.Mullins /3/4/ wird der Ablauf der thermischen Einebnung wesentlich von einigen Stoffeigenschaften, wie Dampfdruck, Selbstdiffusionskoeffizient und Oberflächenspannung bestimmt. Die treibende Kraft der Oberflächenglättung ist die Oberflächenspannung. Sie ist bestrebt, die Oberfläche einzuebnen und so einen möglichst energiearmen Zustand herzustellen. Als mögliche Mechanismen werden angeführt

viskoses Fließen
Verdampfung - Kondensation
Volumendiffusion
Oberflächendiffusion

Die ersten beiden Möglichkeiten lassen sich mit den bekannten Daten über Zähigkeit und Dampfdruck von Kupfer ausschließen, so daß die Beschreibung der Einebnungsvorgänge auf die Diffusionsprozesse beschränkt werden kann. Volumendiffusion wird, zumindest in Metallen, von Gitterleerstellen vermittelt. Ihre Konzentration ist gegeben durch

$$C = C_0 \cdot \exp(-G/RT)$$

mit G = Bildungsenthalpie für Leerstellen. C_0 hat die Größenordnung 1. Für Kupfer ist $G \approx 1$ eV. Somit ist bei Zimmertemperatur die thermodynamische Gleichgewichtskonzentration der Leerstellen äußerst gering ($C \approx 10^{-17}$). Durch Volumendiffusion ist daher ein Stofftransport in dem beobachteten Ausmaß nicht zu erwarten. Für Oberflächendiffusion ist die Bildungsenthalpie für Leerstellen und auch die Aktivierungsenthalpie für die Wanderung geringer. Wenigstens im Bereich der Raumtemperatur ist deshalb zu vermuten, daß die **O b e r f l ä c h e n d i f f u s i o n** als Ursache der Einebnung überwiegt.

Für die freie Enthalpie eines Atomes einer Oberfläche mit örtlich veränderlicher Krümmung gibt es, infolge der Oberflächenspannung, einen Gradienten. Dieser führt über die Nernst-Einstein-Beziehung zwischen Driftbeweglichkeit und Diffusionskoeffizienten zu einer Driftgeschwindigkeit und damit zu einem Stoffstrom entlang der Oberfläche, von Orten mit konvexer Krümmung zu Orten mit konkaver Krümmung. Für eine Oberfläche mit einem sinusförmigen Rillenprofil $x = H_0 \cdot \sin \omega y$ mit der "Wellenlänge" (Abstand benachbarter Oberflächenrillen) $\lambda = 2\pi/\omega$ ergibt sich im Falle $H_0 \ll \lambda$ nach Mullins die Einebnungsgeschwindigkeit der Maxima

$$\text{II.1-1} \quad dx/dt = - B \cdot \omega^n \cdot x$$

Für Oberflächendiffusion ist $B = D_{\text{ofl}} \cdot \gamma \cdot \Omega^2 \cdot \beta/RT$ und $n = 4$;
für Volumendiffusion ist $B = D_{\text{vol}} \cdot \gamma \cdot \Omega/RT$ und $n = 3$.

Es bedeuten $\gamma =$ Oberflächenspannung
 $\Omega =$ Atomvolumen
 $\beta =$ reziproke Atomfläche

Die Diffusionskoeffizienten sind

$$D_{\text{ofl}} = D_{\text{o ofl}} \cdot \exp.(-H_{\text{ofl}}/RT)$$

$$D_{\text{vol}} = D_{\text{o vol}} \cdot \exp.(-H_{\text{vol}}/RT)$$

H ist die Aktivierungsenthalpie der Diffusion.

Das Verhältnis der Einebnungsgeschwindigkeiten durch Oberflächen- und Volumendiffusion ist somit nach II.1-1 für eine gegebene Oberfläche

$$\text{II.1-2} \quad (dx/dt_{\text{ofl}}) / (dx/dt_{\text{vol}}) = D_{\text{ofl}} \cdot (\omega \cdot \Omega \cdot \beta) / D_{\text{vol}}$$

Die numerischen Werte für Kupfer sind /5/6/

Aktivierungsenthalpie für die thermisch aktivierte Selbstdiffusion

$$H_v = 1,77 \text{ eV an der Oberfläche}$$

$$H_v = 2,35 \text{ eV im Volumen}$$

Faktor D_o des Diffusionskoeffizienten

$$D_o \text{ ofl} = 650 \text{ cm}^2/\text{s}$$

$$D_o \text{ vol} = 4,1 \text{ cm}^2/\text{s}$$

außerdem

$$\Omega = 1,2 \times 10^{-23} \text{ cm}^3/\text{Atom}$$

$$B = 1,93 \times 10^{15} \text{ Atome/cm}^2$$

Damit findet man für das in Gl.II.1-2 angegebene Verhältnis, bei einer mittleren Wellenlänge von $\lambda = 4 \times 10^{-5} \text{ cm}$

$$\text{für Raumtemperatur (300°K)} \quad 2,5 \times 10^9 / 1$$

$$\text{für die höchste, in den nachfolgenden Experimenten verwendete, Temperatur (513°K)} \quad 2,5 \times 10^5 / 1$$

Die Oberflächendiffusion überwiegt im thermischen Falle der Volumendiffusion um Größenordnungen.

Die integrierte Form des Einebnungsprozesses nach Gl.II.1-1 ist unter der Voraussetzung der Zeitunabhängigkeit der Koeffizienten

$$\text{II.1-3} \quad H/H_o = \exp(-B \cdot \omega^n \cdot t)$$

H_o und H sind die experimentell bestimmbaren Tiefen der Oberflächentrillen zu Beginn und Ende des Zeitintervalles t .

B enthält nur Größen, die entweder bekannt sind oder experimentell gefunden werden können. Definiert man mit

$$E = (1 - H/H_0)$$

die Verflachung des Oberflächenprofiles, so ist die thermisch aktivierte Einebnung beschrieben

durch Oberflächendiffusion

$$\text{II.1-4a} \quad E = 1 - \exp\left(- \frac{\gamma \cdot \Omega^2 \cdot \beta \cdot \omega^4 \cdot D_0 \cdot t \cdot \exp(-H_v/RT)}{R \cdot T}\right)$$

durch Volumendiffusion

$$\text{II.1-4b} \quad E = 1 - \exp\left(- \frac{\gamma \cdot \Omega \cdot \beta \cdot \omega^3 \cdot D_0 \cdot t \cdot \exp(-H_v/RT)}{R \cdot T}\right)$$

Die Einebnung ist mit der dritten oder vierten Potenz abhängig von der experimentellen Größe $\omega = 2\pi/\lambda$, je nach dem vorherrschenden Prozeß. In der Schreibweise

$$\text{II.1-3a} \quad \ln \ln H/H_0 = n \cdot \ln \omega + A$$

stellt Gl.II.1-3 die Gleichung einer Geraden dar, mit der Steigung n und dem Achsenabschnitt $A = \ln K$. So kann, allein durch die Kenntnis der Einebnungsverhältnisse bei verschiedenen Wellenlängen $\lambda = 2\pi/\omega$, experimentell zwischen Oberflächendiffusion ($n=4$) oder Volumendiffusion ($n=3$) entschieden werden.

Anhand dieser Methode wird im Folgenden die Zuverlässigkeit der Gl.II.1-4 an der thermisch aktivierten Oberflächeneinebnung überprüft.

II.2 bestrahlungsstimulierte Einebnung

Bei der strahlungsinduzierten Einebnung kommt hinzu, daß durch α -Bestrahlung fortlaufend Frenkeldefekte produziert werden. In Oberflächennähe besteht für die dabei erzeugten Zwischengitteratome, die bei hinreichend hoher Temperatur* beweglich sind, etwa gleiche Wahrscheinlichkeit für eine Rekombination mit Leerstellen, wie für eine irreversible Abwanderung an die Oberfläche. Dadurch geht ein Teil der Zwischengitteratome als Rekombinationspartner für Leerstellen verloren. Diffusion in Metallen verläuft aber gerade über Gitterleerstellen, die nun in weit höherer Konzentration vorhanden sind, als die thermodynamische Gleichgewichtskonzentration ausmacht. Für die Beschreibung der bestrahlungsstimulierten Oberflächeneinebnung wird daher der Diffusionskoeffizient im Faktor B der Gl. II.1-1 einer Korrektur bedürfen.

Der Betrag des Diffusionskoeffizienten ist direkt proportional der Leerstellenkonzentration. Es ist

$$\text{II.2-1} \quad D \sim v \cdot \exp(-H/RT)$$

Unter der vereinfachenden Annahme, daß die Oberfläche nicht als Senke für die Leerstellen wirksam ist, ergibt sich aus den Bilanzgleichungen für die Erzeugung von Gitterdefekten /7/8/, für den hier behandelten Fall der Oberflächennähe, die Leerstellenkonzentration

$$\text{II.2-2} \quad v = (1/\alpha) \cdot (1 - \exp(-\alpha \cdot I \cdot t))$$

I ist die Frenkeldefekterzeugungsrate. Sie ist für α -Teilchen mit einer Anfangsenergie von 5,3 MeV aus Polonium 210 in Kupfer anzugeben mit

$$\text{II.2-3} \quad I = (1/3) \cdot \Phi_0 \cdot \sigma \quad \text{pro sec}$$

* in Kupfer oberhalb 253°K

bei einer Teilchenflußdichte

$$\bar{\Phi}_0 = \frac{3,7 \cdot 10^{10} \cdot \text{Quellenaktivität in Curie}}{\text{wirksame Quellenfläche in cm}^2} \text{ pro cm}^2 \cdot \text{sec}$$

und einem Wirkungsquerschnitt für die Frenkeldefekterzeugung von $\sigma = 10^{-18} \text{ cm}^2$. Der Faktor $1/3$ ist ein Erfahrungswert und korrigiert die, mit sehr vereinfachenden Annahmen berechnete, theoretische Erzeugungsrate. Der Koeffizient α steht für die Zahl der Gitterplätze um eine Leerstelle, auf denen eine spontane Rekombination mit dem Zwischengitteratom eintritt.

Während die normale thermodynamische Gleichgewichtskonzentration für Leerstellen in Kupfer bei Zimmertemperatur ca. $10^{-15}\%$ beträgt, erhöht sich dieser Anteil bei einer Bestrahlung mit einer, bei diesen Experimenten gebräuchlichen, Dosis von $10^{16} \alpha/\text{cm}^2$ um den Faktor 10^{15} auf etwa 1%. * Es ist offensichtlich, daß eine derartige Erhöhung des Leerstellenangebotes eine außerordentliche **S t i m u l a t i o n** der **D i f f u s i o n** bewirken wird. Es soll daher im folgenden für diese Vorgänge der Begriff der **b e s t r a h l u n g s s t i m u l i e r t e n** **O b e r f l ä c h e n e i n e b n u n g** verwendet werden.

Mit einer zeitabhängigen Konzentration der Leerstellen nach Gl.II.2-2 wird nun auch die Konstante B in Gl.II.1-1 zeitabhängig, was bei der Integration dieser Beziehung berücksichtigt werden muß. Man erhält dann analog der thermisch aktivierten Einebnung nach Gl.II.1-4 eine Beschreibung der bestrahlungsstimulierten

* Es wurde u.a. der Versuch unternommen diese hohe Leerstellendichte in Oberflächennähe röntgenografisch nachzuweisen. Eine beobachtete Linienverschiebung an einem Kupfereinkristall nach einer Bestrahlung mit einer Dosis von $2,6 \cdot 10^{16} \alpha/\text{cm}^2$ erwies sich jedoch als nicht reproduzierbar, da der beobachtete Effekt in der Größe der Meßgenauigkeit derartiger Verfahren liegt.

Einebnung nach einer Bestrahlungszeit t

II.2-4a

$$E = 1 - \exp \left[- \frac{\gamma \cdot \Omega^2 \cdot B \cdot \omega^4 \cdot D_o \cdot \exp(-H_v/RT)}{\alpha \cdot R \cdot T} (t - (1/\alpha I)(1 - \exp(-\alpha I t))) \right]$$

für Oberflächendiffusion und

II.2-4b

$$E = 1 - \exp \left[- \frac{\gamma \cdot \Omega \cdot B \cdot \omega^3 \cdot D_o \cdot \exp(-H_v/RT)}{\alpha \cdot R \cdot T} (t - (1/\alpha I)(1 - \exp(-\alpha I t))) \right]$$

für Volumendiffusion.

Ein Vergleich mit dem Ausdruck Gl.II.1-4 der thermischen Einebnung zeigt, daß Gl.II.2-4 ähnlich gebaut ist. Die Zahlenwerte für D_o und H_v sind allerdings andere, während die Zeit t ersetzt wird durch eine, um die Produktion der zusätzlichen Leerstellen während der Bestrahlung reduzierte Einebnungsdauer

$$t^* = (1/\alpha I)(1 - \exp(-\alpha I t))$$

Auch hier ist abzuschätzen, ob eine Einebnung durch Volumendiffusion vernachlässigt werden darf. Nach Gl.II.1-2 wird wiederum das Verhältnis $(dx/dt)_{ofl} / (dx/dt)_{vol}$ gebildet. Es ist

$$(dx/dt_{ofl}) / (dx/dt_{vol}) = D_{ofl} \cdot (\omega \cdot \Omega \cdot B) / D_{vol}$$

Die Berechnungsgrößen sind z.T. Literaturwerte /6/9/10/, zum anderen Ergebnisse dieser Arbeit, die jedoch unabhängig von den Koeffizienten der zu beweisenden Theorie ermittelt wurden. Es sind

$$H_v = 0,67 \text{ eV an der Oberfläche}$$

$$H_v = 1,10 \text{ eV im Volumen (Mittelwert)}$$

die Aktivierungsenthalpie für eine bestrahlungsstimulierte Diffusion (entspricht der Aktivierungsenthalpie für Leerstellenwanderung).

$$D_{o\ ofl} = 20\ \text{cm}^2/\text{s}$$

der Faktor im Diffusionskoeffizienten

$$\alpha = 324$$

die Rekombinationskonstante. Außerdem gelten für β und Ω die Werte aus Abschn.II.1.

Damit ergibt sich für eine mittlere Wellenlänge $\lambda = 4 \times 10^{-5}$ cm und für die höchste, im Experiment verwendete Temperatur (323° K), ein Verhältnis von rd. 10^5 zu Ungunsten einer Volumendiffusion. Für tiefere Temperaturen liegt das Verhältnis nach Gl.II.1-2 noch weiter auf Seiten der Oberflächendiffusion. Selbst für die experimentell höchstmögliche Temperatur von 523° K (Schmelzpunkt des Po 210) überwiegt die Oberflächendiffusion noch mit dem Faktor 250. Eine geringe Unsicherheit in den Werten H_v und $D_{o\ vol}$ beeinflusst diese Abschätzung nur unwesentlich, so daß auch im Fall der bestrahlungstimulierten Oberflächeneinebnung die O b e r f l ä c h e n d i f f u s i o n als der allein verantwortliche Mechanismus angesehen werden muß.

Die Auswertung der nachfolgend zu erläuternden Versuche über die Oberflächenglättung wird allerdings so ausgelegt werden, daß der Exponent "n" (3 für Volumendiffusion, 4 für Oberflächendiffusion) in den Gl.II.2-4a,b nicht vorgegeben werden wird, sondern unabhängig als experimentelles Ergebnis gewonnen wird.

III. Experimentelle Durchführung

Bei einer elektronenmikroskopischen Betrachtung angeätzter p o l y k r i s t a l l i n e r Metalloberflächen zeigen sich, innerhalb kristallografisch verschieden orientierter Bereiche, sehr unterschiedliche Formen der Substruktur. Dadurch ist eine generelle Beurteilung der Glättung einer Oberfläche kaum möglich. Eine exakte Auswertung einer Einebnung erfordert entweder die eindeutige Zuordnung einer markierten Stelle bei wiederholter Betrachtung nach verschiedenen Einebnungszeiten, oder eine hinreichend homogene Oberflächenstruktur, die einen Vergleich an verschiedenen Stellen erlaubt. Um die aufwendige elektronenmikroskopische Zielpräparation zu umgehen, wurde die letztgenannte Möglichkeit ausgewählt, realisiert durch die Verwendung e i n k r i s t a l l i n e n Probenmaterials. Es wurde ein Stoff gewählt, dessen kristallografischer Aufbau übersichtlich und gut erforscht ist; im vorliegenden Fall das kubisch-flächenzentrierte Kupfer, das als Elektrolytkupfer bereits große Reinheit aufweist und auch als Einkristall beschafft werden konnte.*

III.1 Herstellung und Auswahl der Proben

III.1.1 manuelle Vorbehandlung

Als Ausgangsmaterial für die Proben diente ein zylindrischer Kupfer-Einkristall mit den Abmessungen 150 mm Länge und 50 mm Durchmesser, aus dem Würfel vorgegebener kristallografischer Orientierung von etwa 1 cm^3 Größe herausgeschnitten wurden. Bei der weiteren metallografischen Bearbeitung der Proben war vor allem eine übermäßige Verformung des einkristallinen Materials zu vermeiden.**

* Das Probenmaterial wurde freundlicherweise von Herrn Dr.o.Krisement (Max-Planck-Institut für Eisenforschung, Düsseldorf) zur Verfügung gestellt.

** Um eine Vorstellung vom Ausmaß dieser Defekte zu erhalten, sei hier erwähnt, daß die Dicke einer durch Schleifen deformierten Schicht, unter ungünstigen Behandlungsbedingungen und Materialeigenschaften, mehrere mm betragen kann.

Dies wird durch Naßschleifen weitgehend erreicht, wobei ein Schmiermittel auch gleichzeitig die nötige Kühlung der Probe besorgt. Es wurde nacheinander mit Körnungen von 70 μ bis 15 μ geschliffen, was bei Kupfer ausreicht, um eine mikroskopisch ebene Fläche zu erzielen.

Anschließend wird auf einer langsam laufenden (250 Upm.) Polierscheibe, mit angeteigtem Diamantstaub als Schleifmittel, unter sehr geringem Druck nachpoliert, wodurch man eine äußerst ebene und wenig verschmierte und deformierte Probenoberfläche erhält.

III.1.2 elektrolytische Nachbehandlung

Literatur /11/12/

Die Oberflächengüte, die mit den im vorigen Abschnitt angegebenen Vorschriften erzielt wird, reicht für elektronenmikroskopische Untersuchungen nicht aus, da die durch das feinste Schleifkorn noch immer hervorgerufenen Polierkratzer in der Größe des elektronenmikroskopischen Gesichtsfeldes liegen. Diese Unebenheiten können jedoch elektrolytisch geglättet werden, wobei gleichzeitig verformte und evtl. in ihrer chemischen Zusammensetzung veränderte Deckschichten mit entfernt werden. Dazu wird die entsprechende Probe in einer elektrolytischen Anordnung als Anode geschaltet. Vorausgesetzt, daß bestimmte Werte für die Stromdichte eingehalten werden, bildet sich an der Probenoberfläche ein viskoser Film von Reaktionsprodukten mit einem hohen elektrischen Widerstand. * Bedingt durch eine unterschiedliche Dicke dieser Schicht in den Vertiefungen und auf den erhabenen Teilen der Probenoberfläche, stellen sich partiell unterschiedliche Stromdichten ein, die zu einer selektiven elektrolytischen Abtragung des Materials führen. Je nach Wahl der Bedingungen hat man es in der Hand, entweder einen Angriff auf das erhabene Profil der Fläche, also eine Einebnung, zu erzielen, oder aber eine selektive Korrosion leichter löslicher Gefügebestandteile zu bewirken, was zu einer physikalischen und chemisch bedingten Reliefbildung führt, also einem Ätzzvorgang entspricht.

* Die positiven Ionen der als Anode geschalteten Probe gehen in Lösung und bilden mit den Anionen des Elektrolyten komplexe Verbindungen.

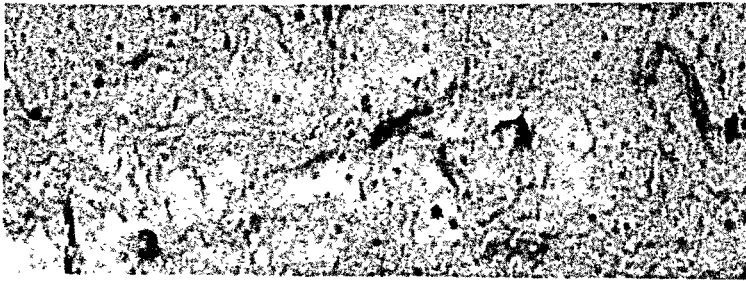
Für die hier durchgeführten Untersuchungen wurde das "Elypovist" der Firma Carl Zeiss Jena verwendet, das eine lichtmikroskopische Beobachtung des Polier- und Ätzworganges zuläßt und damit gleichzeitig eine Vorauswahl der Proben.

Als Elektrolyt diente eine, von der Firma Dujardin & Co. unter der Bezeichnung "D 15" gelieferte, Zusammensetzung (nach Knuth-Winterfeldt), die im Wesentlichen aus einem Gemisch von Phosphorsäure, Methylalkohol und verschiedenen Inhibitoren, meist Glycerin oder Butylglycol, besteht. Die Reaktionsgeschwindigkeit ist verlangsamt gegenüber der sonst üblichen Verwendung von reiner Phosphorsäure als Elektrolyten für Kupfer, was sich günstig auf die Homogenität der Probenoberfläche auswirkt.

III.1.3 Auswahl der Proben, Kontrollaufnahmen

Abhängig von der Schnittrichtung bezüglich der kristallografischen Orientierung zeigen die Proben eine beträchtlich unterschiedliche Oberflächenstruktur (s.S.14, Abb.1a-f). Für eine quantitative Aussage über die Einebnung einer rauhen Fläche ist ein Profil erwünscht, das durch möglichst einfache geometrische Formen angenähert werden kann, dessen Flächenorientierung leicht immer wieder hergestellt werden kann und das reproduzierbar zu erzeugen ist. Diese Forderungen werden von Flächen senkrecht zur Einkristalllängsachse gut erfüllt, die im verwendeten Kristall in erster Näherung als in der 1,1,1-Ebene liegend angesehen werden konnte.

Abb.2 zeigt eine für diese Schnittrichtung typische Oberfläche. Die angenähert prismatischen Stufen variieren in ihrem Abstand zwischen 1000 \AA bis 6000 \AA , was für spätere Experimente über die Abhängigkeit der Einebnung von der Basislänge sehr wichtig ist.



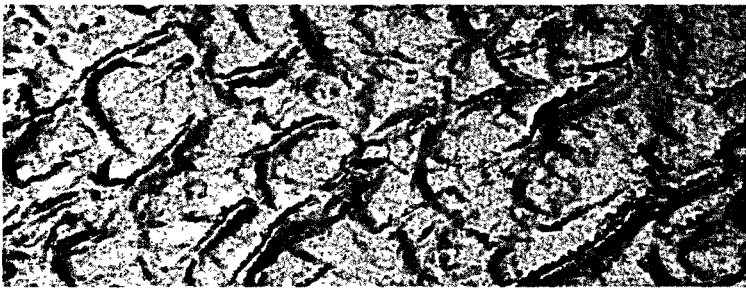
zentraler Längsschnitt
in beliebiger Richtung



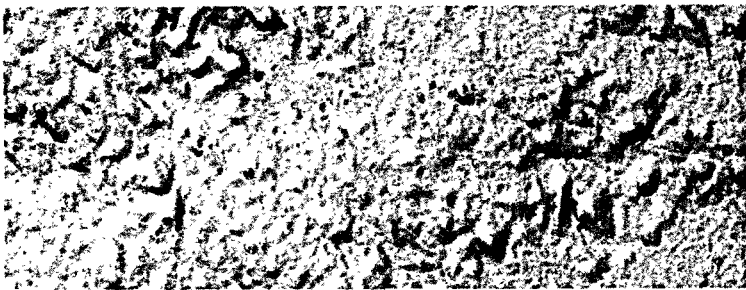
Schnitt um 30° gedreht



Schnitt um 45° gedreht



Schnitt um 60° gedreht



Schnitt um 90° gedreht



Schnitt senkrecht zur
Längsachse



Abb.2: Typische Probenoberfläche - senkrecht zur 1,1,1-Ebene geschnitten
Vergrößerung 1:60 000 , Kohleabdruck mit Pt unter 45° beschattet

III.2 Bestrahlungsquellen

Literatur /13/14/15/

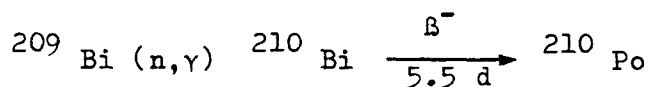
Durch eine Bestrahlung der Proben mit hochenergetischen Teilchen soll eine Verlagerung eines großen Teiles der Gitterbausteine in oberflächennahen Bereichen bewirkt werden. Als Teilchenquellen dienten radioaktive Präparate von ^{210}Po Polonium (Ra-F), die vom "Radiochemical Centre Amersham", England, bezogen wurden. Diese Quellen bestehen aus einem scheibenförmigen Aluminiumträger mit den Abmessungen ϕ 18 mm x 3.5 mm, auf die in einer Vertiefung, auf einer Platinschicht, das Polonium elektrolytisch abgeschieden ist. Dieser aktive Fleck von ϕ 7 mm ist mit einer Glimmerfolie von 1.2-1.5 mg/cm² abgedeckt.

III.2.1 Polonium 210

Das Polonium 210 ist ein, von M. und P. Curie 1898 entdecktes, Zerfallsprodukt in der Radiumreihe (Ra-F).

Massenzahl: 210
Kernladungszahl: 84
spezifisches Gew.: 9.4 g/cm³
Schmelzpunkt: 246 - 254 ° C

Seine Herstellung erfolgt heute im Reaktor nach dem Reaktionsschema:



Po 210 zerfällt fast ausschließlich unter Aussendung einer energiereichen α -Strahlung zu Pb 206 . Daneben tritt eine γ - und eine Röntgenstrahlung auf, die jedoch wegen ihres äußerst geringen Anteiles von 10⁻³ % für die hier durchgeführten Untersuchungen bedeutungslos ist.

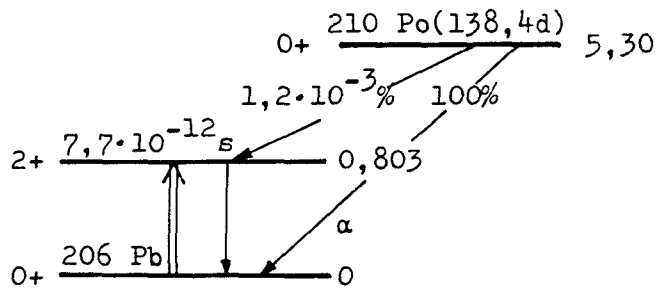
Art der Strahlung:

α -Strahlung, 5.3 MeV, 4.5 MeV

γ -Strahlung, 0.8 MeV

X -Strahlung, 0.1, 0.08 MeV

Halbwertszeit: 138.4 Tage



α -Reichweite in Luft (760 mm Hg, 15°C): 3.842 (3.87) cm

α -Eindringtiefe in Kupfer: 11 μ

1 g Polonium 210 entspricht einer Aktivität von 4500 Curie.

III.2.2 Schutzmaßnahmen

Die geringe Reichweite der α -Strahlung erfordert keine besonderen Abschirmungsmaßnahmen (der geringe γ -Anteil darf trotz der verwendeten hohen Aktivitäten vernachlässigt werden).

Polonium 210 ist jedoch schon bei Zimmertemperatur flüchtig und diffundiert aus geschlossenen Präparaten. Die Gefahr einer Inkorporation und einer Kontamination der Umgebung ist nicht zu unterschätzen. Mit einer Aktivität von 1 Curie stellen die verwendeten Quellen ein Äquivalent von 0.2 mg Polonium 210 dar, eine Menge, die der 10^8 -fachen zulässigen Ganzkörperdosis und der 10^{10} -fachen Toleranzdosis pro m^3 Luft entspricht.* Dies bedingt, daß Polonium nur in geschlossenen Laborsystemen verwendet werden kann. Jede Manipulation der Proben und Quellen darf nur in "glove-boxes" stattfinden, wobei zu bemerken ist, daß die üblichen Gummihandschuhe nicht als ausreichender Schutz anzusehen und durch solche aus "Neoprene" zu ersetzen sind. Zur laufenden Laborüberwachung haben sich großflächige Detektoren gut bewährt, die nach dem Ionisationsprinzip arbeiten (z.B. "alpha-survey-meter", Mod.2112 P, der Firma Nuclear Chicago; Detektorfläche 100 cm^2).

* Nach den Bestimmungen des National Bureau of Standards gelten als zulässig: Dauerkonzentration in Luft $1 \times 10^{-8} \text{ ug} / \text{m}^3$
 zulässige Ganzkörperdosis $1.6 \times 10^{-6} \text{ ug}$

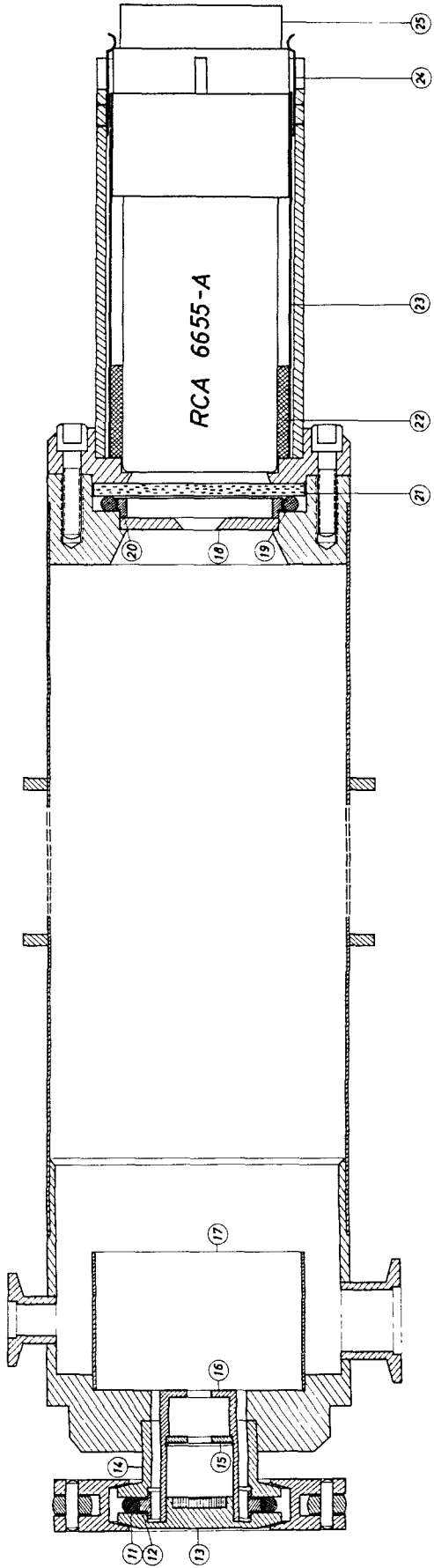
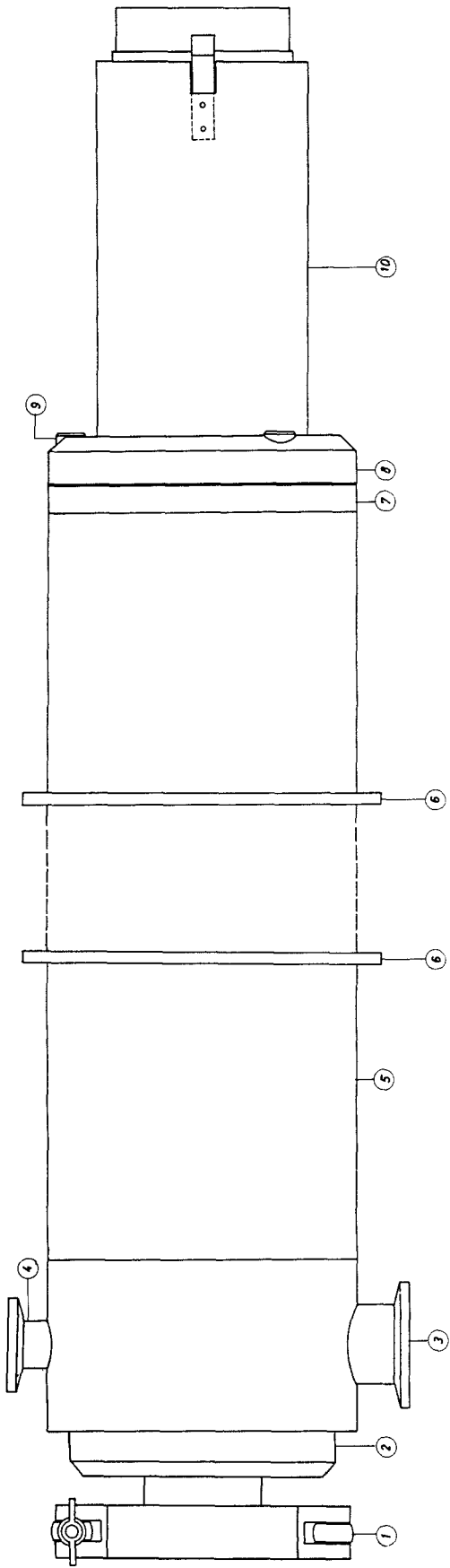
III.2.3 Messung der Präparatstärke

Bedingt durch die Flüchtigkeit des Polonium 210 reicht eine Bestimmung der Quellenaktivität allein durch eine Berechnung aus der Halbwertszeit nicht aus. Ist erst einmal die Deckfolie der Präparate zerstört, was durch die Eigenbestrahlung meistens schon nach weniger als einer Halbwertszeit der Fall ist, muß man mit wesentlichen Verlusten unzerfallener Poloniumatome rechnen, hervorgerufen durch eine allgemeine Zerstäubung der Oberfläche durch die Rückstoßatome der aktiven Substanz /16/. Eine definite Aussage über die Anzahl der durch Bestrahlung erzeugten Gitterdefekte ist jedoch nur möglich, wenn die Quellenstärke genau bekannt ist.

Die gebräuchlichen Detektoren für radioaktive Strahlung sind durchweg ungeeignet für die Messung einiger 10^{10} Ereignisse/sec. Man ist daher gezwungen, durch Einengung der Geometrie, realisierbare Zählraten zu gewinnen. Dies gelingt durch eine Anordnung, die als "low geometry counter" bekannt wurde, jedoch nur in wenigen Labor-mustern vorhanden ist.

Der Messung liegt folgendes Prinzip zugrunde: Die Reichweite der α -Strahlung (4 cm in Luft bei 760 Torr) wird im Vakuum um ein Vielfaches erhöht. Durch diese Veränderung der geometrischen Verhältnisse bei der Aktivitätsmessung ist es gut möglich, einen Bruchteil in der Größenordnung 10^{-6} des isotrop verteilten Teilchenstromes auszublen-den und über einen Szintillationszähler zu registrieren. Ausgelegt auf Aktivitäten von einigen Curie wurde ein derartiges Gerät für die Kontrolle und Messung der verwendeten Po^{210} -Präparate konstruiert.

Als Meßkammer (Abb.3) dient ein senkrecht aufgestelltes vakuum-dichtes Rohr von 3 m Länge. Sein unteres Ende wird durch einen aus-wechselbaren Präparatsträger (13) mit aufgestecktem Blendensystem (15,16) verschlossen und mündet aus Sicherheitsgründen in einer "glove-box". Den oberen Abschluß des Rohres bildet ein Szintillations-schirm (21), dem Blenden (18) unterschiedlicher Öffnung vorgeschaltet werden können. Die Registrierung der Szintillationen besorgt ein Photomultiplier (Typ RCA 6655-A), der über einen direkt angeblockten



KERNREAKTOR BAU- u. BETRIEBS-GES KARLSRUHE TU-12-61	LOW GEOMETRY COUNTER BLATT 1	Abb.: 3
--	------------------------------------	---------

Vorverstärker auf ein Zählgerät geschaltet ist. Die Evakuierung des Systems erfolgt über Absolutfilter (in der Darstellung nicht angegeben) mit einer einstufigen Gasballastpumpe, die Kontrolle des Arbeitsdruckes mit einem Thermotron. Eine Verbesserung des Vakuums unter 10^{-2} Torr bringt keine Veränderung der Zählrate mehr, da dann die Reichweite der α -Partikel schon über 5 m beträgt. Mit dieser Anordnung wird eine Verminderung der Zählgeometrie um den Faktor 1.18×10^{-6} erreicht und damit eine Reduzierung der ursprünglichen Zählraten auf einige 10^4 Impulse pro Sekunde.

Die Eichung dieser Anordnung erfolgte über eine Bestimmung der Totzeit aus Messungen mit unterschiedlichen Blenden (18) und ihren zugehörigen Zählraten.

T o t z e i t : Blenden 1 cm^2 und 0.25 cm^2
 zugehörige Zählraten z_1 und z_2

$$\tau = \frac{4 \cdot z_2 - z_1}{3 \cdot z_1 \cdot z_2}$$

Experimentell bestimmter Wert: $\tau = 2.56 \cdot 10^{-5} \text{ s} = 25 \mu\text{s}$

Damit ergibt sich die Anzahl der wirklich stattgefundenen Ereignisse, bei Verwendung einer Blende von 0.25 cm^2 , als

w a h r e Z ä h l r a t e :

$$Z_0 = \frac{4 \cdot z_1}{1 - z_1} = \frac{4 \cdot z_1}{1 - z_1 \cdot 2.56 \cdot 10^{-5}} \quad \text{Impulse/sec.}$$

P r ä p a r a t s t ä r k e :

$$C = \frac{Z_0 \cdot 1.18 \cdot 10^6}{3.7 \cdot 10^{10}} = Z_0 \cdot 3.2 \cdot 10^{-5} \quad \text{Curie}$$

Alle Zählraten sind in Impulsen pro Sekunde anzusetzen.

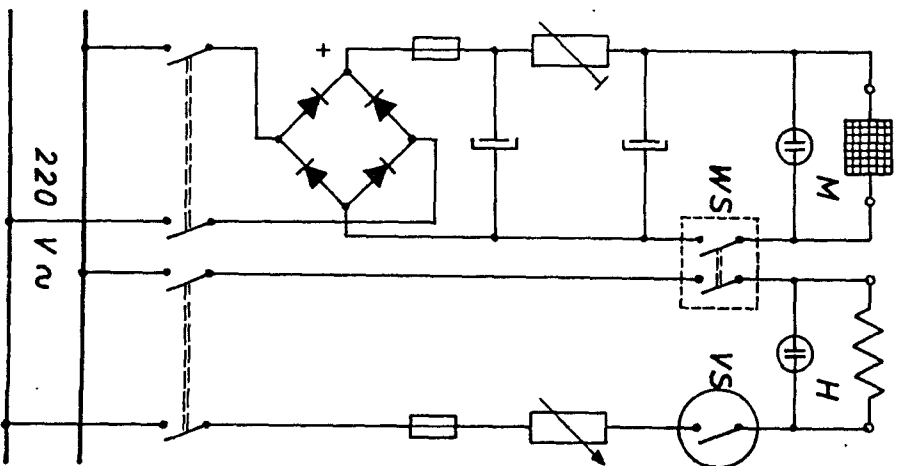
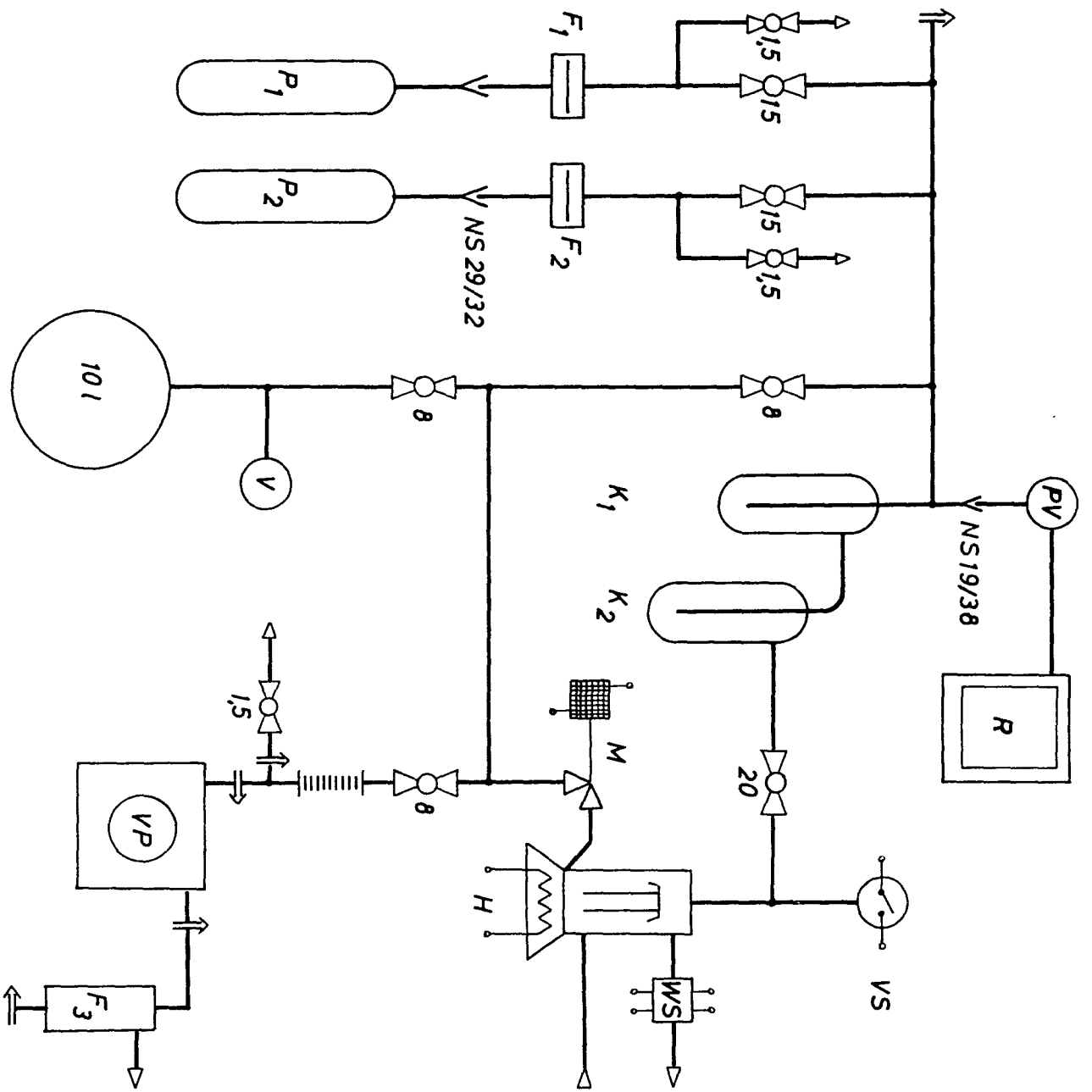
III.3 Proben- und Präparathalterung

Diese Vorrichtung muß folgende Forderungen erfüllen: Reproduzierbare Fixierung der Proben bei Serienversuchen; geringer Abstand der Probe vom radioaktiven Präparat. Für Bestrahlungsversuche bei variabler Temperatur muß ein Teil der Probenoberfläche gegen die Strahlung abgeschirmt werden können, damit eine unbestrahlte, aber temperierte, Referenzfläche erhalten bleibt. Alle Teile sind so gestaltet, daß eine einfachste Handhabung möglich ist. Dabei erleichtern vorsorglich angebrachte Gewindelöcher in Probe und Halterung den Proben- und Präparatwechsel in einer "glove-box" ganz wesentlich.

III.4 Beschreibung der Hochvakuumapparatur

Durch die stark ionisierende Wirkung der α -Strahlung wird in Luft eine vermehrte Ozonbildung hervorgerufen. Dies führt schon bei Zimmertemperatur zu starken Oxydationserscheinungen und zur völligen Zerstörung der Feinstruktur der Probenoberflächen. Die Bestrahlungsversuche müssen daher in einer inerten Atmosphäre oder im Hochvakuum durchgeführt werden. Eine kontinuierliche Spülung mit einem Schutzgas ist aus Gründen einer möglichen Verseuchungsgefahr durch Polonium 210 wenig geeignet, während eine in sich geschlossene Vakuumapparatur die Sicherheitsansprüche erfüllt. Die hier verwendete Hochvakuumapparatur weicht in ihrer Bauweise nur unwesentlich von konventionellen Anlagen ab (sh. Abb. 4).

Im Hinblick auf eine eventuelle Dekontaminierung wurde eine Ausführung in Glas gewählt. Die Vorevakuierung des Systems erfolgt durch eine einstufige Gasballastpumpe (VP), deren Funktion während des Hochvakuumbetriebes durch einen Vorvakuumbehälter übernommen wird. Das Hochvakuum wird von einer Hg-Diffusionspumpe erzeugt, die in ihrer Anlaufphase, durch Erhöhung der Heizleistung, als Dampfstrahlpumpe arbeitet (erhöhte Sauggeschwindigkeit). Um auch bei langen Bestrahlungszeiten rationell zu arbeiten sind zwei, unabhängig voneinander thermostatisierbare, Probenbehälter (P1, P2) vorgesehen.



HOCHVAKUUM-
PUMPSTAND

Abb. 4

Zwei hintereinandergeschaltete Kühlfallen (K1,K2) und entsprechende Filter (F1,F2) aus einer Schichtung von Glaswolle und Blattgold, schützen einerseits die Proben vor einer Amalgamierung durch das Treibmittel, andererseits die übrige Apparatur vor einer übermäßigen Verseuchung mit Polonium 210.

Da diese Anlage über längere Zeiten kontinuierlich betrieben werden sollte, sind verschiedene automatisch wirkende Sicherheitsvorrichtungen gegen externe Störungen vorgesehen. Über einen Membranschalter (WS) wird bei einem Ausfall des Kühlwassers die Pumpenheizung unterbrochen und über ein Magnetventil (M) die Grobvakuumseite vom Hochvakuum abgetrennt. Da dieses Ventil mit Arbeitsstrom betrieben wird, erfüllt es bei einer Unterbrechung der Stromversorgung die gleiche Funktion. Ein Manometerschalter (VS) setzt die Anlage bei einem inneren Druckanstieg auf 5 mm Hg außer Betrieb. Das Hochvakuum wird fortlaufend mit einem Penning-Vakuummeter (VP) überwacht und auf einem Linienschreiber (R) registriert.

Nach einer Anlaufzeit von ca. 20 Min. wird ein Vakuum besser als 10^{-5} mm Hg erreicht. Diese Zeit reduziert sich bei einem Probenwechsel und teilevakuiertes Anlage auf 2 bis 3 Minuten. Elektronenoptische Beugungsaufnahmen an bestrahlten Kupferproben haben gezeigt, daß die Betriebsverhältnisse ausreichend sind, Artefakte durch Oxydation der Probenoberflächen mit Sicherheit auszuschließen.

III.5 Temperierung der Proben

Die Untersuchungen verlangen vorwählbare Probentemperaturen in einem Bereich von -180°C bis $+250^{\circ}\text{C}$. Wie in einer späteren Diskussion (Abschn.V) gezeigt wird, besteht eine starke Abhängigkeit der Oberflächeneinebnung von der Temperatur, so daß eine der übrigen Meßgenauigkeit entsprechende Temperaturkonstanz gefordert wird.

Die Temperierung der Bestrahlungsproben erfolgt in temperaturkonstanten Bädern. Um den apparativen Aufwand in erträglichen Grenzen zu halten, wurde auf eine stufenlose Einstellung der Versuchstempera-

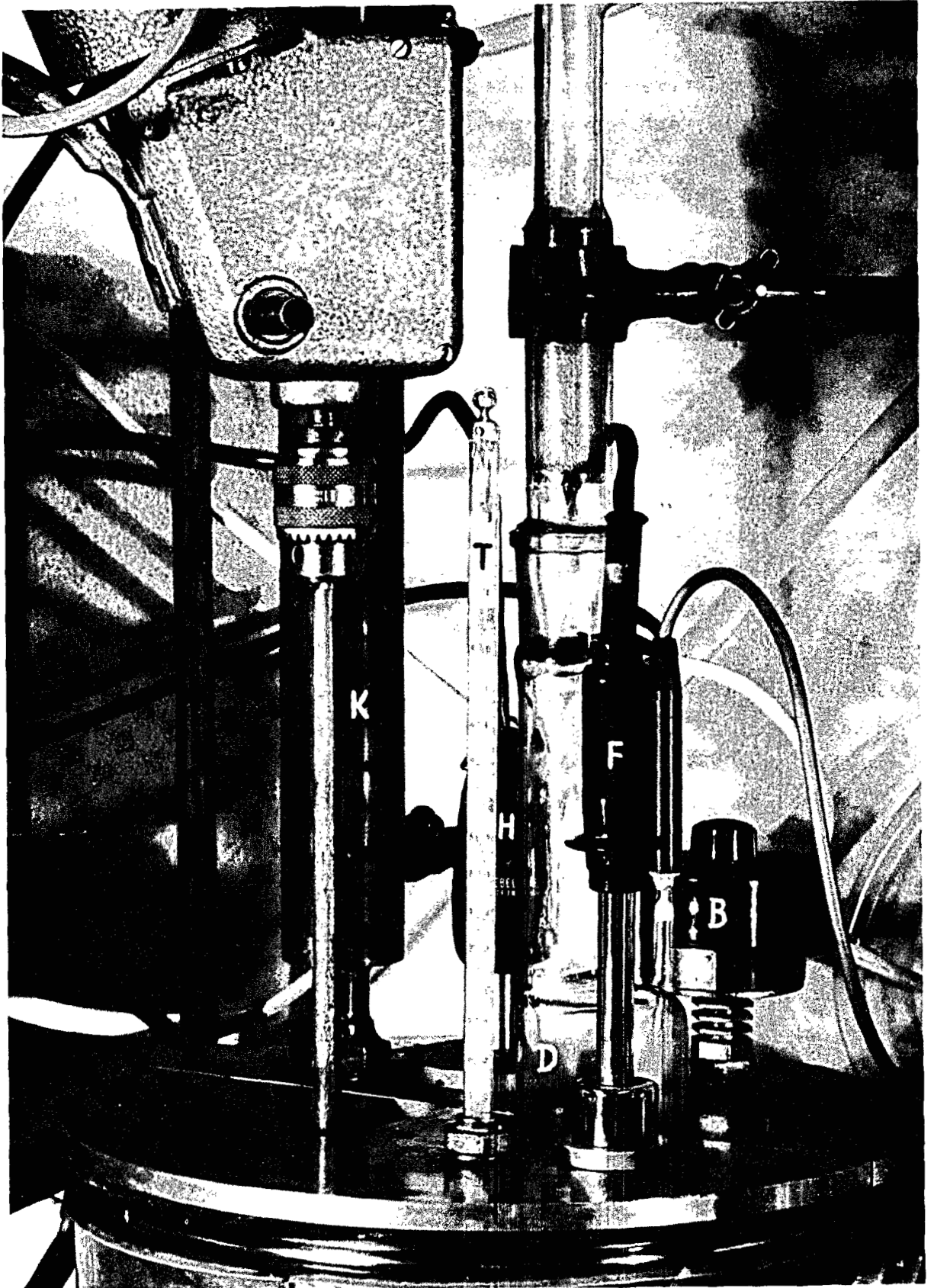


Abb.5: Thermostat mit Probengefäß

turen über den ganzen Variationsbereich verzichtet. Die Temperaturen unterhalb Raumtemperatur werden als Fixpunkte kryohydratischer Lösungen gewählt *, während der Bereich von $+20^{\circ}\text{C}$ bis 250°C durch thermostatisierte Aufheizung eines "Ucon"-Bades realisiert wird. Im ersten Fall erübrigt sich eine Regelung der Temperatur, wenn das Badvolumen eine hinreichend große Wärmekapazität besitzt (verwendet wurde ein 14 l Dewargefäß (D)) und für eine gute Durchmischung der Lösungen gesorgt wird. Für höhere Temperaturen ist jedoch eine Thermostatisierung der Badflüssigkeit durch dosiertes Aufheizen nicht zu umgehen. Als Temperaturfühler (F) dient ein Halbleiter (Thermistor), der über eine Widerstandsbrückenschaltung eine Heizung (H) steuert. Unter den gegebenen Voraussetzungen läßt sich damit leicht eine Temperaturkonstanz von $\pm 0.01^{\circ}\text{C}$ einhalten, was für die hier durchgeführten Untersuchungen völlig ausreicht.

Auch hier waren Vorkehrungen zu treffen, die einen wartungslosen Dauerbetrieb zulassen. Zusätzlich zur Thermistorregelung wurde ein Bimetallschalter (B) in die Anordnung eingebaut, der bei Überschreiten einer Maximaltemperatur von $+300^{\circ}\text{C}$ (Sdpkt. der Badflüssigkeit) die gesamte Anlage abschaltet. Ein Abfallrelais verhindert eine neuerliche Einschaltung der Heizung, da schon das einmalige Erreichen dieser Temperatur auf eine ernste Störung des Regelsystems hinweist. Ungewollte Konvektionsströmungen werden durch ein stufenlos regulierbares Rührwerk (R) unterbunden. Bei einem Betrieb mit Temperaturen nahe dem Siedepunkt der Badflüssigkeit werden die entstehenden Dämpfe über einen Rückflußkühler (K) in die freie Atmosphäre geleitet.

Eine unverfälschte Temperaturbestimmung der im Vakuum befindlichen Proben wird durch eine direkte thermoelektrische Messung an der Probenoberfläche erreicht. Die Proben Temperaturen werden mit einem

* Verwendete Bäder:

- 183 $^{\circ}\text{C}$	flüssige Luft
-21.6 $^{\circ}\text{C}$	$\text{NaCl} + \text{H}_2\text{O} + \text{Trockeneis}$
0 $^{\circ}\text{C}$	$\text{H}_2\text{O} + \text{Eis}$
0 $^{\circ}\text{C}$ bis $+250^{\circ}\text{C}$	"Ucon"-Bad (Sdpkt. 300°C)

Linien-schreiber fortlaufend registriert. Die Temperaturkontrolle der Badflüssigkeit erfolgt in der gleichen Weise und zusätzlich mit einem Präzisionsthermometer (T).

III.6 Elektronenmikroskopie

Die theoretische Betrachtung einer bestrahlungsinduzierten Oberflächeneinebnung zeigt, daß mit sinnvollen Versuchszeiten bei Raumtemperatur ein Effekt überhaupt nur dann erwartet werden kann, wenn der Abstand benachbarter Rauigkeiten 5000 \AA nicht wesentlich übersteigt /3/4/. Mit diesen Größenordnungen der Meßobjekte ist das Auflösungsvermögen eines Lichtmikroskopes bereits unterschritten, so daß man zu elektronenmikroskopischen Untersuchungsmethoden übergehen muß. Hier stehen Vergrößerungsmaßstäbe zur Verfügung, die auch submikroskopische Glättungen einer rauhen Oberfläche in allen Zwischenstadien erkennbar werden lassen.

Für die hier geführten Untersuchungen wurden die Geräte "Siemens Elmiskop I" und "Siemens ÜM 100" eingesetzt. Ein Teil der orientierenden Aufnahmen entstanden in einem Mikroskop "AEG - Zeiss EM 8".

III.6.1 Abdruckverfahren

Literatur /17/18/

Abgesehen von einigen Reflexionsmikroskopen, deren Auflösungsvermögen und Maximalvergrößerung nicht sehr hoch liegt, ist man bei der elektronenmikroskopischen Betrachtung von Oberflächen massiver Materialien stets darauf angewiesen, einen für Elektronen "durchsichtigen" Abdruck (Replika) vom Objekt herzustellen. Dabei unterscheidet man grundsätzlich ein- und zweistufige Verfahren.

Beim einstufigen "Filmabdruck" wird die Probenoberfläche mit einer dünnen Kunststoff- oder Aufdampfschicht überzogen, die nach ihrer Abtrennung direkt im Mikroskop in Durchstrahlung untersucht wird. Diese Methode zeichnet sich durch eine besonders gute

Abbildungstreue aus, bringt jedoch den Nachteil mit sich, daß bei der Ablösung der Replika meistens das Objekt zerstört werden muß. Serienaufnahmen und verworfene Reinigungsabdrücke sind nicht oder nur sehr schwer möglich, worauf aber gerade bei einer möglichen radioaktiven Verseuchung der Proben nicht verzichtet werden kann.

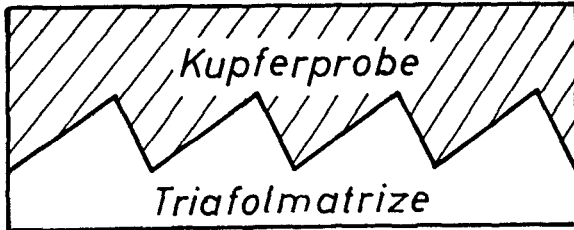
Bei zweistufigen "Matrizenabdrücken" wird erst eine sehr dicke (Kunststoff-) Schicht aufgebracht, die nach dem Abtrennen auf der, dem Objekt zugewandten Seite, ein negatives Oberflächenrelief der Probe zeigt (Täler sind jetzt Hügel und umgekehrt!), von dem wiederum Filmabdrücke angefertigt werden können. Ein in zwei Stufen gewonnener Abdruck erhöht natürlich die Zahl der Wiedergabefehler, jedoch sind diese im Vergleich zu den beobachteten Einebnungseffekten zu vernachlässigen. Es wurde daher für dieses Verfahren entschieden, das nachfolgend, in geringer Abänderung, als "Triafol-Abdruckverfahren nach Pfisterer" beschrieben ist (sh. Abb. 6a-d).

Ein Stück "Triafol"-Kunststoffolie* wird mit einem Tropfen einer Lösung von Triafol in Methylacetat benetzt und auf die Probenoberfläche leicht angedrückt. Nach einer Trockenzeit von drei bis fünf Minuten kann man diese Folie vom Objekt abziehen und erhält damit ein Oberflächennegativ, das selbst in geringsten Details eine erstaunlich gute Wiedergabe des Originals zeigt. Da hierbei die Probe völlig unbeschädigt bleibt, lassen sich leicht mehrere Reinigungsabdrücke herstellen, bis keine meßbaren α -Aktivitäten mehr auf der Matrize nachzuweisen sind. Während dieser erste Arbeitgang in einer glove-box auszuführen ist, kann die weitere Verarbeitung der "sauberen" Oberflächenmatrize ohne besondere Vorsichtsmaßnahmen erfolgen. Im Hochvakuum wird nun unter einem Winkel von 90° eine gleichmäßige Kohleschicht von etwa 100 \AA Dicke aufgedampft. Die Kontrastwirkung dieses Filmes wird durch eine anschließende Schrägbeschattung mit Platin unter einem Winkel von 45° noch erhöht.

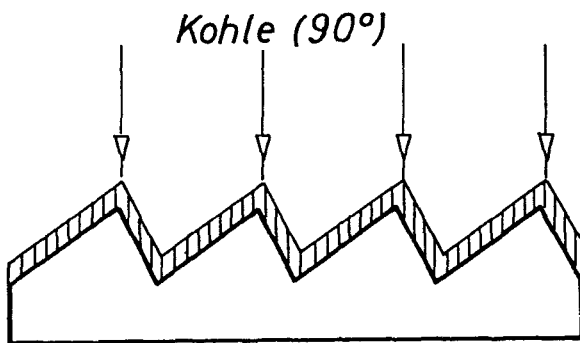
* Acetobutyratfolie Triafol BN, 0.1 mm dick

Hersteller: Farbenfabrik Bayer, Leverkusen, Werk Dormagen

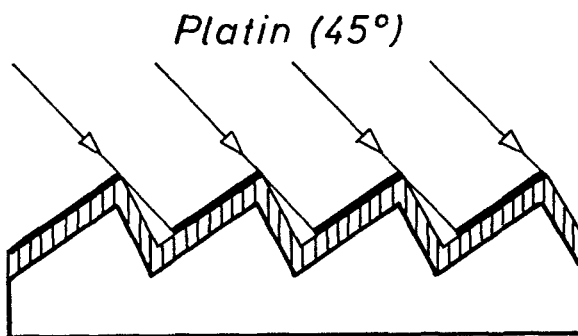
Abb.6: TRIAFOL-ABDRUCKVERFAHREN



Herstellung der Matrize



Kohlebedampfung



Schrägbedampfung
mit Platin

Auflösung der Matrize



Schichtdickenprofil in
Durchstrahlungsrichtung

Die so behandelte Abdruckmatrize wird in quadratische Stücke von der Größe der Objektträger zerteilt und in einem Methylacetatbad aufgelöst. Die verbleibenden Kohlefilme werden nachgewaschen und in einem, mit einem Tropfen Aceton entspannten, Wasserbad auf Trägernetze aufgeschwommen.

Nach diesem Verfahren hergestellte Filme zeigen keine Eigenstruktur. Eine geringfügige Zeichnung des Untergrundes durch die Platin-Beschattung fällt in die Grenzen des Auflösungsvermögens. Bei senkrechter Durchstrahlung des in sich unebenen Probenabdruckes ergeben sich unterschiedliche Durchdringungsstärken für die abbildenden Elektronen und damit in der Projektion zweidimensionale Bilder der Oberfläche.

III.6.2 Vergrößerungsmaßstab, Vergrößerungsfehler

Für Übersichtsaufnahmen wurde mit Linearvergrößerungen von 1:5000 und 1:10000 gearbeitet, bei den Aufnahmen für die Meßproben durchweg mit einem Abbildungsmaßstab von 1:20000. Die elektronenmikroskopischen Aufnahmen wurden lichtoptisch 1:3 nachvergrößert. Damit ergibt sich eine Gesamtvergrößerung für alle ausgewerteten Oberflächen von 1:60000 (1 cm im Bild = 1667 \AA am Objekt).

Während sich eine lichtoptische Vergrößerung bei einiger Sorgfalt sehr genau durchführen läßt (eine evtl. Schrumpfung der Abbildungen beim Trocknen um 1 mm ergibt einen Fehler unter 1 % in der Auswertung), muß man für die Vergrößerung im Elektronenmikroskop mit Abweichungen von $\pm 5 \%$ von den Angaben des Herstellers rechnen.* Damit ergeben sich mit Gesamtvergrößerungen von minimal 1:57000 und maximal 1:63000 Fehlergrenzen, die in späteren Auswertungen berücksichtigt wurden. (sh. Abschn. IV)

* private Mitteilung aus der Firma Siemens

III.6.3 Höhenbestimmung aus der Schrägbeschattung

Literatur
/17/19/20/

Bei einer reinen Schrägbedampfung elektronenmikroskopischer Objekte, wie sie aus Gründen einer möglichst genauen Auswertung hier angewendet wurde, besteht die bekannte Schwierigkeit, zu entscheiden, ob eine Struktur aus einer Fläche heraussteht oder in diese hineinragt (man erhält den umgekehrt plastischen Eindruck, wenn man ein Bild auf den Kopf stellt). Bei dem hier auftretenden Oberflächenprofil läßt sich, bei genauer Kenntnis der Beschattungsgeometrie, diese Frage jedoch verhältnismäßig leicht klären und gleichzeitig eine Höhenbestimmung der Rauigkeiten durchführen.

Die Triafolmatrizen werden vor der Beschattung lichtmikroskopisch so justiert, daß die Bedampfung senkrecht auf die Bergzüge der Oberflächenstruktur trifft. (Eine nachträgliche Kontrolle der Beschattungsrichtung ist im Elektronenmikroskop am Schattenwurf von Schmutzteilchen und Unregelmäßigkeiten in den schattenwerfenden Konturen möglich). Bei einem genügend großen Abstand (L) der Bedampfungsquelle vom Objekt, verglichen mit dem Probendurchmesser, kann die Beschattung als parallel angesehen werden. Mit einem Bedampfungswinkel von 45° entspricht dann gerade die "Schattenlänge" (l) der Höhe (h) der Unebenheiten. Hierbei muß man sich vergegenwärtigen, daß ein Matrizenabdruck ein Oberflächennegativ darstellt (sh. Abschn. III.6.1) und somit eine Umkehrung der Aussagen verlangt. Täler werden als Hügel dargestellt und umgekehrt.

Aus geometrischen Überlegungen ist eine definite Schattengrenze nur denkbar bis zu einem bestimmten Grenzwinkel der, der Beschattung abgewendeten, Bergflanken, entsprechend dem Bedampfungswinkel. Eine Aussage über die Höhe der Rauigkeiten unterhalb dieses Grenzwinkels ist mit einer gewissen Beschränkung dann möglich, wenn man die der Beschattung zugekehrten Flanken betrachtet. Aus Aufnahmen mit einem eindeutigen Schattenwurf ist bekannt, daß sich Schwärzungsunterschiede unterscheiden lassen, die von Winkelabweichungen von 5° bis 10° herühren. Die intensivste Schwärzung tritt bei einem flächennormalen Einfall der Bedampfung auf, also bei einem Flankenwinkel von 45° .

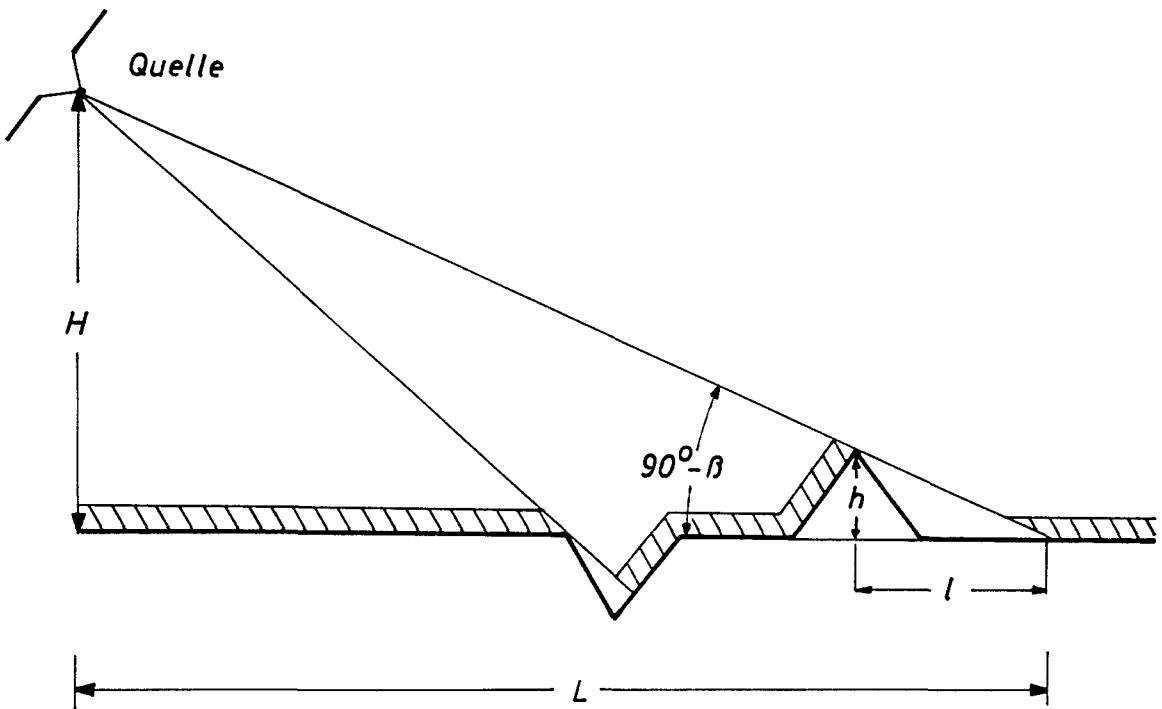


Abbildung 7: Schattenwurf bei Schrägbedampfung

Scheidet man alle von der maximalen Schwärzung (um mehr als 5°) abweichenden Flanken von der Auswertung aus, so erhält man auch mit der Projektion der bedampften Flanke, in diesen Grenzen, eine Höhenangabe für die Rauigkeiten, die mit einem maximalen Fehler von 10-20 % behaftet sein kann, in Richtung einer zu klein gemessenen Höhe. Dadurch aber würde nur eine zu große Einebnung vorgetäuscht, die bei einer späteren Aussage über den bei der Einebnung tätigen Mechanismus keine Fehlentscheidung bewirken kann.

Es wird untersucht, welche Winkeldifferenz durch unterschiedliche Schwärzung festgestellt werden kann. a ist die Projektion einer beschatteten, b die Projektion der, der Beschattung abgekehrten, Flanke. Die folgenden Projektionsverhältnisse gehören jeweils zu gerade noch voneinander unterscheidbaren Schwärzungen der bedampften

Flanke. Bei einer Beschattung unter einem Winkel von 45° ist b =Höhe der Rauhigkeit. Damit ist der Flankenwinkel der beschatteten Flanke bestimmt aus $\text{tg}\alpha=h/a$ und somit auch die Winkeldifferenz, die den beobachteten Schwärzungsunterschied bewirkt.

$b=h$	a	$\text{tg}\alpha$	α°	$\Delta\alpha^\circ$
6,5	2,3	2,825	70,5	8,1
6,5	3,4	1,913	62,4	
5,0	4,0	1,250	51,4	6,4
6,0	6,0	1,000	45,0	
6,0	4,0	1,500	56,3	9,6
5,3	5,0	1,060	46,7	
5,1	3,9	1,308	52,6	11,9
5,7	3,2	1,781	60,7	
4,0	2,2	1,819	61,2	16,2
3,0	3,0	1,000	45,0	
6,2	2,7	2,297	66,5	3,1
6,0	3,0	2,000	63,4	

Der durchschnittliche Wert dieser Messungen ergibt 10° . Alle nicht von der maximalen Schwärzung (bei flächennormalem Einfall der Bedampfung) unterscheidbaren Schwärzungen müssen demnach zu Flankenwinkeln gehören, die innerhalb eines Winkelbereiches von $45^\circ \pm 10^\circ$ liegen, für den die Projektion der geschwärzten Flanke gleich ist der Höhe der Oberflächenrauheit.

IV. Auswertung der Experimente

IV.1 statistische Auswertung der Meßergebnisse

Da es sich bei den verwendeten Proben um Realkristalle handelt, kann man keine über den ganzen Beobachtungsbereich ungestörte Oberflächenstruktur erwarten. Es werden daher nur solche Oberflächenrillen ausgewertet, die bezüglich ihrer benachbarten Rillen einen wohldefinierten parallelen Abstand aufweisen. Aber auch innerhalb dieser Teilbereiche schwankt die Tiefe H_0 bzw. H der Rillen vor und nach einer Einebnung. Es werden daher in Abständen von ca. 1000 \AA Profilschnitte senkrecht zur Längsachse der Vertiefungen gelegt. An diesen Stellen wird die Tiefe nach dem in Kapitel III.6.3 beschriebenen Verfahren ermittelt. Über jeweils alle, zu einer bestimmten "Wellenlänge" λ (senkrechter Rillenabstand) gehörigen, Tiefen wird eine Statistik aufgestellt. Der häufigste H_0 -bzw. H -Wert wird als repräsentativ für die gesamte Rillenlänge angesehen und das angegebene Einebnungsverhältnis H/H_0 bezieht sich auf diese häufigsten Werte. Trotz der großen Zahl von über 2000 Einzelmessungen ergibt sich auch hier, wie bei jeglicher statistischen Auswertung, eine gewisse Schwankungsbreite von Werten, die noch zulässig sind. Man kann dieser Unsicherheit in der Zuordnung von H_0 und H begegnen, wenn man nur einen hinreichend großen Fehler zuläßt und in der nachfolgenden Auswertung auch beachtet. Hier werden die Grenzen für den Quotienten H/H_0 so definiert, daß jeweils der größtmögliche H_0 -Wert mit dem kleinsten H -Wert kombiniert wird und umgekehrt, also gebildet wird

$$(H \pm \Delta H) / (H_0 \mp \Delta H_0)$$

Diese Forderung ist sicher zu scharf gestellt, denn eine derart extreme Kombination der Meßgrößen ist nicht sehr wahrscheinlich. Sie wird jedoch im Hinblick auf die nicht immer sehr gute Statistik der Messungen für die weitere Auswertung beibehalten.

Es zeigt sich bereits hier eine gewisse Beschränkung des beobachtbaren Bereiches durch die vorgegebenen experimentellen Bedingungen. Die Zahl der für eine Auswertung verfügbaren verschiedenen Wellenlängen λ ist beschränkt. Sehr geringe und auch sehr große Einebnungen sind nur mit einem großen Fehler zu bestimmen - dies liegt einerseits an der Unsicherheit bei der Quotientenbildung zweier fast gleicher Größen bei einer vorgegebenen Meßgenauigkeit, andererseits an der Methode der Tiefenbestimmung, die nur bis zu einer unteren Schranke genau arbeitet (sh. Abschn. III.6.3). Sehr kleine Wellenlängen entziehen sich, speziell bei einer Bestrahlung, wegen ihrer höheren Einebnungsgeschwindigkeit, sehr schnell einer definitiven Beobachtung. Für verschiedene Versuche wird man sich daher mit der Auswertung nur zweier verschiedener λ begnügen und eine größere Ungenauigkeit mit einem größeren zulässigen Fehler ausgleichen müssen. Dieses Verfahren erscheint jedoch vertretbar, nachdem an anderen ähnlichen Messungen die Richtigkeit des vorhergesagten Verhaltens einwandfrei bewiesen wurde. (bestrahlungsstimulierte Einebnungen bei 323°K ($1,3 \times 10^{16} \alpha/\text{cm}^2$) und 296°K ($6,9 \times 10^{15} \alpha/\text{cm}^2$))

Die anschließende Tabelle IV.1-I gibt die Statistik der Tiefenmessungen wieder, über eine Vielzahl von Aufnahmen, von denen jeweils typische Oberflächen in Kapitel VIII wiedergegeben sind. Sie ist geordnet nach dem jeweiligen gegenseitigen Abstand λ der Oberflächenrillen. Die H_0 - bzw. H-Werte sind in willkürlichen Einheiten (mm) angegeben - es interessiert ja hier nur der dimensionslose Quotient H/H_0 ; die Wellenlänge λ bezieht sich auf eine Endvergrößerung der Originaloberflächen von 1/60 000 und ist in mm angegeben, wobei 1 mm des vergrößerten Oberflächenbildes $166,7 \text{ \AA}$ im Original entspricht.

IV.2 Fourieranalyse des Oberflächenprofiles

IV.2.1 Bestimmung der Korrekturfaktoren

Die im vorigen Abschnitt statistisch ermittelten Tiefen H_0 und H beziehen sich auf eine zwar annähernd periodische, aber nicht-sinusförmige Oberflächenstruktur. Für einen Vergleich mit der in Kapitel II beschriebenen Theorie der Oberflächeneinebnung muß dieses Profil durch ein mathematisch auswertbares approximiert werden. Für die Berechnung wird vorausgesetzt, daß die allein zu berücksichtigende Änderung der Amplitude von nur einer Grundwellenlänge besorgt wird. Die höheren Harmonischen mit kleineren Wellenlängen werden dabei zuerst und verhältnismäßig rasch abgebaut und verursachen eine erhebliche, in Bezug auf die Theorie irreführende, Tiefenverminderung der Struktur, während die maßgebende Grundwellenlänge nur einen geringen Anteil daran hat. Die beobachtete Einebnung muß daher mit einer Korrektur versehen werden, die sich aus einer Fourierzerlegung des experimentellen Oberflächenprofils herleitet.

Ein, durch keilförmige parallele Oberflächenrillen, dargestelltes Profil nach Abb.2 (Kapitel III.1.3) ist annähernd beschrieben mit

$$x = - H_0 \cdot (d/2\pi + 2/\pi d \sum_n (1/n^2) \cdot (1 - \cos nd) \cos \cdot n \omega y$$

mit $2d =$ Basisbreite des Rillenquerschnittes.

Das Einebnungsverhältnis eines reinen Sinusprofils ist bei Oberflächendiffusion nach Gl.II.1-3 angegeben

$$H/H_0 = \exp (-B \cdot \omega^4 \cdot t) = e^{-\alpha}$$

$$\text{mit } \alpha = B \cdot \omega^4 \cdot t \quad *$$

* Der Exponent $n=4$ in ω^n wird hier dem Experiment vorweggenommen, doch es läßt sich zeigen, daß für einen Exponenten $n=3$ durch eine Fourierkorrektur immer nur Werte $n>3$ erzielt werden, aber niemals der für eine Volumendiffusion geforderte genaue Wert $n=3$ erreicht wird.

Das eingeebnete Profil erhält dann die Form IV.2.1-1

$$x^* = -H_0 \cdot (d/2\pi + 2e^{-\alpha}/\pi d \cdot \sum_n \cos n\omega y \cdot (1/n^2) \cdot (1 - \cos nd) \cdot \exp(-\alpha(n^4 - 1)))$$

Bei der in dieser Arbeit angewendeten Methodik der Auswertung werden die Verhältnisse der Tiefen H_0 und H der Oberflächenstruktur vor und nach einer Einebnung gebildet. Es ist

$$H/H_0 = (x^*_{\max} - x^*_{\min}) / H_0$$

Aus der Fourierzerlegung des eingeebneten Profiles sind die Stellen zu ermitteln, für die x^* einen Maximal- bzw. Minimalwert annimmt. Aus der Bedingung

$$dx^*/d\omega y = 2H_0 e^{-\alpha}/\pi d \cdot \sum_n \sin n\omega y \cdot (1/n) \cdot (1 - \cos nd) \cdot \exp(-\alpha(n^4 - 1)) \equiv 0$$

ergeben sich Nullstellen für $\omega y = 0, \pi, 2\pi, 3\pi, \dots, n\pi$ und damit die extremen Werte für x^* aus Gl. IV.2.1-1

$$x^*_{\max} = -d/2\pi - 2e^{-\alpha}/\pi d \cdot \sum_n (1/n^2) \cdot (-1)^n \cdot (1 - \cos nd) \cdot \exp(-\alpha(n^4 - 1))$$

$$\text{mit } \omega y = \pi, 3\pi, 5\pi, \dots, (2n+1)\pi \text{ und } \cos \omega y = (-1)^n$$

$$x^*_{\min} = -d/2\pi - 2e^{-\alpha}/\pi d \cdot \sum_n (1/n^2) \cdot (1 - \cos nd) \cdot \exp(-\alpha(n^4 - 1))$$

$$\text{mit } \omega y = 0, 2\pi, 4\pi, \dots, 2n\pi \text{ und } \cos \omega y = +1$$

Damit ist das korrigierte Einebnungsverhältnis H/H_0 in seiner allgemeinsten Form angegeben

$$\text{IV.2.1-2 } H/H_0 = 2e^{-\alpha}/\pi d \cdot \sum_n (1/n^2) \cdot (1 - (-1)^n) \cdot (1 - \cos nd) \cdot \exp(-\alpha(n^4 - 1))$$

Alle geradzahligen Glieder dieser alternierenden Reihe verschwinden; außerdem liefern erfahrungsgemäß die experimentellen Größen $\exp(-\alpha(n^4 - 1))$ sehr schnell keinen nennenswerten Beitrag mehr zum

Korrekturfaktor, so daß auch bei sehr geringen Einebnungsgraden, z.B. $H/H_0 = 0,95$, nur die ersten drei Reihenglieder dieser Fourier-Entwicklung berücksichtigt werden müssen. Somit ergibt sich das korrigierte Einebnungsverhältnis

$$\begin{aligned} \text{IV.2.1-2a} \quad H/H_0 &= e^{-\alpha} + (4/\pi d) \cdot (1 - \cos d) \\ &+ (4/9\pi d) \cdot (1 - \cos 3d) \cdot \exp(-80\alpha) \\ &+ (4/25\pi d) \cdot (1 - \cos 5d) \cdot \exp(-624\alpha) \end{aligned}$$

für den experimentellen Bereich dieser Arbeit.

Je schlanker ein Profil bei gleichbleibender Tiefe, d.h., je kleiner d wird, um so größer wird die notwendige Korrektur des Einebnungsgrades. Die am häufigsten beobachteten Teilungsverhältnisse von Rillbreite zur Wellenlänge liegen zwischen 1:1 und 1:2 (sh. auch Abschn. III.6.3). Damit ist $d = \pi/2$ bzw. $d = \pi/3$ und die extremen Korrekturen sind

$$\begin{aligned} \text{IV.2.1-3a} \quad &\text{für } d = \pi/2 \\ H/H_0 &= e^{-\alpha} \cdot \left[8/\pi^2 + (8/9\pi^2) \cdot \exp(-80\alpha) + (8/25\pi^2) \cdot \exp(-624\alpha) \right] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{IV.2.1-3b} \quad &\text{für } d = \pi/3 \\ H/H_0 &= e^{-\alpha} \cdot \left[6/\pi^2 + (24/9\pi^2) \cdot \exp(-80\alpha) + (6/25\pi^2) \cdot \exp(-624\alpha) \right] \end{aligned}$$

Nun ist aber sicher nicht anzunehmen, daß ein experimentell erzeugtes Oberflächenprofil mathematisch spitz ist. Bei einer Verrundung der Profilspitzen, bei gleichbleibendem Teilungsverhältnis, wird der Korrekturbeitrag für die Einebnung, wegen des Fehlens höherer Harmonischer, wesentlich geringer. Als extremer Fall soll eine 10 %-ige Abflachung der Oberflächenstruktur zulässig sein.* Mit dem größeren Teilungsverhältnis 1:1 ergibt sich dann die geringste Korrektur für den Einebnungsgrad.

* Unter den gegebenen Verhältnissen entspricht dies einem Krümmungsradius von ca. 150 Å. Eine solche Verrundung sollte elektronenmikroskopisch schon sichtbar sein, wird aber nicht beobachtet. Der damit angegebene Fehler für den Einebnungsgrad ist daher sicher sehr weit angenommen.

Unter Berücksichtigung auch noch dieses Falles sind die äußersten Grenzen, innerhalb derer ein korrigiertes Einebnungsverhältnis H/H_0 mit Sicherheit zu suchen ist, anzugeben

$$\text{IV.2.1-4a } H/H_0 = e^{-\alpha} \cdot [0,8842 + 0,0864\exp(-80\alpha) + 0,0288\exp(-624\alpha)]$$

$$\text{IV.2.1-4b } H/H_0 = e^{-\alpha} \cdot [0,6220 + 0,3333\exp(-80\alpha) + 0,0447\exp(-624\alpha)]$$

Die Koeffizienten dieser Reihenentwicklungen bis zum 6-ten Glied wurden mit einem Rechenschema /21/ gewonnen. Wegen der im allgemeinen etwas besseren Konvergenz solcher abgekürzter Rechenverfahren, gegenüber einer strengen Entwicklung nach Koeffizienten von π , ergibt sich eine Abweichung für sehr geringe Einebnungen ($H/H_0 > 0,95$), die sich aber ohnehin einer exakten Beobachtung entziehen.

IV.2.2 Wichtung der Meßgrößen

Die experimentelle Bestimmung des funktionell wichtigen Exponenten "n" für die Abhängigkeit der Einebnungsgeschwindigkeit vom gegenseitigen Abstand der Oberflächenrillen erfolgt aus Gl.II.1-3, die in ihrer doppelt logarithmischen Form die Gleichung einer Geraden darstellt, deren Neigung mit der gesuchten Größe n identisch ist. Da $H/H_0 > 1$ und somit $\ln(H/H_0)$ immer negativ ist, wird mit den reziproken Größen $\ln(H_0/H)$ gerechnet. An einem nicht-sinusförmigen Profil wird dann ein Wert $\ln \ln(e^\alpha/F)$ beobachtet, während eine Fourierzerlegung der Oberflächenstruktur den wahren Wert $\ln \ln e^\alpha$ liefert.

Die Unsicherheit in der statistischen Ermittlung der Größen H_0 und H bedingt einen Fehler

$$\Delta_S (\ln \ln(H_0/H)) = \ln \ln(H_0 + \Delta H_0 / H - \Delta H) - \ln \ln(H_0 - \Delta H_0 / H + \Delta H)$$

Hinzu kommt nun ein Fehler, der sich aus der Unsicherheit der Fourierzerlegung der Oberflächenstruktur ergibt. Er ist grundsätzlich unabhängig vom statistischen Fehler und wird gefunden, indem die ent-

sprechenden Fourier-korrigierten Größen für Δ_S an den profilbedingten Grenzen in einer Darstellung von $\ln \ln e^\alpha = f(\ln \ln(e^\alpha/F))$ aufgesucht werden. Dadurch ergibt sich der Gesamtfehler einer Meßgröße

$$\Delta_{S+F}(\ln \ln(H_o/H)) =$$

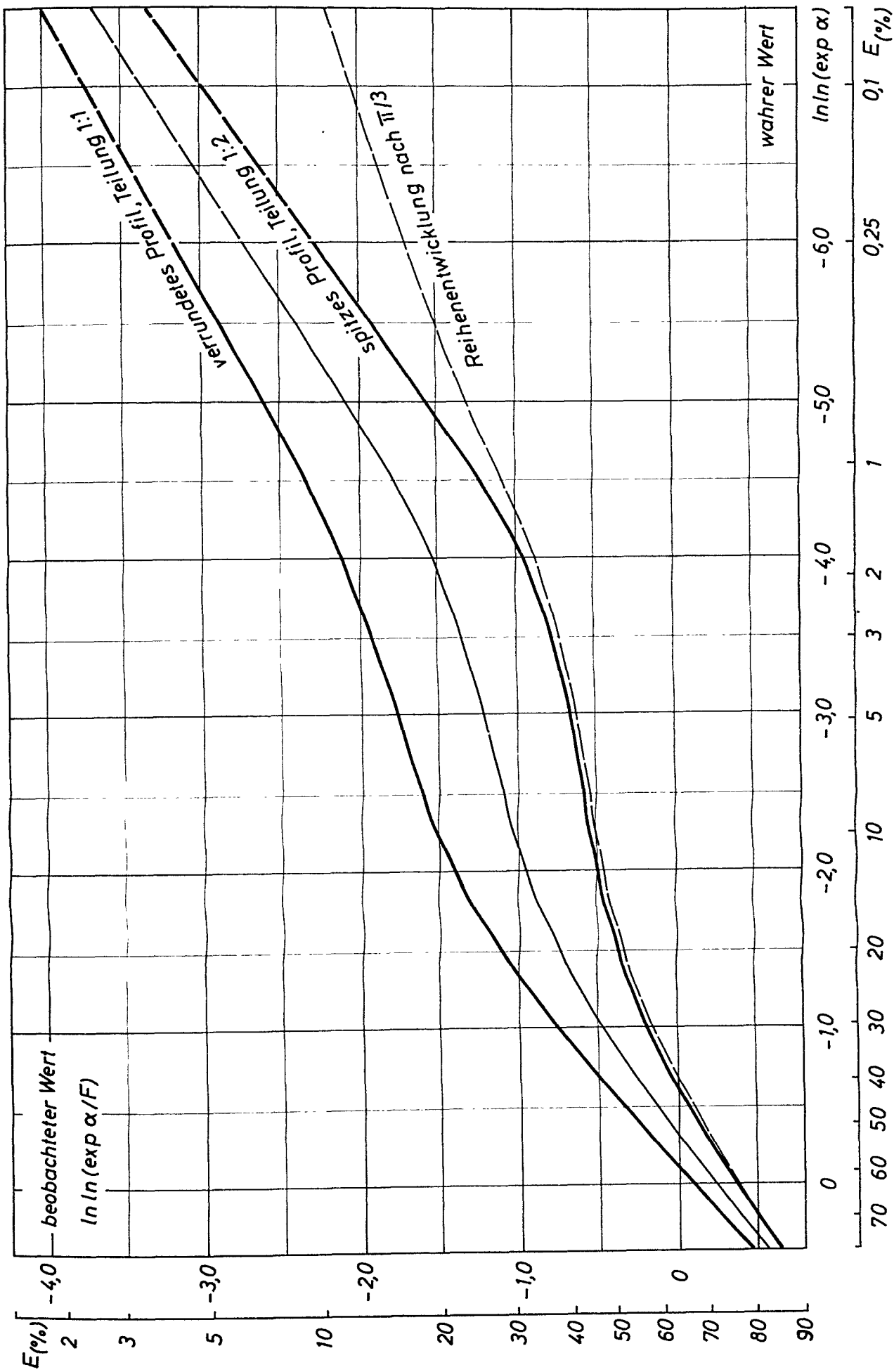
$\ln \ln(H_o + \Delta H_o / H - \Delta H)$ korrigiert für ein Profil nach Gl.IV.2.1-4a

- $\ln \ln(H_o - \Delta H_o / H + \Delta H)$ korrigiert für ein Profil nach Gl.IV.2.1-4b

Der reziproke Wert vom Quadrat dieses Fehlers wird einer Messung als Gewicht $g_i = 1/(\Delta_{S+F})^2$ beigeordnet.

Für geringe Einebnungen ist die Fourierkorrektur erheblich von der Oberflächenstruktur abhängig. Dadurch erhalten solche Messungen ein geringes Gewicht, gegenüber Messungen einer großen Einebnung, bei der sich das Profil schon sehr stark einer reinen Sinusform genähert hat. Eine sicher zu erwartende Einengung des profilbedingten Fehlers in Richtung einer Einebnung Null vollzieht sich im logarithmischen Maßstab und tritt merklich erst bei Einebnungsgraden auf, die außerhalb der Meßgenauigkeit liegen.

Dieses Verhalten für das Gewicht einer Messung wird in der Tat beobachtet und ist in Abb.8 dargestellt. Die nachfolgende Tabelle Tab.IV.2-I enthält die Meßgrößen mit sämtlichen statistischen und profilbedingten Korrekturen, bezogen auf einen häufigsten statistischen Wert H_o/H und ein mittleres idealisiertes Profil, das zwischen den in Kapitel IV.2.1 ermittelten Profilgrenzen angenommen wird.



Tab. IV-2-1	statistische Originalmeßwerte										statistischer Fehler				Fourier - Korrektur				Gewicht	
	thermisch aktivierte Einebnung					bestrahlungsstimulierte Einebnung														
	483 °K					513 °K														
	λ^* (mm)	λ (cm)	$\ln \omega$	H_0	H	$\ln \ln \frac{H_0}{H}$	$H_0 \pm \Delta H_0$	$H \pm \Delta H$	$\ln \ln \frac{H_0 \pm \Delta H_0}{H \pm \Delta H}$	$\ln \ln \frac{H_0}{H}$	min.	max.	$\Delta S+F$	$g_i = \frac{1}{(\Delta S+F)^2}$						
	12	$2,0 \times 10^{-5}$	12,6575	3,1	2,2	-1,070	3,3 2,9	1,8 2,4	-0,500 -1,763	-2,28	-0,70	-5,26	4,56	0,048091						
	18	$3,0 \times 10^{-5}$	12,2520	3,6	2,9	-1,531	3,8 3,4	2,8 3,3	-1,104 -3,513	-3,98	-1,52	-7,70	6,18	0,026183						
	24	$4,0 \times 10^{-5}$	11,9642	4,6	4,1	-2,162	5,0 4,3	3,5 4,2	-1,031 -3,751	-5,07	-1,38	-8,00	6,62	0,022818						
	18	$3,0 \times 10^{-5}$	12,2520	3,0	2,3	-1,324	3,3 2,8	2,0 2,4	-0,692 -1,871	-3,38	-0,94	-5,42	4,48	0,049824						
	24	$4,0 \times 10^{-5}$	11,9642	4,3	3,7	-1,895	5,0 4,2	3,3 4,1	-0,878 -3,721	-4,64	-1,18	-8,00	6,82	0,021499						
	30	$5,0 \times 10^{-5}$	11,7412	4,5	4,1	-2,375	5,1 4,3	3,9 4,2	-1,351 -3,751	-5,42	-1,82	-8,05	6,23	0,025764						
	18	$3,0 \times 10^{-5}$	12,2520	4,5	2,4	-0,4643	5,0 3,5	1,7 3,3	+0,076 -2,835	-1,02	-0,03	-6,78	6,75	0,021948						
	24	$4,0 \times 10^{-5}$	11,9642	5,1	3,5	-0,9768	5,5 4,8	2,9 4,0	-0,446 -1,702	-2,08	-0,65	-5,16	4,51	0,049164						
	30	$5,0 \times 10^{-5}$	11,7412	6,0	4,5	-1,245	7,0 5,2	3,8 4,8	-0,493 -2,529	-3,08	-0,67	-6,36	5,69	0,030887						
	18	$3,0 \times 10^{-5}$	12,2520	4,5	3,0	-0,9030	5,0 3,8	2,6 3,5	-0,425 -2,498	-1,95	-0,62	-6,31	5,69	0,030887						
	24	$4,0 \times 10^{-5}$	11,9642	5,1	3,9	-1,316	5,5 4,8	3,5 4,4	-0,794 -2,442	-3,28	-1,07	-6,23	5,16	0,037557						
	30	$5,0 \times 10^{-5}$	11,7412	6,0	3,2	-0,4640	7,0 5,2	2,5 3,7	+0,029 -1,077	-1,02	-0,09	-4,24	4,15	0,058064						
	24	$4,0 \times 10^{-5}$	11,9642	5,1	1,5	+0,2020	5,5 4,8	0,9 2,1	+0,593 -0,190	-0,03	+0,53	-1,04	1,57	0,405696						

IV.3 Bestimmung des Exponenten "n"

IV.3.1 Ausgleichsrechnung

Die Bestimmung der Größe n in der Abhängigkeit $dx/dt = f(n)$ wird mit Hilfe einer Ausgleichsrechnung vorgenommen /22/. Für $(t, T, \phi_0) = \text{const.}$ ist nach Gl.II.1-3a ein funktioneller Zusammenhang angegeben

$$\ln \ln(H_0/H) - n \cdot \ln \omega - \ln K = 0$$

oder in vereinfachter Schreibweise

$$y - n \cdot x - A = 0$$

Dies ist die Gleichung einer Geraden mit einer Neigung n, die für alle Wertepaare (x_i, y_i) erfüllt sein muß. Läßt man für diese Werte einen Fehler zu

$$y_i - n \cdot x_i - A = v_i$$

so hat man für die Bestimmung von n und A die Bedingung, daß die Summe der Fehlerquadrate einen Minimalwert annimmt:

$$\text{IV.3.1-1a} \quad \sum_i (y_i - n \cdot x_i - A)^2 = \text{Minimum}$$

Die Konstante A enthält zwar nicht völlig fehlerfreie Größen, doch sind die hierin enthaltenen Unsicherheiten (Atomvolumen, Temperaturungenauigkeit u.a.) unabhängig vom Rillenabstand und der Einebnung der Oberflächenstruktur, so daß sie das Verhalten $E = f(\omega^n)$ nicht beeinflussen. Anders sind die y_i -Werte zu betrachten, die bei vorgegebenen Größen x_i mit einem Meßfehler behaftet und mit einem individuellen Gewicht g_i versehen sind.

Die Bedingungsgleichung für eine Ausgleichsgerade mit einem geringsten Fehler bezüglich der Punkte (x_i, y_i) lautet dann

$$\text{IV.3.1-1} \quad \sum_i g_i ((y_i - n \cdot x_i - A)^2) = \text{Minimum}$$

und ist erfüllt, wenn die partiellen Ableitungen der Summe nach n und A verschwinden.

$$\partial / \partial n \sum_i g_i ((y_i - n \cdot x_i - A)^2) = - 2 \sum_i g_i \cdot x_i (y_i - n \cdot x_i - A) = 0$$

$$\partial / \partial A \sum_i g_i ((y_i - n \cdot x_i - A)^2) = - 2 \sum_i g_i (y_i - n \cdot x_i - A) = 0$$

Damit ist ein System von zwei Gleichungen mit zwei Unbekannten gegeben

$$\sum_i g_i \cdot x_i \cdot y_i - n \sum_i g_i \cdot x_i^2 - A \sum_i g_i \cdot x_i = 0$$

$$\sum_i g_i \cdot y_i - n \sum_i g_i \cdot x_i - A \sum_i g_i = 0$$

mit den Lösungen

$$n = \frac{\sum_i g_i \cdot \sum_i g_i x_i y_i - \sum_i g_i y_i \cdot \sum_i g_i x_i}{\sum_i g_i \cdot \sum_i g_i x_i^2 - (\sum_i g_i x_i)^2}$$

IV.3.1-2

$$A = \frac{\sum_i g_i x_i^2 \cdot \sum_i g_i y_i - \sum_i g_i x_i \cdot \sum_i g_i x_i y_i}{\sum_i g_i \cdot \sum_i g_i x_i^2 - (\sum_i g_i x_i)^2}$$

Die Anwendung dieser Ausgleichsformeln erfordert die Bestimmung des Einebnungsgrades für mindestens drei verschiedene Wellenlängen. Für einige Messungen waren nur zwei Wellenlängen auswertbar. Für eine quantitative Aussage auch über diese Experimente muß die Kenntnis des Exponenten $n=4$ vorausgesetzt werden.* Die Minimalbedingung Gl.IV.3.1-1 reduziert sich dann auf die ersten Summenglieder

$$g_1((y_1 - 4x_1 - A)^2) + g_2((y_2 - 4x_2 - A)^2) = F = \text{Minimum}$$

* Diese Voraussetzung ist zulässig, nachdem $n=4$ an anderen Messungen zuvor bewiesen wurde.

Die partielle Ableitung der Summanden nach A verschwindet. Es ist

$$\partial F / \partial A = -2g_1(y_1 - 4x_1 - A) - 2g_2(y_2 - 4x_2 - A) = 0$$

mit der Lösung

$$A = [g_1(y_1 - 4x_1) + g_2(y_2 - 4x_2)] \cdot (1/(g_1 + g_2))$$

Eine numerische Bestimmung der Größen n und A aus den Normalgleichungen ist hier rechnerisch nur mit großer Unsicherheit möglich, da der Quotient aus Differenzen nahezu gleicher Größen zu bilden ist. Eine bessere Genauigkeit in der Zahlenrechnung wird durch eine Koordinatentransformation

$$x_i^* = x_i - c$$

erreicht. Die Konstante c wird jeweils als der kleinste Wert in ω einer Meßreihe gewählt. Die Steigung n ist invariant gegen eine solche Transformation; eine reine Verschiebung des Koordinatensystems verändert nicht die Neigung einer Geraden.

Dies gilt aber nicht für den Achsenabschnitt einer Geraden. Aus der transformierten Normalform für A ergibt sich eine ebenfalls transformierte Größe \hat{A}^* , aus der jedoch mit Hilfe der Transformationsgleichung

$$y_i = n(x_i - c) + \hat{A}^*$$

$$\text{mit } A = -c n + \hat{A}^*$$

für $x_i = 0$ die originale Größe A bestimmt werden kann.

IV.3.2 Fehler für den Exponenten "n"

Der Fehler für n und A ist zu bestimmen.

Durch die experimentelle Auswertung stehen i Wertepaare (x_i, y_i) zur Verfügung. Jeder dieser Punkte hat ein individuelles Gewicht g_i und einen Fehler bezüglich der ausgeglichenen Geraden, der durch die Fehlergleichungen

$$v_i = y_i - n \cdot x_i - A$$

gegeben ist. Die Meßgenauigkeit der Auswertung wird berücksichtigt durch den mittleren Fehler der Einzelmessung

$$m = \sqrt{(\mu \sum_i g_i \cdot v_i^2) / (\mu - 2) \cdot \sum_i g_i}$$

mit μ = Anzahl der Meßpunkte i mit verschiedenem Gewicht. Damit ergeben sich Fehler m_n und m_A für die Neigung und den Achsenabschnitt der Ausgleichsgeraden

$$m_n = m \cdot \sqrt{\frac{(\sum g_i)^2}{\mu \cdot (\sum g_i \cdot x_i^2 - (\sum g_i \cdot x_i)^2)}}$$

$$m_A = m \cdot \sqrt{\frac{\sum g_i \cdot x_i^2 \cdot \sum g_i}{\mu \cdot (\sum g_i \cdot x_i^2 - (\sum g_i \cdot x_i)^2)}}$$

wobei die hierin enthaltenen Größen der Forderung $\sum_{i=1}^{\mu} g_i \cdot v_i = 0$ genügen.

Das Fehlerverhalten bezüglich einer Koordinatentransformation ist analog dem Verhalten der Normalgleichungen (Gln. IV.3.1-2). Ein Fehler m_n verändert sich nicht durch eine Parallelverschiebung der Koordinaten.

Für die transformierte Größe $\overset{*}{A}$ ermittelt sich ein Fehler m_A^* . Seine Projektion auf das ursprüngliche Koordinatensystem ergibt den Fehler m_A der untransformierten Größe A , als Differenz der Achsenabschnitte von fehlerhafter und fehlerfreier Geraden an der Stelle $x = 0$.

Achsenabschnitt der fehlerhaften Geraden */ $y_{x=0}^* = A \mp m_A = -cn \mp cm_n + \overset{*}{A} \mp m_A^*$

Achsenabschnitt der fehlerfreien Geraden $y_{x=0} = A = -cn + \overset{*}{A}$

Differenz $m_A = cm_n + m_A^*$

Nach dem Fehlerfortpflanzungsgesetz ist

$$m_A^2 = cm_n^2 + m_A^{*2}$$

Bei den hier auftretenden Fehlern kann jedoch ohne Verfälschung der Ergebnisse vereinfachend mit dem linearen Fehler m_A gerechnet werden.

Für einige Fälle der bestrahlungsstimulierten Einebnung sind aus experimentellen Gründen nur zwei verschiedene Wellenlängen auswertbar (sh. Kap. V). Hier wird $n=4$ aus analogen Experimenten als bewiesen vorausgesetzt. Sicher sind auch diese Messungen nicht fehlerfrei; eine Fehlerrechnung wie zuvor ist jedoch für $\mu = 2$, (m nimmt dann einen unbestimmten Wert an) nicht möglich. Diesen Meßwerten wird der gleiche relative Fehler zugeordnet, der für andere, unter sonst gleichen Bedingungen durchgeführte, Experimente ermittelt wurde.

/ Zu $n \mp m_n$ gehören jeweils die Achsenabschnitte $\overset{}{A} \mp m_A^*$ bzw. $A \mp m_A$, da im vorliegenden Fall $\overset{*}{A}$ bzw. A immer negativ ist.

IV.3.3 numerische Auswertung

IV.3.3.1 thermisch aktivierte Einebnung bei T = 483° K

λ	ϵ_i	x_i	x_i^2	$\epsilon_i x_i$	$\epsilon_i x_i y_i$	$\epsilon_i y_i$	$\epsilon_i x_i^2$
12	0,048091	0,6933	0,4807	0,033341	-0,076018	-0,109647	0,023117
18	0,026183	0,2878	0,0828	0,007535	-0,029991	-0,104208	0,002168
24	0,022818	0	0	0	0	-0,115687	0
Σ	0,097092			0,040876	-0,106009	-0,329542	0,025285

$$(\Sigma \epsilon_i x_i)^2 = 0,001671$$

$$n = \frac{-0,0971 \cdot 0,10601 + 0,04087 \cdot 0,32959}{0,0971 \cdot 0,02529 - 0,001671} = \frac{-0,010293 + 0,013470}{0,002456 - 0,001671} = \frac{0,003177}{0,000785} = 4,05$$

$$A^* = \frac{-0,02529 \cdot 0,32959 + 0,04087 \cdot 0,10601}{N} = \frac{-0,008332 + 0,004333}{N} = \frac{-0,003999}{0,000785} = -5,1$$

$$A = -4,05 \cdot 11,9642 - 5,10 = -53,55$$

Fehlerrechnung:

$$\mu = 3$$

$$\Sigma \epsilon_i v_i = +0,016 \cdot 10^{-3}$$

$$m_n = 0,050 \cdot \sqrt{\frac{0,009427}{0,002355}} = \pm 0,10$$

$$\Sigma \epsilon_i v_i^2 = 8,2048 \cdot 10^{-5}$$

$$m_A^* = 0,050 \cdot \sqrt{\frac{0,002450}{0,002355}} = \pm 0,051$$

$$m = 0,050$$

$$m_A = 11,9642 \cdot 0,10 + 0,051 = \pm 1,25$$

IV.3.3.2 thermisch aktivierte Einebnung bei T = 513° K

λ	g_i	x_i	x_i^2	$g_i x_i$	$g_i x_i y_i$	$g_i y_i$	$g_i x_i^2$
18	0,049824	0,5108	0,2609	0,025450	-0,086021	-0,168405	0,012999
24	0,021499	0,2230	0,0497	0,004794	-0,022245	-0,099755	0,001068
30	0	0	0	0	0	-0,139641	0
<hr/>							
Σ	0,097087			0,030244	-0,108266	-0,407801	0,014067

$$(\Sigma g_i x_i)^2 = 0,000915$$

$$n = \frac{-0,010511 + 0,012333}{0,001366 - 0,000915} = \frac{0,001822}{0,000451} = 4,04$$

$$A = \frac{-0,005736 + 0,003274}{N} = \frac{-0,002462}{0,000451} = -5,46$$

$$A = -4,04 \cdot 11,7412 - 5,46 = -52,89$$

Fehlerrechnung:

$$\mu = 3$$

$$\Sigma g_i v_i = -0,0113 \cdot 10^{-3}$$

$$m_n = 0,0776 \cdot \sqrt{\frac{0,009426}{0,001353}} = \pm 0,20$$

$$\Sigma g_i v_i^2 = 19,5210 \cdot 10^{-5}$$

$$m_A^* = 0,0776 \cdot \sqrt{\frac{0,001366}{0,001353}} = \pm 0,078$$

$$m = 0,0776$$

$$m_A = 11,7412 \cdot 0,20 + 0,078 = \pm 2,42$$

IV.3.3.3 bestrahlungsstimulierte Einebnung bei T = 296° K

λ	ε_i	x_i	x_i^2	$\varepsilon_i x_i$	$\varepsilon_i x_i y_i$	$\varepsilon_i y_i$	$\varepsilon_i x_i^2$
18	0,021948	0,5108	0,2609	0,011211	-0,011435	-0,022387	0,005726
24	0,047164	0,2230	0,0497	0,010963	-0,022808	-0,102261	0,002443
30	0,030887	0	0	0	0	-0,095132	0
Σ	0,101999			0,022174	-0,034239	-0,217780	0,008169

$$(\Sigma \varepsilon_i x_i)^2 = 0,000492$$

$$n = \frac{-0,003492 + 0,004873}{0,000833 - 0,000492} = \frac{0,001381}{0,000341} = 4,044$$

$$A = \frac{-0,001775 + 0,000759}{N} = \frac{-0,001036}{0,000341} = -3,033$$

$$A = 4,044 \cdot 11,7412 - 3,033 = -50,515$$

Fehlerrechnung:

$$\mu = 3$$

$$\Sigma \varepsilon_i v_i = -0,0105 \cdot 10^3$$

$$m_n = 0,0866 \cdot \sqrt{\frac{0,010404}{0,001023}} = \pm 0,28$$

$$\Sigma \varepsilon_i v_i^2 = 25,5250 \cdot 10^{-5}$$

$$m_A^* = 0,0866 \cdot \sqrt{\frac{0,000833}{0,001023}} = \pm 0,078$$

$$m = 0,0866$$

$$m_A = 11,7412 \cdot 0,28 + 0,078 = \pm 3,37$$

IV.4 Bestimmung der Aktivierungsenthalpie " H_v "

IV.4.1 Berechnungsgrundlagen

Ein wesentliches Charakteristikum für die Beurteilung einer Diffusionsreaktion ist ihre Aktivierungsenthalpie. Sie ergibt sich im thermischen Falle als Summe der Bildungsenthalpie für Leerstellen und der Aktivierungsenthalpie für die Wanderung der Leerstellen. Sie kann aus der thermisch aktivierten Oberflächeneinebnung bestimmt werden. In Abschn.II.1 ist dargestellt, daß der gefundene Wert

$H_{v\text{ ofl}} = 1,77\text{ eV}$ zu hoch ist, um bei Raumtemperaturen eine merkliche Diffusion zu ergeben. Wenn im gleichen Temperaturbereich bei einer Bestrahlung dennoch eine erhebliche Oberflächeneinebnung beobachtet wird, so ist dies mit der zusätzlichen, von der thermischen Bildungsenthalpie unabhängigen, strahlungsinduzierten Produktion von Leerstellen zu erklären.* Wirksam für einen Einebnungseffekt ist dann nur die Aktivierungsenthalpie für die Leerstellendiffusion, die auf diese Weise bestimmt werden kann.

Die experimentelle Bestimmung der Aktivierungsenthalpie aus den Gln.II.1-4 bzw. II.2-4 setzt die genaue Kenntnis aller hierin enthaltenen Koeffizienten voraus. Jedoch gelingt es durch die Quotientenbildung zweier beliebiger Einebnungsverhältnisse H_1/H_{O1} und H_2/H_{O2} , die für eine gleiche Wellenlänge λ bei verschiedenen Temperaturen T_1 und T_2 ermittelt wurden, die meisten dieser Koeffizienten für die Berechnung der Aktivierungsenthalpie zu eliminieren.

* Sie ist mit $(1/\alpha I) \cdot (1 - \exp(-\alpha \cdot I \cdot t))$ in der Bilanzgleichung II.2-4 berücksichtigt.

Dann ist

$$H_{v \text{ therm}} = f (\ln \ln H_{O1}/H_1, \ln \ln H_{O2}/H_2; T, t)$$

$$= \frac{R \cdot T_1 \cdot T_2}{T_1 - T_2} \left(\ln \ln H_{O1}/H_1 - \ln \ln H_{O2}/H_2 - \ln \frac{\gamma_1 \cdot T_2 \cdot t_1}{\gamma_2 \cdot T_1 \cdot t_2} \right)$$

für die t h e r m i s c h aktivierte Oberflächeneinebnung. Außer der Gaskonstanten R ist in dieser Gleichung, neben rein experimentellen Größen, nur noch die Oberflächenspannung γ enthalten. Diese ist für Kupfer angegeben /7/ mit

$$\gamma = 1797 - 0,497 \cdot T \text{ dyn/cm}$$

Der Quotient zweier bestrahlungsstimulierter Einebnungsverhältnisse enthält den zusätzlichen Term

$$- \ln \frac{\alpha \cdot I_1 \cdot t_1 - 1 + \exp(-\alpha \cdot I_1 \cdot t_1)}{\alpha \cdot I_2 \cdot t_2 - 1 + \exp(-\alpha \cdot I_2 \cdot t_2)}$$

Bei jeweils gleicher Flächendosis $\bar{\Phi}_0 \cdot t$ entfällt dieses Glied. Es ist dann $t_1 = t_2$ und der zeitliche Einfluß auf die Einebnung im Term $\gamma_1 \cdot T_2 \cdot t_1 / \gamma_2 \cdot T_1 \cdot t_2$ verschwindet ebenfalls. Die Aktivierungsenthalpie für die b e s t r a h l u n g s s t i m u l i e r t e Oberflächeneinebnung ist somit

$$H_{v \text{ rad}} = f (\ln \ln H_{O1}/H_1, \ln \ln H_{O2}/H_2; T)$$

$$= \frac{R \cdot T_1 \cdot T_2}{T_1 - T_2} \left(\ln \ln H_{O1}/H_1 - \ln \ln H_{O2}/H_2 - \ln \frac{\gamma_1 \cdot T_2}{\gamma_2 \cdot T_1} \right)$$

Die Meßgrößen $\ln \ln H_{oi}/H_i$ sind nach Abschn. IV.3.2 mit einem mittleren Fehler

$$m_i = \Delta \ln \ln H_{oi}/H_i = \pm \sqrt{(\mu \cdot \Sigma g_i \cdot v_i^2) / (\mu - 2) \cdot \Sigma g_i}$$

behaftet, der in Abschn. IV.3.3 numerisch angegeben ist. Folglich sind auch die so berechneten Aktivierungsenthalpien nur mit einer gewissen Unsicherheit anzugeben, die sich aus den Fehlerfortpflanzungsgesetzen /22/ herleitet: *

$$\Delta H_v = \pm \sqrt{\left(\frac{\partial f}{\partial \ln \ln H_{O1}/H_1}\right)^2 (\Delta \ln \ln H_{O1}/H_1)^2 + \left(\frac{\partial f}{\partial \ln \ln H_{O2}/H_2}\right)^2 (\Delta \ln \ln H_{O2}/H_2)^2}$$

$$= \pm \sqrt{\left(\frac{R \cdot T_1 \cdot T_2}{T_1 - T_2}\right)^2 \cdot (m_1^2 + m_2^2)}$$

* Die Meßgrößen T, $\gamma(T)$, und t lassen sich experimentell sehr genau bestimmen, so daß ihr Fehler hier vernachlässigt werden kann.

IV.4.2 numerische Auswertung

IV.4.2.1 H_v für die thermisch aktivierte Einebnung

$$T = 483^\circ \text{ K} ; t = 4,03 \cdot 10^5 \text{ sec} ; \lambda = 4,0 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$$
$$\ln \ln H_{01}/H_1 = -5,10 ; \Delta \ln \ln H_{01}/H_1 = \pm 0,050$$

$$T = 513^\circ \text{ K} ; t = 7,20 \cdot 10^4 \text{ sec} ; \lambda = 4,0 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$$
$$\ln \ln H_{02}/H_2 = -4,56 ; \Delta \ln \ln H_{02}/H_2 = \pm 0,078$$

$$H_{v \text{ therm}} = -1,14 \cdot 10^{-12} (-5,10 + 4,56 - 1,79) = 2,6562 \cdot 10^{-12} \text{ erg} = 1,660 \text{ eV}$$

$$\Delta H_v = \pm \sqrt{(-1,14 \cdot 10^{-12})^2 (0,050^2 + 0,078^2)} = \pm 0,1057 \cdot 10^{-12} \text{ erg} = \pm 0,066 \text{ eV}$$

IV.4.2.2 H_v für die bestrahlungstimulierte Einebnung

$$T = 296^\circ \text{ K} ; \lambda = 4,0 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$$
$$\ln \ln H_{01}/H_1 = -2,132 ; \Delta \ln \ln H_{01}/H_1 = \pm 0,087$$

$$T = 323^\circ \text{ K} ; \lambda = 4,0 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$$
$$\ln \ln H_{02}/H_2 = -0,042 ; \Delta \ln \ln H_{02}/H_2 = \pm 0,130$$

$$H_{v \text{ rad}} = -0,488 \cdot 10^{-12} (-2,132 + 0,042 - 0,096) = 1,0676 \cdot 10^{-12} \text{ erg} = 0,668 \text{ eV}$$

$$\Delta H_v = \pm \sqrt{(-0,488 \cdot 10^{-12})^2 (0,087^2 + 0,130^2)} = \pm 0,0764 \cdot 10^{-12} \text{ erg} = \pm 0,048 \text{ eV}$$

IV.5. Bestimmung des Rekombinationskoeffizienten "α"

IV.5.1 Berechnungsgrundlagen

Die vollständige Beschreibung der bestrahlungsstimulierten Oberflächeneinebnung erfordert die Kenntnis des Rekombinationskoeffizienten, d.h., eines Faktors, der die Anzahl von Gitterplätzen bezüglich einer Leerstelle angibt, von denen aus eine spontane Rekombination mit einem Zwischengitteratom stattfindet. Er wird nach dem in Abschn. IV.4.1 beschriebenen Verfahren durch Quotientenbildung zweier Einebnungen bestimmt. Für T , $\bar{\phi}_0$, H_V und λ konstant, erhält man aus Gl. II.4.2 für zwei verschiedene Bestrahlungszeiten t_1 und t_2

$$IV.5.1-1 \quad \frac{\ln H_{O1}/H_1}{\ln H_{O2}/H_2} = \frac{\alpha \cdot I \cdot t_1 - 1 + \exp(-\alpha \cdot I \cdot t_1)}{\alpha \cdot I \cdot t_2 - 1 + \exp(-\alpha \cdot I \cdot t_2)} = \frac{\varphi_1(\alpha, t_1)}{\varphi_2(\alpha, t_2)}$$

Eine Näherungslösung dieser transzendenten Gleichung gewinnt man durch Reihenentwicklung von $\exp(-\alpha \cdot I \cdot t)$

$$e^{-\alpha I t} = 1 - \alpha I t / 1! + (\alpha I t)^2 / 2! - (\alpha I t)^3 / 3! + - + \dots$$

Damit ergibt sich Gl. IV.5.1-1 in der Form

$$IV.5.1-1a \quad \frac{\ln H_{O1}/H_1}{\ln H_{O2}/H_2} = \frac{t_1^2/2 - \alpha I t_1^3/6 + \alpha^2 I^2 t_1^4/24 - \alpha^3 I^3 t_1^5/120}{t_2^2/2 - \alpha I t_2^3/6 + \alpha^2 I^2 t_2^3/24 - \alpha^3 I^3 t_2^5/120} \dots$$

Da die Größe $(\alpha \cdot I \cdot t)$ nahe 1 liegt, konvergiert diese Reihenentwicklung nur langsam, so daß man, selbst bei Benutzung der Glieder bis zur 3-ten Potenz von α^* , noch kein gültiges Ergebnis erhält, legt man jedoch diesen Wert von α als Näherungslösung zugrunde, so kann der

* Dies entspricht einer Entwicklung von $\exp(-\alpha I t)$ bis zum 5-ten Reihenglied.

wahre Wert für α mit wenigen Iterationsschritten aus Gl.IV.5.1-1 gefunden werden.

Die Genauigkeit, mit der der Rekombinationskoeffizient α berechnet werden kann, ist abhängig von der Unsicherheit des Quotienten $(\ln H_{O1}/H_1)/(\ln H_{O2}/H_2)$. Der Fehler der experimentellen Größen $\ln H_{oi}/H_i$ ist bekannt. Nach dem Fehlerfortpflanzungsgesetz ergibt sich die Abweichung für den Quotienten dieser Größen als die pythagoreische Summe der relativen Fehler der Faktoren:

$$\frac{\Delta(\ln H_{O1}/H_1)/(\ln H_{O2}/H_2)}{(\ln H_{O1}/H_1)/(\ln H_{O2}/H_2)} = \sqrt{\left(\frac{\Delta \ln H_{O1}/H_1}{\ln H_{O1}/H_1}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \ln H_{O2}/H_2}{\ln H_{O2}/H_2}\right)^2}$$

Die extremen Werte für den Koeffizienten α erfüllen dann die Gleichung IV.5.1-1 für den Minimal- bzw. Maximalwert des Quotienten der Einebnungen.

* Die Größen $\ln H_{oi}/H_i$ gewinnt man durch Entlogarithmieren aus den ausgeglichenen und (Fourier-)korrigierten Größen $\ln \ln H_{oi}/H_i$. Der Fehler $\Delta \ln \ln H_{oi}/H_i$ ist bekannt (sh. Abschn. IV.3.3.2). Nach dem Fehlerfortpflanzungsgesetz ist der mittlere Fehler des Logarithmus einer fehlerhaften Größe gleich dem relativen mittleren Fehler dieser Größe selbst:

mit $\ln H_{oi}/H_i = \ln z$ ist

$$\ln(\ln z \pm \Delta \ln z) = \ln \ln z \pm \Delta \ln z / \ln z$$

$$\ln(\ln z \mp \Delta \ln z) - \ln \ln z = \Delta \ln z / \ln z$$

$$\Delta \ln \ln z = \Delta \ln z / \ln z$$

IV.5.2 Numerische Auswertung

$$T=296^{\circ}\text{K}; I=3,08 \cdot 10^{-8} \text{sec}^{-1}; \lambda=4,0 \cdot 10^{-5} \text{cm}; t_1=1,4 \cdot 10^5 \text{sec}; t_2=7,5 \cdot 10^4 \text{sec}$$

$$\begin{aligned} \ln \ln H_{01}/H_1 &= -2,132 & ; & \quad \Delta \ln \ln H_{01}/H_1 = \pm 0,087 \\ \ln \ln H_{02}/H_2 &= -3,200 & ; & \quad \Delta \ln \ln H_{02}/H_2 = \pm 0,130 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \ln H_{01}/H_1 &= 0,1187 & ; & \quad \Delta \ln H_{01}/H_1 = \pm 0,0103 \\ \ln H_{02}/H_2 &= 0,0408 & ; & \quad \Delta \ln H_{02}/H_2 = \pm 0,0053 \end{aligned}$$

$$(\ln H_{01}/H_1) / (\ln H_{02}/H_2) = 2,909$$

$$\begin{aligned} \Delta((\ln H_{01}/H_1)/(\ln H_{02}/H_2)) &= 2,909 \sqrt{(0,0103/0,1187)^2 + (0,0053/0,0408)^2} \\ &= \pm 0,455 = \Delta Q \end{aligned}$$

1./ Mittlerer Wert α ; $(\ln H_{01}/H_1)/(\ln H_{02}/H_2) = 2,909$

α :	307	317	320	322	<u>324</u>	326
$\varphi_1(\alpha, t_1)/\varphi_2(\alpha, t_2)$:	2,931	2,918	2,915	2,913	<u>2,909</u>	2,906

2./ Minimalwert α ; $(\ln H_{01}/H_1)/(\ln H_{02}/H_2) + \Delta Q = 3,364$

α :	40	50	53	<u>54</u>	55	60
$\varphi_1(\alpha, t_1)/\varphi_2(\alpha, t_2)$:	3,395	3,373	3,367	<u>3,365</u>	3,362	3,350

3./ Maximalwert α ; $(\ln H_{01}/H_1)/(\ln H_{02}/H_2) - \Delta Q = 2,455$

α :	780	800	810	<u>820</u>	830	840
$\varphi_1(\alpha, t_1)/\varphi_2(\alpha, t_2)$:	2,480	2,468	2,462	<u>2,455</u>	2,449	2,443

IV.6 Bestimmung des Faktors "D₀" des Diffusionskoeffizienten

IV.6.1 Berechnungsgrundlagen

Die in den Kapiteln IV.3,4,5 ermittelten Koeffizienten können anhand der Gleichungen II.1-4 bzw. II.2-4 überprüft werden. Als Kriterium dient die Aktivierungsenthalpie, die einmal unabhängig von diesen Koeffizienten in Abschn. IV.4 bestimmt wurde, zum anderen aus den Einebnungsgleichungen mit Hilfe dieser Koeffizienten gefunden wird und die überdies, wenigstens für die thermische Oberflächendiffusion, mit Werten anderer Autoren /23/ verglichen werden kann. Für die thermisch aktivierte Oberflächenglättung stimmen die nach den verschiedenen Methoden gewonnenen Resultate innerhalb der Fehlergrenzen überein, während sich für die bestrahlungsinduzierte Oberflächendiffusion aus Gl. II.2-4 ein um ca. 15 % zu großer Wert für die Aktivierungsenthalpie berechnet. * Das kann darauf beruhen, daß der Faktor D₀ im Diffusionskoeffizienten $D = D_0 \cdot \exp(H_v/RT)$ hier grundsätzlich einen anderen Wert hat.

Der Faktor D₀ bestimmt sich aus den Einebnungsgleichungen in der Form

$$D_0 = K \cdot \lambda^n \cdot \ln(H_0/H) \cdot \exp(H_v/RT) \cdot (1/t)$$

mit

$$K = R \cdot T / \gamma \cdot B \cdot 2\pi^n \cdot \Omega^2$$

für die thermisch aktivierte Oberflächeneinebnung.

Für bestrahlungsinduzierte Vorgänge ist t zu ersetzen durch eine reduzierte Zeit

$$t^* = t - (1/\alpha \cdot I)(1 - \exp(-\alpha I t))$$

und

$$K = \alpha \cdot R \cdot T / \gamma \cdot B \cdot 2\pi^n \cdot \Omega^2$$

* D₀ wird von Gjostein /23/ mit 650 cm²/sec angegeben. Mit diesem Wert berechnet sich

$$H_v \text{ therm} = 1,65 \text{ eV gegenüber } 1,66 \text{ eV aus eigener Messung}$$

$$H_v \text{ rad} = 0,76 \text{ eV gegenüber } 0,67 \text{ eV aus eigener Messung}$$

Die Fehlergrenzen des Faktors D_0^* ergeben sich aus dem Fehlerfortpflanzungsgesetz

$$m_{D_0} = \pm \sqrt{\left(\frac{\partial f}{\partial \lambda^n}\right)^2 \cdot m_{\lambda^n}^2 + \left(\frac{\partial f}{\partial \ln z}\right)^2 \cdot m_{\ln z}^2 + \left(\frac{\partial f}{\partial e^{\frac{H_v}{RT}}}\right)^2 \cdot m_{\exp \frac{H_v}{RT}}^2 + \left(\frac{\partial f}{\partial \alpha}\right)^2 \cdot m_{\alpha}^2}$$

mit $\ln H_0/H = \ln z$

Die Rechnung zeigt, daß der Fehler des Diffusionskoeffizienten maßgeblich nur durch den Fehler der Aktivierungsenthalpie bestimmt wird. Für eine Abschätzung reicht es aus, allein diesen Fehler zu berücksichtigen.

* Das Fehlerfortpflanzungsgesetz gilt in dieser Form nur für lineare oder hinreichend kleine Fehler, die als symmetrisch angesehen werden können. Für den Fehler $m_{\ln H_0/H}$ der Messung und für den, durch einen elektronenmikroskopischen Vergrößerungsfehler bedingten Fehler m_{λ^n} ist diese Bedingung erfüllt, nicht aber für den Fehler m_{α} des Rekombinationskoeffizienten und den Fehler $m_{\exp(H_v/RT)}$. Es werden deshalb die symmetrierten Hilfsgrößen $\alpha^* = (1/2) \cdot ((\alpha + \Delta\alpha') + (\alpha - \Delta\alpha''))$ und $\exp(H_v/RT)^* = (1/2) \cdot (\exp((H_v + \Delta H_v)/RT) + \exp((H_v - \Delta H_v)/RT))$ eingeführt, aus denen sich der Fehler $m_{D_0}^*$ eines symmetrisch zu seinen Grenzen gelegenen Faktors D_0^* berechnet. Seine Extremwerte sind gleichzeitig als Fehlergrenzen für D_0 anzusehen.

IV.6.2.1 D_o für die thermisch aktivierte Oberflächeneinebnung

D_o wird unabhängig für zwei verschiedene Temperaturen ermittelt.

Allgemeine Berechnungsgrößen:

$$R = 1,38 \cdot 10^{-16} \text{ erg/grad}; \quad \beta = 1,93 \cdot 10^{15} \text{ Atome/cm}^2; \quad \Omega^2 = 1,39 \cdot 10^{-46} (\text{cm}^3/\text{Atom})^2$$

$$\lambda^4 = 2,560 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^4; \quad \Delta(\lambda^4) = 0,51 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^4$$

$$D_o = \lambda^n \cdot \ln(H_o/H) \cdot \exp(H_v/RT) \cdot (RT/2\pi^n \cdot \Omega^2 \cdot \beta \cdot \gamma \cdot t)$$

$T = 483^\circ \text{ K}$: $t = 4,03 \cdot 10^5 \text{ sec}$; $\gamma = 1557 \text{ dyn/cm}$; $n = 4$

$$D_o = 2,54 \cdot 10^5 \cdot \lambda^4 \cdot \ln(H_o/H) \cdot \exp(H_v/RT)$$

$$\exp(H_v/RT) = 0,1872 \cdot 10^{18}$$

$$\exp((H_v + \Delta H_v)/RT) = 0,1124 \cdot 10^{19} ; \quad \exp((H_v - \Delta H_v)/RT) = 0,5539 \cdot 10^{17}$$

$$\ln H_o/H = 6,1 \cdot 10^{-3} ; \quad \Delta(\ln H_o/H) = 3,05 \cdot 10^{-4}$$

$$D_o = 2,54 \cdot 10^5 \cdot 2,56 \cdot 10^{-18} \cdot 6,1 \cdot 10^{-3} \cdot 0,1872 \cdot 10^{18} = \underline{742 \text{ cm}^2/\text{s}}$$

$T = 513^\circ \text{ K}$: $t = 7,20 \cdot 10^4 \text{ sec}$; $\gamma = 1542 \text{ dyn/cm}$; $n = 4$

$$D_o = 1,50 \cdot 10^6 \cdot \lambda^4 \cdot \ln(H_o/H) \cdot \exp(H_v/RT)$$

$$\exp(H_v/RT) = 0,1746 \cdot 10^{17}$$

$$\exp((H_v + \Delta H_v)/RT) = 0,8808 \cdot 10^{17} ; \quad \exp((H_v - \Delta H_v)/RT) = 0,4533 \cdot 10^{16}$$

$$\ln H_o/H = 1,05 \cdot 10^{-2} ; \quad \Delta(\ln H_o/H) = 0,81 \cdot 10^{-3}$$

$$D_o = 1,50 \cdot 10^6 \cdot 2,56 \cdot 10^{-18} \cdot 1,05 \cdot 10^{-2} \cdot 0,1746 \cdot 10^{17} = \underline{704 \text{ cm}^2/\text{s}}$$

IV.6.2.2 D_0 für die bestrahlungsstimulierte Oberflächeneinebnung

D_0 wird unabhängig für zwei verschiedene Temperaturen bestimmt.

Zusätzliche Berechnungsgrößen:

$$I = 3,08 \cdot 10^{-8} \text{ sec}^{-1}; \quad \alpha = 324; \quad \alpha_{\max} = 820; \quad \alpha_{\min} = 54$$

$$t^* = \text{reduzierte Zeit} = t - (1/\alpha \cdot I) (1 - \exp(-\alpha \cdot I \cdot t))$$

$T = 296^\circ \text{ K}$: $t = 1,40 \cdot 10^5 \text{ sec}$; $\gamma = 1650 \text{ dyn/cm}$; $n = 4$

$$D_0 = 5,92 \cdot 10^{10} \cdot \alpha \cdot \lambda^4 \cdot \ln(H_0/H) \cdot \exp(H_v/RT) \cdot (1/t^*)$$

$$\exp(H_v/RT) = 0,2394 \cdot 10^{12}$$

$$\exp((H_v + \Delta H_v)/RT) = 0,1446 \cdot 10^{13}; \quad \exp((H_v - \Delta H_v)/RT) = 0,2809 \cdot 10^{11}$$

$$\ln H_0/H = 0,119; \quad \Delta(\ln H_0/H) = 1,035 \cdot 10^{-2}$$

$$D_0 = 5,92 \cdot 10^{10} \cdot 324 \cdot 2,56 \cdot 10^{-18} \cdot 0,119 \cdot 0,2394 \cdot 10^{12} \cdot 0,155 = \underline{21,7 \text{ cm}^2/\text{sec}}$$

$T = 323^\circ \text{ K}$: $t = 1,40 \cdot 10^5 \text{ sec}$; $\gamma = 1636 \text{ dyn/cm}$; $n = 4$

$$D_0 = 6,49 \cdot 10^{10} \cdot \alpha \cdot \lambda^4 \cdot \ln(H_0/H) \cdot \exp(H_v/RT) \cdot (1/t^*)$$

$$\exp(H_v/RT) = 0,2440 \cdot 10^{11}$$

$$\exp((H_v + \Delta H_v)/RT) = 0,1549 \cdot 10^{12}; \quad \exp((H_v - \Delta H_v)/RT) = 0,5063 \cdot 10^{10}$$

$$\ln H_0/H = 0,958; \quad \Delta(\ln H_0/H) = 0,125$$

$$D_0 = 6,49 \cdot 10^{10} \cdot 324 \cdot 2,56 \cdot 10^{-18} \cdot 0,958 \cdot 0,2440 \cdot 10^{11} \cdot 0,155 = \underline{19,5 \text{ cm}^2/\text{sec}}$$

IV.6.2.3 Fehlerrechnung für D_o

$$m_{D_o}^* = \pm \sqrt{\left(\frac{\partial f}{\partial \lambda^n} \cdot \frac{\lambda^n}{\lambda^n}\right)^2 \cdot m_{\lambda^n}^2 + \left(\frac{\partial f}{\partial \ln z}\right)^2 \cdot m_{\ln z}^2 + \left(\frac{\partial f}{\partial e^{Hv/RT^*}} \cdot \frac{e^{Hv/RT^*}}{\exp(Hv/RT^*)}\right)^2 \cdot m_{\exp(Hv/RT^*)}^2 + \left(\frac{\partial f}{\partial \alpha^*}\right)^2 \cdot m_{\alpha^*}^2}$$

	483°K _{therm}	513°K _{therm}	296°K _{rad}	323°K _{rad}
D_o^*	2330	1875	75,3	72,3
$\left(\frac{\partial f}{\partial \lambda^n} \cdot \frac{\lambda^n}{\lambda^n}\right)^2 \cdot m_{\lambda^n}^2$	$2,185 \cdot 10^4$	$2,000 \cdot 10^4$	18,6	15,2
$\left(\frac{\partial f}{\partial \ln z}\right)^2 \cdot m_{\ln z}^2$	$1,375 \cdot 10^3$	$3,000 \cdot 10^3$	3,5	6,4
$\left(\frac{\partial f}{\partial e^{Hv/RT^*}} \cdot \frac{e^{Hv/RT^*}}{\exp(Hv/RT^*)}\right)^2 \cdot m_{\exp(Hv/RT^*)}^2$	$4,46 \cdot 10^6$	$2,86 \cdot 10^6$	$4,10 \cdot 10^3$	$3,58 \cdot 10^3$
$\left(\frac{\partial f}{\partial \alpha^*}\right)^2 \cdot m_{\alpha^*}^2$	-	-	96,4	77,5
$m_{D_o}^*$	± 2120	± 1700	$\pm 65,0$	$\pm 60,7$
D_o	742	704	21,7	19,5
$D_o \text{ min}$	210	175	10,3	11,6
$D_o \text{ max}$	4450	3575	140,3	133,0

IV.7 Zusammenstellung der Ergebnisse

Die thermisch aktivierte und die bestrahlungsstimulierte Oberflächenglättung ist durch die Einebnungsgleichungen II.1-4 bzw. II.2-4 vollständig beschrieben. Sie sind als das Ergebnis dieser Arbeit anzusehen, da in ihnen alle, durch das Experiment ermittelten, Daten enthalten sind. Zum Vergleich ist die Einebnung als Funktion der Einwirkungszeit angegeben, für eine mittlere Wellenlänge $\lambda = 4,0 \cdot 10^{-5}$ cm und die Mittelwerte der in Abschn. IV gefundenen Koeffizienten, die in Tab. IV.7-I zusammengefasst sind. Die Einebnungsgleichungen sind nachfolgend explizit zusammengestellt und in Abb. 9 grafisch wiedergegeben:

thermisch aktivierte Einebnung

$$H_v = 1,66 \text{ eV} ; \quad D_o = 720 \text{ cm}^2/\text{sec} ; \quad \lambda = 4,0 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$$

$$T = 296^\circ\text{K} : E (\%) = 100 \cdot (1 - \exp(-2,806 \cdot 10^{-19} \cdot t))$$

hierzu keine Messungen!

$$T = 483^\circ\text{K} : E (\%) = 100 \cdot (1 - \exp(-1,469 \cdot 10^{-8} \cdot t))$$

$$T = 513^\circ\text{K} : E (\%) = 100 \cdot (1 - \exp(-1,468 \cdot 10^{-7} \cdot t))$$

bestrahlungsstimulierte Einebnung

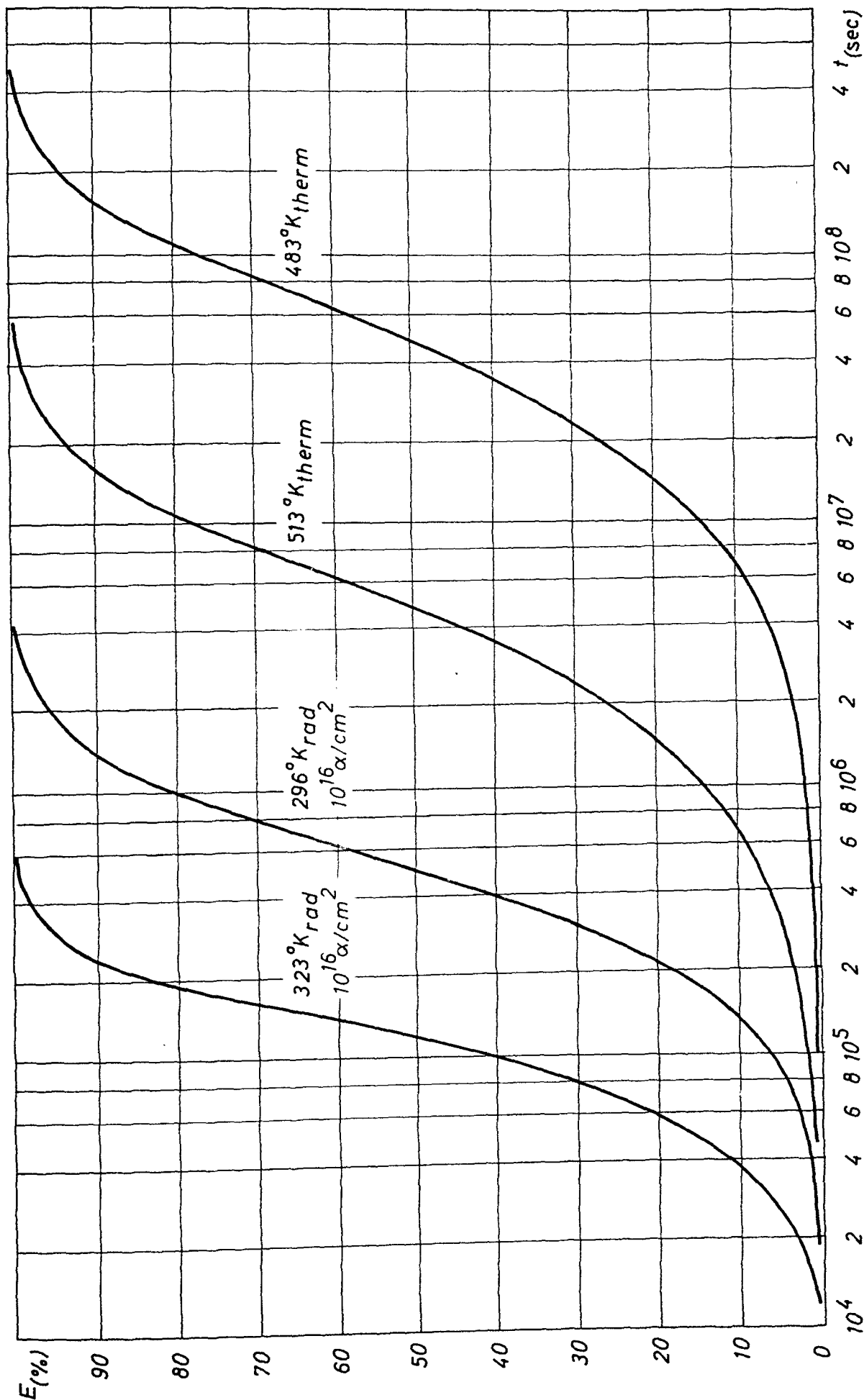
$$H_v = 0,67 \text{ eV} ; \quad D_o = 20 \text{ cm}^2/\text{sec} ; \quad \lambda = 4,0 \cdot 10^{-5} \text{ cm} ; \quad I = 3,08 \cdot 10^{-8} \text{ sec}^{-1} ; \quad \alpha = 324$$

$$T = 296^\circ\text{K} : E (\%) = 100 \cdot (1 - \exp(-1,703 \cdot 10^{-6} \cdot t^*))$$

$$T = 323^\circ\text{K} : E (\%) = 100 \cdot (1 - \exp(-1,518 \cdot 10^{-5} \cdot t^*))$$

$$\text{mit } t^* = \text{reduzierte Zeit} = t - \frac{10^6}{9,98} (1 - \exp(-9,98 \cdot 10^{-6} \cdot t))$$

thermisch aktivierte Einebnung		bestrahlungsstimulierte Einebnung			Tabelle IV.7-I	
483°K	513°K	296°K $6,9 \times 10^{15} \alpha / \text{cm}^2$	296°K $1,3 \times 10^{16} \alpha / \text{cm}^2$	323°K $1,3 \times 10^{16} \alpha / \text{cm}^2$		
4,051	4,040	4,0	4,044	4,0	n	Exponent n
$\pm 0,10$	$\pm 0,20$	$\pm 0,28$	$\pm 0,28$	$\pm 0,28$	m_n	
-53,55	-52,89	-51,06	-50,51	-47,90	A	
$\pm 1,25$	$\pm 2,42$	$\pm 3,40$	$\pm 3,37$	$\pm 3,19$	m_A	
-5,10	-4,56	-3,200	-2,132	-0,042	$\ln \ln(H_0/H)$	Einebnung für $\lambda = 4,0 \times 10^{-5} \text{ cm}$
$\pm 0,050$	$\pm 0,078$	$\pm 0,130$	$\pm 0,087$	$\pm 0,004$	$\Delta \ln \ln(H_0/H)$	
0,0061	0,0105	0,0408	0,1187	0,9585	$\ln(H_0/H)$	
$\pm 0,0003$	$\pm 0,0008$	$\pm 0,0053$	$\pm 0,0103$	$\pm 0,1250$	$\Delta \ln(H_0/H)$	
$2,6390 \times 10^{-12} \text{ erg}$ = 1,649 eV	$2,6376 \times 10^{-12} \text{ erg}$ = 1,648 eV		$1,2067 \times 10^{-12} \text{ erg}$ = 0,754 eV	$1,2219 \times 10^{-12} \text{ erg}$ = 0,764 eV	H_V mit $D_0 = 650 \text{ cm}^2/\text{s}$	Aktivierungsenthalpie
$2,6562 \times 10^{-12} \text{ erg} = 1,660 \text{ eV}$			$1,0676 \times 10^{-12} \text{ erg} = 0,668 \text{ eV}$		H_V	
$\pm 0,1057 \times 10^{-12} \text{ erg} = 0,066 \text{ eV}$			$\pm 0,0764 \times 10^{-12} \text{ erg} = 0,048 \text{ eV}$		ΔH_V	
$0,5343 \times 10^{-17}$	$0,5728 \times 10^{-16}$		$0,4560 \times 10^{-11}$	$0,4099 \times 10^{-10}$	$\exp(-H_V/RT)$	
$0,1872 \times 10^{18}$	$0,1746 \times 10^{17}$		$0,2394 \times 10^{12}$	$0,4099 \times 10^{11}$	$\exp(+H_V/RT)$	
$0,1124 \times 10^{19}$ $0,5539 \times 10^{17}$	$0,8808 \times 10^{17}$ $0,4533 \times 10^{16}$		$0,1446 \times 10^{13}$ $0,2809 \times 10^{11}$	$0,1549 \times 10^{12}$ $0,5063 \times 10^{10}$	$\exp((H_V + \Delta H_V)/RT)$ $\exp((H_V - \Delta H_V)/RT)$	
$742 \text{ cm}^2/\text{s}$	$704 \text{ cm}^2/\text{s}$		$21,7 \text{ cm}^2/\text{s}$	$19,5 \text{ cm}^2/\text{s}$	D_0	Diff. Faktor D_0
$4450 \text{ cm}^2/\text{s}$ 210	$3575 \text{ cm}^2/\text{s}$ 175		$140,3 \text{ cm}^2/\text{s}$ 10,3	$133,0 \text{ cm}^2/\text{s}$ 11,6	Maximalwert Minimalwert	
		324			α	Rekomb. Koeff.
		820			Maximalwert	
		54			Minimalwert	



V. Diskussion der Meßergebnisse

Aus dem Ergebnis der Experimente ist zu entscheiden zwischen einer Oberflächendiffusion oder einer Volumendiffusion als tätigem Mechanismus.

Unter der Voraussetzung, daß eine 5 %ige Strukturverflachung gerade schon, und eine um 75 % eingeebnete Oberflächenrille gerade noch, wahrgenommen werden können*, kann mit Hilfe der Einebnungsgleichungen Gln. II.1-4 und II.2-4, dem beobachteten Wellenlängenbereich 2 bis 5×10^{-5} cm und experimentell sinnvollen Versuchszeiten zwischen 10^3 s und 10^6 s, eine Abschätzung für die Grenztemperaturen durchgeführt werden, innerhalb derer ein Glättungseffekt unter den gegebenen Bedingungen überhaupt nur erwartet werden darf.

Für die thermisch aktivierte Einebnung wird die obere Temperaturgrenze bei 733° K gefunden. Für diese Temperatur sind Unebenheiten mit der größten ausgewerteten Wellenlänge nach der kürzesten Einwirkungszeit von 10^3 s bereits um 95 % eingeebnet. Eine Abschätzung des Verhältnisses $(dx/dt)_{\text{ofl}} / (dx/dt)_{\text{vol}}$ nach Abschn. II ergibt für diesen Fall ein Überwiegen der Oberflächendiffusion um einen Faktor 3×10^4 , gegenüber einer Volumendiffusion. Für die untere Temperaturgrenze bei 453° K (für eine Einebnungszeit von 10^6 s und eine Wellenlänge von 2×10^{-5} cm) ist dieses Verhalten um 3 Größenordnungen ausgeprägter. Die thermisch aktivierte Einebnung ist daher als reiner Oberflächendifusionsprozess anzusehen.

Der Temperaturbereich für die Beobachtung einer bestrahlungstimulierten Oberflächenglättung ist prinzipiell noch weiter einzuschränken. Für Temperaturen unterhalb 253° K entfällt eine Stimulation der Oberflächendiffusion, weil dann die Einflußgröße $\exp(-0,67/RT)$ zu klein wird. Eine merklich strahlungsinduzierte Oberflächenglättung wird erst von Raumtemperatur an wahrgenommen. Bei einer entsprechenden Ab-

* bezogen auf ein unkorrigiertes Originalprofil

schätzung $(dx/dt)_{\text{ofl}}$ gegen $(dx/dt)_{\text{vol}}$ für die höchste experimentelle Temperatur von 323° K überwiegt der Effekt einer Oberflächendiffusion mit einem Faktor 10^5 eine Volumendiffusion. Erst mit Temperaturen, für die eine thermische Leerstellenproduktion einen größeren Umfang annimmt, wird die Volumendiffusion einen merklichen Anteil am Einebnungsprozess haben. Die obere Grenztemperatur des Beobachtungsbereiches ist experimentell durch den Schmelzpunkt des als Bestrahlungsquelle verwendeten Polonium 210 mit 523° K gegeben. Je nach der Wellenlänge der Oberflächenstruktur findet man aber auch hier noch einen, um den Faktor 200 bis 500 größeren, Anteil der Oberflächendiffusion am Einebnungsprozess, gegenüber dem, der Volumendiffusion.

Für den experimentellen Bereich dieser Arbeit ist daher der beobachtete Stofftransport, sowohl der thermisch aktivierte, als auch der durch eine Bestrahlung induzierte, mit Sicherheit ausreichend durch einen reinen Oberflächendifusions-Effekt zu erklären. Dafür spricht entscheidend der in beiden Fällen gefundene Exponent $n=4$ in der Abhängigkeit $dx/dt = -B \cdot \omega^n \cdot x$ der Einebnungsgeschwindigkeit von der Oberflächenstruktur.

Die Beschreibung der strahlungsinduzierten Glättungsvorgänge erfolgt durch die Einebnungsgleichung II.2-4.

Das Einzugsgebiet einer Leerstelle ist durch den Rekombinationskoeffizienten α angegeben. Er wird von Sizmann /7/ durch Abzählen der Gitterplätze geschätzt, von denen aus eine spontane Rekombination von Zwischengitteratom - Leerstelle stattfinden kann. Die Größe dieses Bereiches ist jedoch temperaturabhängig. Mit steigender Temperatur erhöht sich der Einzugsradius. Es wird hier der Koeffizient $\alpha=324$ ermittelt, vergleichbar mit einem, unabhängig von dieser Arbeit, aus elektrischen Widerstandsmessungen gefundenen Wert $\alpha=500^*$.

Die Größe des Faktors D_0 im Diffusionskoeffizienten für die Oberflächendiffusion wird bei seiner Bestimmung aus den Einebnungsglei-

* persönliche Mitteilung durch Herrn G.Lück, Labor für technische Physik der TH-München.

chungen wesentlich durch den Betrag für die effektive Aktivierungsenthalpie beeinflusst. Mit $H_v = 0,67$ eV für die bestrahlungsstimulierte Diffusion liegt diese um ca. 15% unter einem früher von Sizmann /7/ geschätzten Wert. Unter Verwendung der Gl. II.2-4a ergibt sich damit ein Faktor D_o , der um nahezu anderthalb Größenordnungen geringer ist, als der für die thermisch aktivierte Oberflächendiffusion bestimmte Wert $D_o = 720 \text{ cm}^2/\text{s}$ (sh. Abschn. IV.6), der übereinstimmend mit anderen Autoren gefunden wird. /7/23/

Die Zusammenstellung der Einebnungsgleichungen in Abschnitt IV.7 gibt Aufschluß über das zeitliche Verhalten der Oberflächenglättung. Eine Struktureinebnung einer Kupferoberfläche durch rein thermische Einwirkung findet bei Raumtemperatur praktisch nicht statt. Die theoretische Einebnungsdauer für eine gerade noch wahrzunehmende 5 %ige Glättung einer mittleren Wellenlänge von 4×10^{-5} cm liegt bei 10^{17} sec. Eine gleichwertige Einebnung bei einer Bestrahlung mit einer gebräuchlichen Oberflächendosis von 10^{16} α/cm^2 kann schon nach einer Einwirkungsdauer von nur 8×10^4 sec beobachtet werden. Die stimulierende Wirkung einer Bestrahlung mit hochenergetischen Teilchen auf Diffusionsprozesse läßt sich kaum deutlicher zeigen. Sie erlaubt das Studium von Vorgängen, die sich andernfalls bei Raumtemperatur einer experimentellen Beobachtung entziehen.

VI. Zusammenfassung

Es wird der Einfluß von 5,3 MeV α -Strahlung auf die Struktur einkristalliner Kupferoberflächen elektronenmikroskopisch untersucht. Bei einer Bestrahlungsdosis von ca. 10^{16} α/cm^2 wird schon für Raumtemperatur eine völlige Glättung der ursprünglich rauhen Oberfläche beobachtet. (Die Oberflächenstruktur wird von parallelen keilförmigen Rillen dargestellt, mit einem gegenseitigen Abstand einiger 1000 Å). Dieser Effekt wird mit einer thermisch aktivierten Einebnung verglichen und durch einen Diffusionsmechanismus beschrieben.

Aus der Abhängigkeit der Einebnungsgeschwindigkeit vom Abstand benachbarter Oberflächenrillen konnte die Natur des vorherrschenden Prozesses - Volumendiffusion oder Oberflächendiffusion - experimentell identifiziert werden. Es wird gefunden, daß eine Ebnung mit der 4-ten Potenz der Strukturwellenlänge verläuft, derart, daß kürzere Wellenlängen schneller verschwinden. Nach einer von W.W.Mullins entwickelten Theorie der thermischen Oberflächenglättung, die hier für den Fall der bestrahlungsinduzierten Einebnung erweitert wird, entscheidet dieses Verhalten zugunsten einer **O b e r f l ä c h e n d i f f u s i o n**.

Die Glättung der Oberflächen wird durch einen Stoffstrom entlang der Oberfläche erklärt, der durch die Oberflächenspannung angeregt und über Gitterleerstellen vermittelt wird, die bei der Bestrahlung in hoher Konzentration in Oberflächennähe gebildet werden. Eine **b e s t r a h l u n g s i n d u z i e r t e** Leerstellenproduktion **s t i m u l i e r t** Diffusionsvorgänge in einem solchen Ausmaß, daß Einebnungseffekte, die für eine vergleichbare thermische Diffusion Zeiten einiger 10^{10} Jahre beanspruchen würden, auf einige Stunden reduziert und so einer Beobachtung zugänglich gemacht werden können. Der bestrahlungsstimulierte Glättungsvorgang wird durch eine Einebnungsgleichung vollständig beschrieben und deren Koeffizienten experimentell bestimmt.

VII. Literaturverzeichnis

- /1/ G.J.Dienes, G.H.Vineyard: "Radiation Effects in Solids"; Interscience Publishers Inc., N.Y., London, 1957
- J.J.Harwood, H.H.Hausner, J.G.Morse, W.G.Rauch: "The Effects of Radiation on Materials"; Reinhold Publishing Corp., N.Y.
- R.Sizmann: Nukleonik I, 1, 1959
- K.Lintner, E.Schmid: Nukleonik I, 1, 1958
- E.Schmid: Atompraxis, Jg.8, Heft 9, 1962
- /2/ W.Marsh: Zs.f.angew.Physik, Bd.13, Heft 5, 1961
- /3/ W.W.Mullins: J.Appl.Phys., Bd.28, S.333, 1957
- /4/ W.W.Mullins: J.Appl.Phys., Bd.30, S.77, 1959
- /5/ G.Cohen, G.C.Kuczynski: J.Appl.Phys., Bd.21, S.1340, 1950
- /6/ W.Schüle, A.Seeger, F.Ramsteiner: Zs.f.Naturforschung, Bd.16a, S.323, 1961
- /7/ R.Sizmann: "Bestrahlungsstimulierte Diffusion an Metalloberflächen"; Habilitationsschrift an der TH-München, 1962
- /8/ R.Sizmann, U.Däunert: "Radiation-Induced Diffusion in Metals"; Sonderdruck von einem Symposium on Radiation Damage in Solids der IAEA 1962
- /9/ H.Wenzel: Dissertation an der TH-München
- /10/ P.Simson: Dissertation an der TH-München

- /11/ G.W.J.Mc Tegart: "The Electrolytic and Chemical Polishing of Metals in Research and Industry"; Pergamon Press Ltd., London, 1956
- /12/ W.Strohfeld: Industrie-Rundschau, Jg.11, Heft 1 und 2, 1956
- /13/ Bericht NAS - NS 3037
- /14/ Bericht TID - 5221
- /15/ F.Weigel: Zs.f.angew.Chemie, Bd.71, S.288-299, 1959
- /16/ N.Riehl: Kerntechnik 3, Heft 12, 1961
- /17/ L.Reimer: "Elektronenmikroskopische Untersuchungs-und Präparationsverfahren"; Springer, Göttingen-Berlin-Heidelberg, 1959
- /18/ H.Pfisterer: Naturwissenschaften, Bd.40, S.106, 1953
- /19/ C.G.Nestler: "Einführung in die Elektronenmetallografie"; VEB-Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig, 1960
- /20/ H.O.Müller: Kolloid-Zeitschrift 99, S.6-28, 1948
- /21/ G.Joos, Th.Kaluza: "Höhere Mathematik für den Praktiker"; J.A.Barth-Verlag, Leipzig, 1952
- /22/ v.Sanden: "Praktische Mathematik"; B.G.Teubner, Stuttgart
- /23/ N.Gjostein: J.Metals, Bd.12, S.69, 1960

VIII. Bilderanhang

bestrahlungsstimulierte Oberflächeneinebnung

296° K :

Referenzfläche

Dosis $1,0 \times 10^{15}$ α/cm^2

Dosis $6,9 \times 10^{15}$ α/cm^2

Dosis $1,6 \times 10^{16}$ α/cm^2

Dosis $3,6 \times 10^{16}$ α/cm^2

323° K :

Referenzfläche

Dosis $1,3 \times 10^{16}$ α/cm^2

348° K :

Referenzfläche

Dosis $7,3 \times 10^{14}$ α/cm^2

Dosis $1,6 \times 10^{15}$ α/cm^2

398° K :

Referenzfläche

Dosis $1,0 \times 10^{15}$ α/cm^2

Dosis $2,7 \times 10^{15}$ α/cm^2

thermisch aktivierte Oberflächeneinebnung

398° K :

Referenzfläche

Einebnung nach 112 Std.

513° K :

Referenzfläche

Einebnung nach 24 Std.

Einebnung nach 96 Std.

Schattenwurf an einem Fremdkörper



Abb.10a: bestrahlungstimulierte Oberflächeneinebnung bei 296°K
Referenzfläche



Abb.10b: bestrahlungsstimulierte Oberflächeneinebnung bei 296°K
Dosis $1,0 \times 10^{15} \alpha/\text{cm}^2$



Abb.10c: bestrahlungsstimulierte Oberflächeneinebnung bei 296°K
Dosis $6,9 \times 10^{15} \alpha/\text{cm}^2$

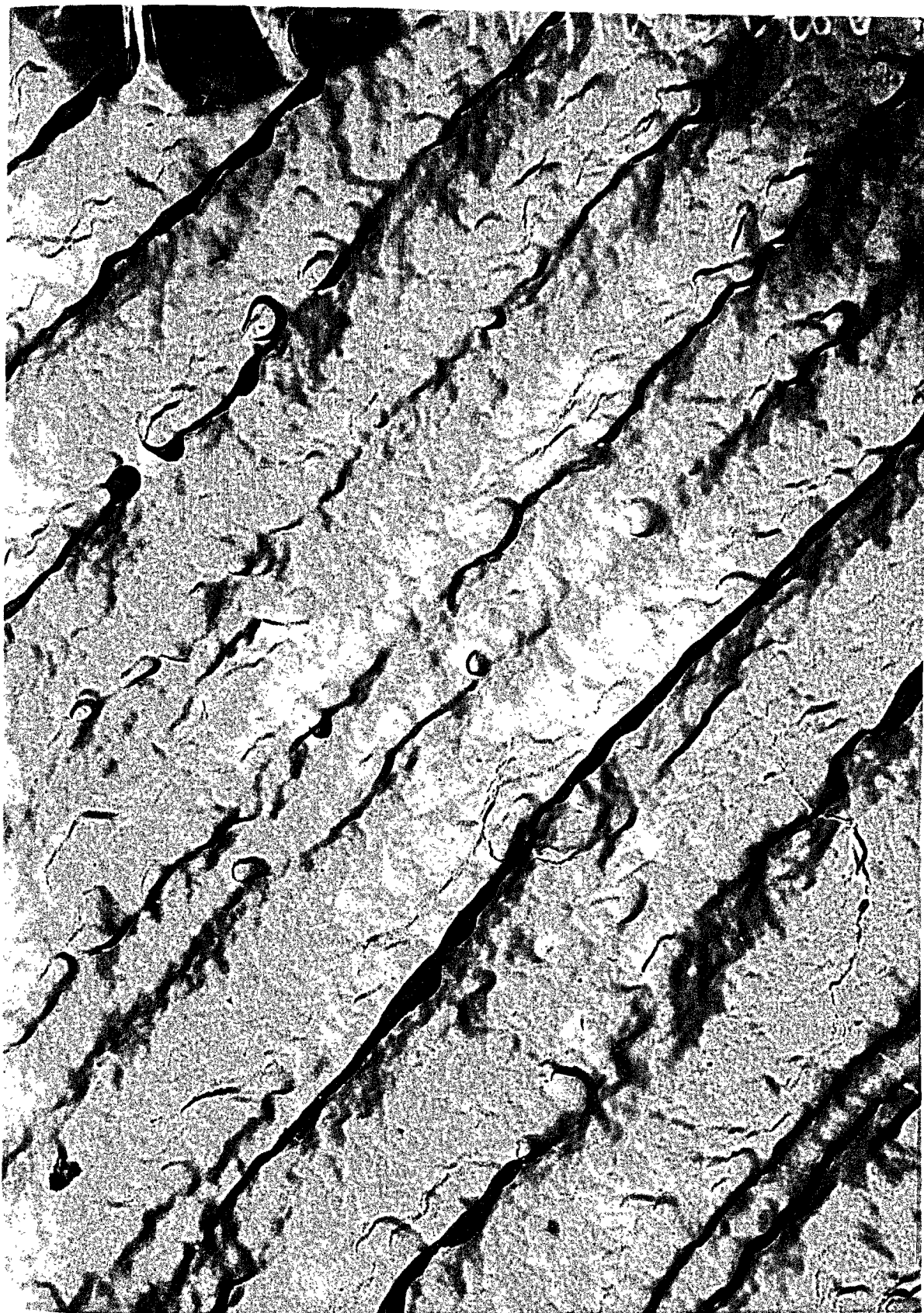


Abb.10d: bestrahlungsstimulierte Oberflächeneinebnung bei 296°K
Dosis $1,6 \times 10^{16}$ α/cm^2

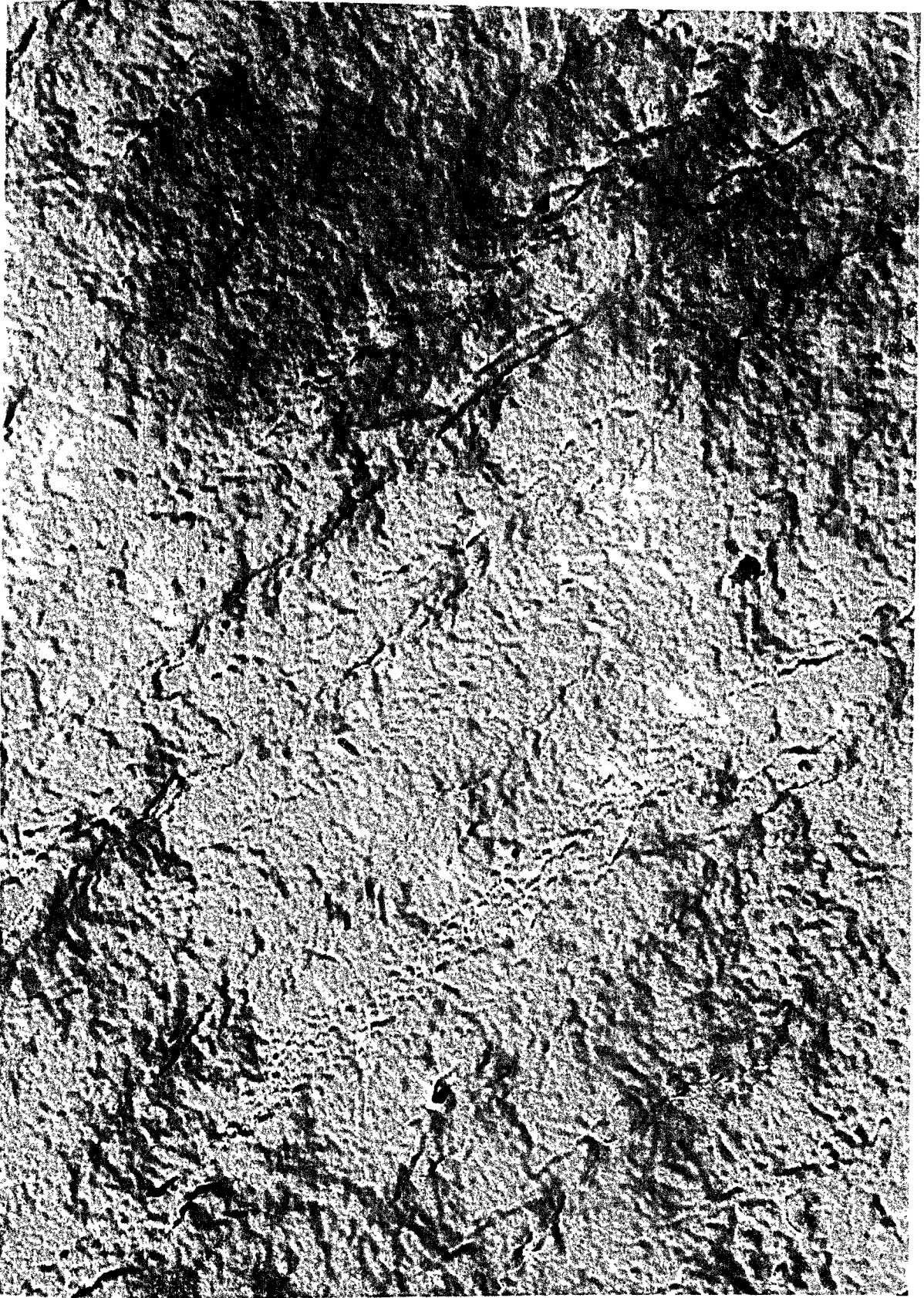


Abb.10e: bestrahlungsstimulierte Oberflächeneinebnung bei 296°K
Dosis $3,6 \times 10^{16} \alpha/\text{cm}^2$



Abb.11a: bestrahlungsstimulierte Oberflächeneinebnung bei 323°K
Referenzfläche



Abb.11b: bestrahlungsstimulierte Oberflächeneinebnung bei 323°K
Dosis $1,3 \times 10^{16} \alpha/\text{cm}^2$



Abb.12a: bestrahlungsstimulierte Oberflächeneinebnung bei 348°K
Referenzfläche



Abb.12b: bestrahlungsstimulierte Oberflächeneinebnung bei 348°K
Dosis $7,3 \times 10^{14} \alpha/\text{cm}^2$



Abb.12c: bestrahlungsstimulierte Oberflächeneinebnung bei 483°K
Dosis $1,6 \times 10^{15} \alpha/\text{cm}^2$



Abb.13a: bestrahlungsstimulierte Oberflächeneinebnung bei 398°K
Referenzfläche

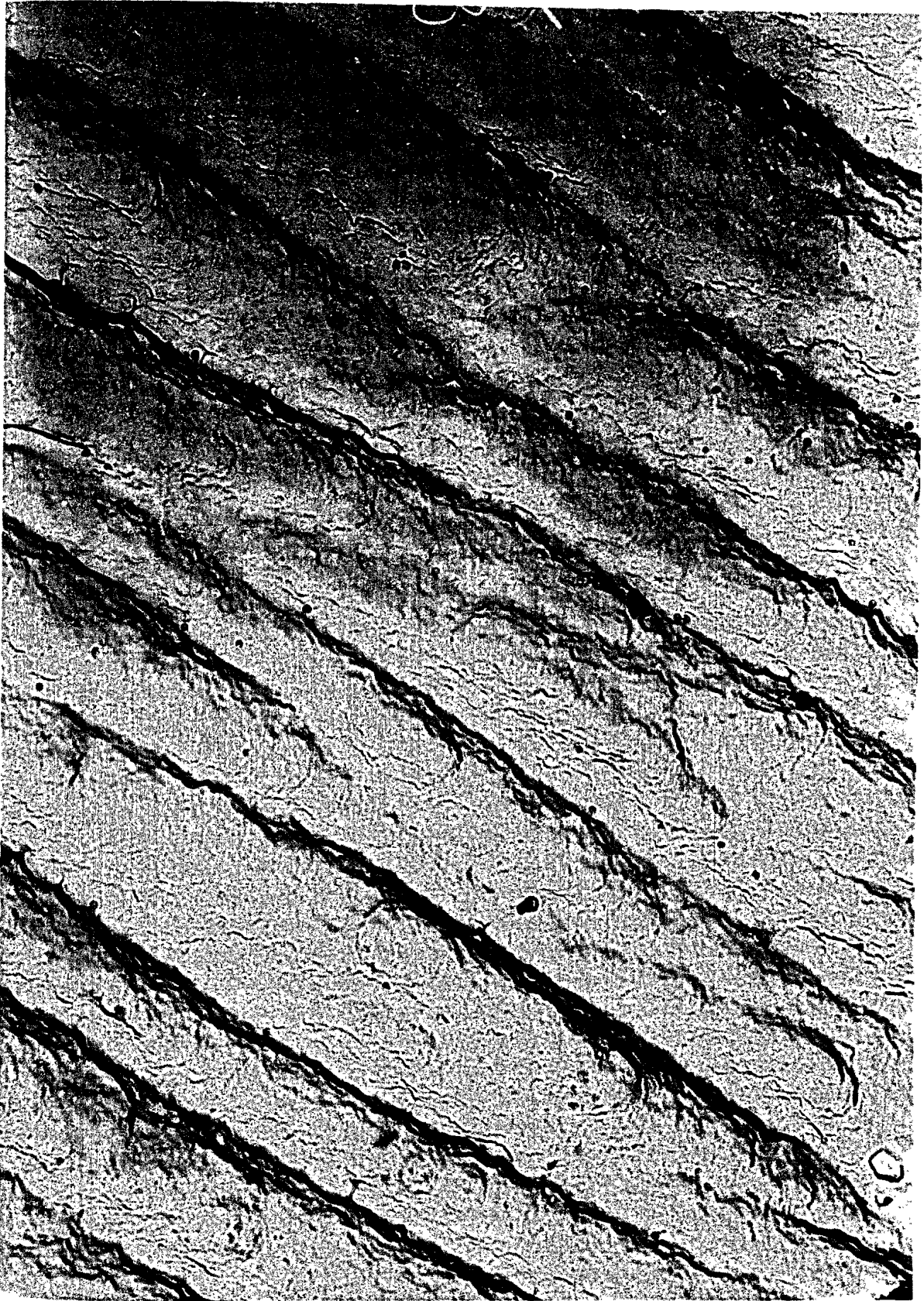


Abb.13b: bestrahlungsstimulierte Oberflächeneinebnung bei 398°K
Dosis $1,0 \times 10^{15}$ g/cm²



Abb.13c: bestrahlungsstimulierte Oberflächeneinebnung bei 398°K
Dosis $2,7 \times 10^{15}$ α/cm^2



Abb.14a: thermisch aktivierte Oberflächeneinebnung bei 398°K
Referenzfläche



Abb.14b: thermisch aktivierte Oberflächeneinebnung bei 398°K
nach 112 Stunden



Abb.15a: thermisch aktivierte Oberflächeneinebnung bei 513°K
Referenzfläche

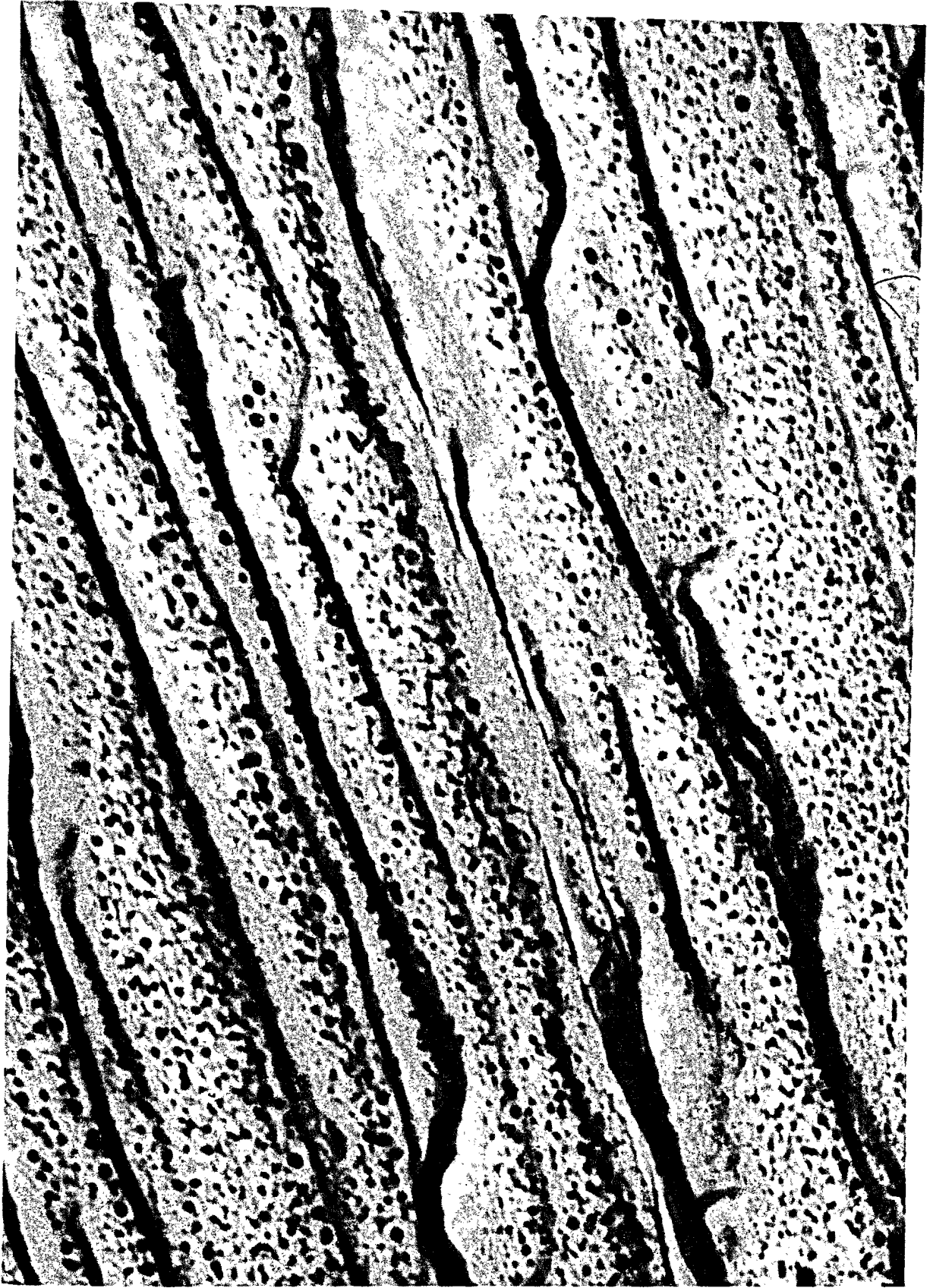


Abb.15b: thermisch aktivierte Oberflächeneinebnung bei 513°K
nach 24 Stunden



Abb.15c: thermisch aktivierte Oberflächeneinebnung bei 513°K
nach 96 Stunden

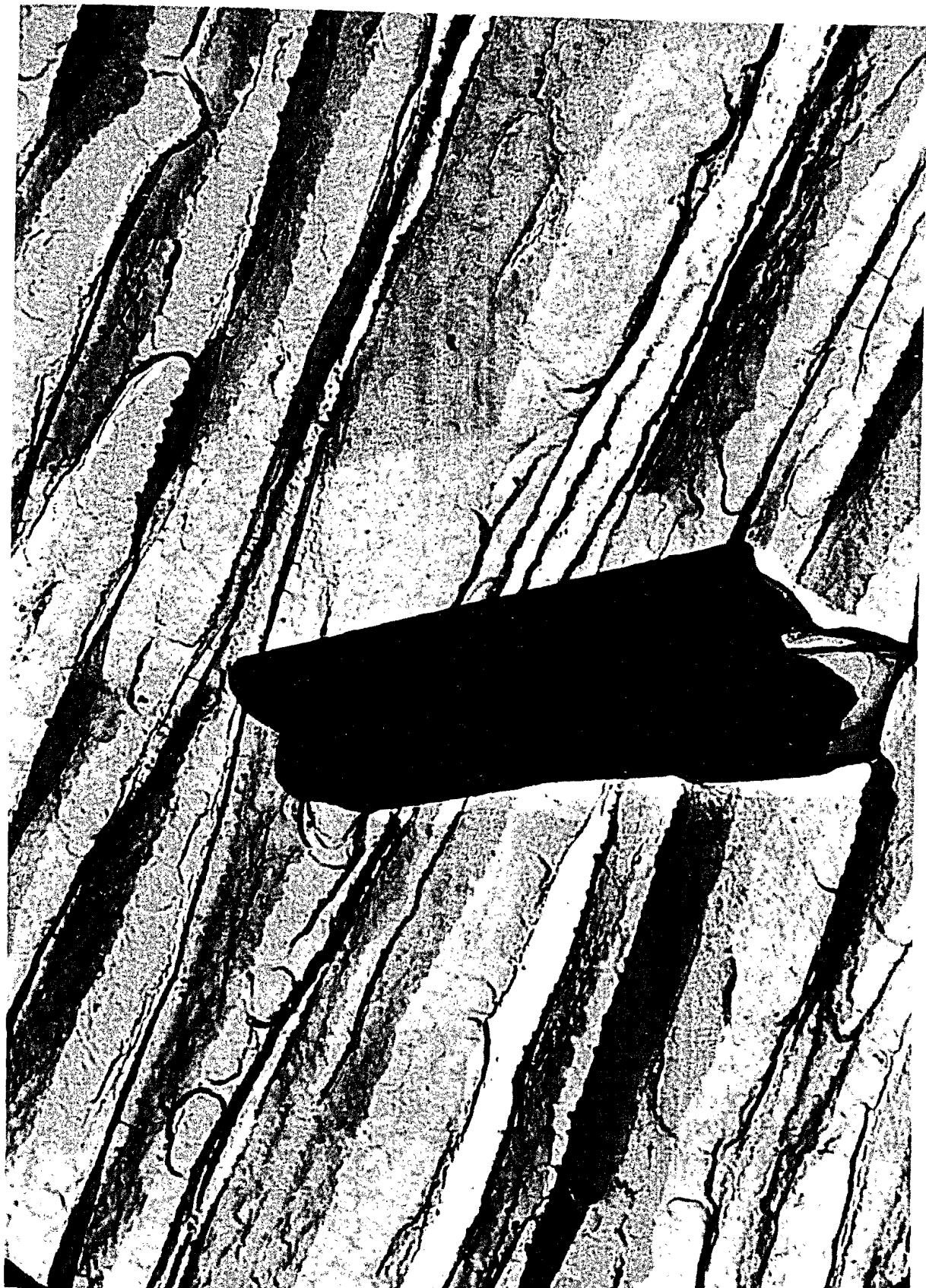


Abb.16: elektrolytisch erzeugte Oberflächenstruktur an Kupfer
Schattenwurf an Schmutzteilchen bei Schrägbedampfung