

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

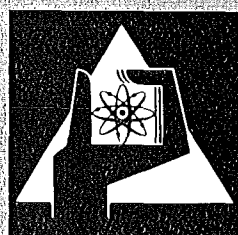
Dezember 1977

KFK 2567

Institut für Material- und Festkörperforschung

**Über den Einfluß der Bestrahlung auf die
Stabilität von Ausscheidungen**

W. V. Vaidya



**GESELLSCHAFT
FÜR
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM

KARLSRUHE

KFK 2567

INSTITUT FÜR MATERIAL- UND FESTKÖRPERFORSCHUNG

ÜBER DEN EINFLUSS DER BESTRAHLUNG AUF
DIE STABILITÄT VON AUSSCHIEDUNGEN *

WAMAN VISHWANATH VAIDYA

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H., KARLSRUHE

* von der Fakultät für Maschinenbau der Universität Karlsruhe (TH)
genehmigte Dissertation.

Zusammenfassung

V A I D Y A , W A M A N V I S H W A N A T H

ÜBER DEN EINFLUSS DER BESTRAHLUNG AUF DIE STABILITÄT VON AUSSCHIEDUNGEN

Verschiedene Legierungen unterschiedlicher Ausscheidungszustände wurden mit Selbstionen der Energie 250 keV bestrahlt. Die Gefügeänderungen wurden als Funktion der Bestrahlungsdosis (2 bis 400 dpa) und der Temperatur (50° bis 725°C) mittels der Transmissions-elektronenmikroskopie verfolgt.

Mit beginnender Bestrahlung verlieren die kohärenten Ausscheidungen ihre Verspannung. Im Laufe der Bestrahlung werden sowohl die verspannten als auch die unverspannten Ausscheidungen von Versetzungen (oder Loops) umhüllt. Die durch Bestrahlung oder Wärmebehandlung entstandenen Grenzflächenversetzungen stabilisieren die Ausscheidungen, und der Verlust dieser Versetzungen markiert den Beginn der beschleunigten Teilchenauflösung, die von der Oberfläche aus anfängt. Dabei sind es die kleinen Ausscheidungen, die bevorzugt aufgelöst werden.

Es wurde ferner beobachtet, daß durch die Bestrahlung eine beschleunigte Umwandlung von metastabiler zu stabiler Phase eintritt; diese Umwandlung ist allerdings zustands- und legierungsspezifisch.

Die experimentellen Ergebnisse werden anhand der bestehenden Modelle diskutiert, und es wird gezeigt, daß die Fragmentierung eine optische Erscheinung ist, die auf die Anwesenheit von Grenzflächenversetzungen zurückzuführen ist, und daß für eine "disorder"-Auflösung keine Anhaltspunkte vorliegen. Die Ergebnisse lassen sich allein durch das "recoil"-Modell erklären, wenn das bestehende Konzept unter Berücksichtigung von gebildeten Versetzungen angewandt wird.

Zur Erklärung der strukturellen Änderungen wird eine Arbeitshypothese entworfen, in der davon ausgegangen wird, daß der Übergang zur Inkohärenz ein strahlungsinduzierter Effekt ist, und daß für die herausgestoßenen Atome die Grenzflächenversetzungen als Senken wirken, aus denen die gelösten Atome rückdiffundieren können.

Abstract

V A I D Y A , W A M A N V I S H W A N A T H

ON THE EFFECT OF IRRADIATION ON THE STABILITY OF PRECIPITATES

Various alloys containing different types of precipitates were irradiated with self ions of 250 keV energy. The microstructural changes as function of irradiation dose (2 to 400 dpa) and temperature (50° to 725° C) were followed by transmission electron microscopy.

The coherent precipitates lose their strain field at the beginning of irradiation and irrespective of their lattice mismatch become enveloped by the dislocations (or loops) formed during further irradiation. The interfacial dislocations, whether formed during irradiation or preaging, stabilize the precipitates and the loss of these dislocations indicates the beginning of rapid dissolution starting from the surface of precipitates, whereby the smaller ones are preferentially dissolved.

It was further observed that due to irradiation the metastable precipitates can be transformed to stable ones, this transformation is however conditional and depends on the state and alloy used.

These results are discussed with the help of existing models and it is shown that the apparent fragmentation of precipitates is an optical effect resulting from the presence of interfacial dislocations and evidence in support of disorder dissolution could not be obtained. All the results can be explained by the recoil model alone, provided the existing concept is applied giving due consideration to the dislocations formed.

In order to explain the structural changes, a work hypothesis is proposed which assumes that through irradiation the precipitates are made to transform into incoherent state and the interfacial dislocations act as sinks for the displaced atoms from which the solute atoms diffuse back to the precipitates.

INHALTSVERZEICHNIS

1	EINLEITUNG	1
2	LITERATURÜBERSICHT	2
2.1	Die verschiedenen Arten der Strahlenschädigung	3
2.2	Das Ausscheidungsverhalten einer Phase	4
2.3	Einfluß der Bestrahlung auf die Auflösung der Ausscheidungen	
2.3.1	Die "spike"-Auflösung	7
2.3.2	Die "disorder"-Auflösung	12
2.3.3	Das Fragmentierungsmodell	15
3	STELLUNGNAHME ZU DEM THEMA	18
4	VERSUCHSDURCHFÜHRUNG	21
4.1	Probenmaterial	21
4.2	Wärmebehandlung	22
4.3	Probenpräparation für die Bestrahlung	22
4.4	Bestrahlung der Proben	23
4.5	Die Probenanalyse mit Hilfe der Transmissionselektronenmikroskopie (TEM)	
4.5.1	Herstellung der TEM-Proben	25
4.5.2	TEM-Untersuchungen	25
5	VERSUCHSERGEBNISSE	28
5.1	Inconel 625-Legierung	
5.1.1	Das Ausscheidungsverhalten	28
5.1.2	Einfluß der Bestrahlung auf die Stabilität der γ^+ -Ausscheidungen	28
5.1.3	Die strahlungsinduzierten Defektstrukturen	29

5.2	Al-Mg-Si-Legierung	
5.2.1	Das Ausscheidungsverhalten	30
5.2.2	Einfluß der Bestrahlung auf die Stabilität der β' -Ausscheidungen	31
5.2.3	Einfluß der Bestrahlung auf die Stabilität der $(\beta' + \beta)$ -Ausscheidungen	31
5.2.4	Die strahlungsinduzierten Defektstrukturen	32
5.3	Fe-Cu-Legierung	
5.3.1	Das Ausscheidungsverhalten	33
5.3.2	Einfluß der Bestrahlung auf die Stabilität der Cu-Ausscheidungen	33
5.3.3	Die strahlungsinduzierten Defektstrukturen	33
5.4	Ni-Cr-Al-Legierung	
5.4.1	Das Ausscheidungsverhalten	35
5.4.2	Die Bestrahlungsparameter	35
5.4.3	Die TEM-Meßdaten	35
5.4.4	Einfluß der Bestrahlung auf die Stabilität der γ' -Ausscheidungen	
5.4.4.1	Die Morphologie der γ' -Ausscheidungen unter Bestrahlung	36
5.4.4.2	Einfluß der Dosis und Temperatur	37
5.4.4.3	Die teilchengrößenabhängige Auflösung	38
5.4.5	Die strahlungsinduzierten Defektstrukturen	39
5.5	Ni-Si-Legierung	
5.5.1	Das Ausscheidungsverhalten	41
5.5.2	Einfluß der Bestrahlung auf die Stabilität der γ' -Ausscheidungen	41
5.5.3	Die strahlungsinduzierten Defektstrukturen	42

6	DISKUSSION	42
6.1	Der Zusammenhang zwischen der Ionen- eindringtiefe und der Strahlenschädigung	44
6.2	Diskussion der Ergebnisse an Hand der bestehenden Modelle	
6.2.1	Das Fragmentierungsmodell	45
6.2.2	Die "disorder"-Auflösung	46
6.2.3	Die "spike"-Auflösung	49
6.3	Arbeitshypothese und Interpretation der Ergebnisse	
6.3.1	Der strahlungsinduzierte Übergang zur Inkohärenz : Hypothese	53
6.3.2	Der Verlust des Grenzflächenkontrasts	56
6.3.3	Die $\beta' \rightarrow \beta$ -Umlösung	57
6.3.4	Der Einfluß von Grenzflächenversetzungen auf die Teilchenauflösung	58
6.3.5	Die technologische Bedeutung	64
7	ZUSAMMENFASSUNG	66
	LITERATUR	70
	ABBILDUNGEN	
	TABELLEN	
	ANHANG	

1. EINLEITUNG

Die knappwerdenden Energievorräte haben einen Impuls bei der Suche nach neuen Energiequellen gegeben und die Kernenergie ist eine der versprechenden Alternativen in unmittelbarer Zukunft. Der kommerzielle Nutzen der Kernenergie, insbesondere der für die Zukunft entwickelten schnellen Brutreaktoren, ist u. a. mit verschiedenen technologischen Problemen verbunden. Ein davon ist die Verfügbarkeit der geeigneten Werkstoffe, weil die Komponenten im Innen des Reaktors (Reaktorkern, Brennelemente usw.) außer der thermomechanischen Belastung und Korrosion den hohen Neutronendosen ($\approx 10^{23}$ n/cm²) ausgesetzt sind.

Bevor die ersten Reaktoren gebaut wurden, waren sich die Wissenschaftler bewußt, daß eine Wechselwirkung zwischen den Strahlen und den (metallischen) Werkstoffen die Werkstoffeigenschaften verändern würde. Es ist aber erst etwa 10 Jahren her, daß man nach zahlreichen Untersuchungen das Ausmaß der Wechselwirkung und die Probleme des Einsatzes von Werkstoffen unter Bestrahlung im einzelnen kennt. Die Simulationsbestrahlung und die mittels der Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) gewonnenen Ergebnisse haben es ermöglicht, auch innerhalb dieser kurzen Zeitspanne wesentliche Informationen über die strukturelle Stabilität zu ermitteln.

Bis jetzt hat man für Reaktorkomponenten und Brennelementenhüllen die Legierungen verwendet, die sich in anderen Anwendungsgebieten bereits bewährt haben. Nach dem heutigen Stand der Erkenntnisse über die strukturellen Untersuchungen werden aber die konventionellen Legierungen wegen der Porenbildung unter Volumenschwellen zu leiden haben - ein Problem für Konstruktion, Sicherheit und Wirtschaftlichkeit der Reaktoren. Man sieht sich daher gezwungen, neue "beständige" Reaktorlegierungen in dieser Richtung zu entwickeln oder die bestehenden dementsprechend zu modifizieren. Die Ausscheidungen sind eine der potentialen Möglichkeiten, das Schwellen zu unterdrücken, wobei die Ausscheidung: Matrix-Grenzfläche als eine Senke für die Leerstellen wirkt.

Die vorliegende Arbeit befaßt sich mit dem Einfluß der Bestrahlung auf die Stabilität der Ausscheidungen und verfolgt die strukturelle Entwicklung ausscheidungsfähigen Legierungen unter Bestrahlung. Dabei werden auch Aussagen über die Wechselwirkung zwischen den strahlungsinduzierten Defekten und den Ausscheidungen erwartet, was für die Entwicklung neuer Legierungen von Bedeutung wäre.

Mit einer allgemeinen Betrachtung der Strahlenschädigung und des Ausscheidungs Vorgangs ist die Literaturübersicht im Kapitel 2 eingeleitet und stellt die verschiedenen Modelle dar, die durch die experimentellen Untersuchungen vorgestellt sind. Die Literaturübersicht verdeutlicht die Probleme, die in der vorliegenden Arbeit zu behandeln sind, und veranlaßt im Kapitel 3 eine Stellungnahme. Nach einer ausführlichen Darstellung der Versuchsdurchführung im Kapitel 4 vergegenwärtigt Kapitel 5 die Entwicklung der Arbeit und geht dabei auf die Auswahl der Legierungen ein. Die hier gewonnenen Ergebnisse über die Stabilität der Ausscheidung unter Bestrahlung werden im Kapitel 6 zunächst im Hinblick auf die bisherigen Modelle diskutiert. Aufgebaut auf diese Diskussion wird dann eine Arbeitshypothese entworfen, die zur Erörterung der Ergebnisse und der Wechselwirkung zwischen Ausscheidung und strahlungsinduzierten Defekten verwendet wird. Dabei wird das Thema der Porenbildung ausscheidungsfähiger Legierungen angeschnitten.

2. LITERATURÜBERSICHT

Die Ausscheidungsvorgänge sind legierungsspezifische Eigenschaften und erfordern zu ihrem Beginn die Zuführung von Energie, die von Legierung zu Legierung sehr unterschiedlich sein kann. Während der Bestrahlung wird andererseits von einfallenden Teilchen Energie an das Material abgegeben, so daß die Bestrahlung das Ausscheidungsverhalten sowie die Stabilität der Ausscheidung wesentlich beeinflussen kann. Die experimentellen Untersuchungen auf diesem Gebiet begannen mit Reaktorbestrahlung und wurden in letzter Zeit durch Bestrahlung mit geladenen Teilchen

erweitert. Es ist daher zweckmäßig, zunächst die verschiedenen Arten der Strahlenschädigung und die Ausscheidungsvorgänge im allgemeinen zu betrachten, damit die bisherigen Ergebnisse miteinander verglichen und interpretiert werden können.

2.1 Die verschiedenen Arten der Strahlenschädigung

Die Wechselwirkung zwischen den einfallenden energetischen Teilchen und den Gitteratomen kann zur interstiziellen Verlagerung der Gitteratome und damit zur Bildung von Leerstellen und Zwischengitteratomen (=Frenkelpaare) führen. In diesem Zusammenhang spricht man von Strahlenschädigung, wobei Masse und Energie des einfallenden Teilchens maßgebend mitwirken. Die folgende Diskussion wird auf die Strahlenschädigung beschränkt, wie sie durch schnelle Reaktorneutronen (Spaltneutronen der Energie oberhalb 0,1 MeV) oder durch Elektronen oder Ionen verursacht wird.

Der Vorteil der Simulation von Neutronenbestrahlung durch Elektronen- oder Ionenbestrahlung liegt in der höheren Schädigungsrate bei der Bestrahlung mit geladenen Teilchen [Norris 1971, Nelson et al. 1970]. Die Schädigungsrate K , mit der Einheit "displacement per atom per second" (dpa/s), ist von der Art der Bestrahlungsquelle unabhängig und ist damit eine geeignete Größe für den Vergleich zwischen den verschiedenen Arten der Strahlenschädigung. Die Schädigungsrate K ergibt sich aus der folgenden Gleichung [Kaletta 1976] :

$$K = n_D \cdot \phi_T \cdot n_A \quad (1)$$

n_D : Zahl der Frenkelpaare im geschädigten Volumen

ϕ_T : Zahl der einfallenden Teilchen pro Sekunde

n_A : Zahl der Gitteratome im geschädigten Volumen

Während die Neutronenbestrahlung zu Schädigungsraten von 10^{-6} dpa/s führt, kann im Hochspannungselektronenmikroskop (HVEM) bei Energie von 1-MeV ein K-Wert von 10^{-3} dpa/s und bei Ionenbestrahlung je nach Energie und Masse des Teilchens ein K-Wert von 10^{-2} dpa/s erreicht werden. Das bedeutet, daß bei gleicher Dosis die Dauer der Simulationsbestrahlung viel kürzer als die der Reaktorbestrahlung ist. Dies kann gerade bei zeitabhängigen Vorgängen, wie Ausscheidung, eine entscheidende Rolle spielen.

Inwieweit und in welcher Form die übertragene Energie im Gitter zurückbleibt, hängt von einer Reihe von Parametern ab [Eyre 1973]. Dazu gehören einerseits die Materialparameter wie z.B. Struktur, Zustand, Fremdatomgehalt, und andererseits die Bestrahlungsparameter Energie, Dosis und Temperatur. Die gebildeten Leerstellen und Zwischengitteratome, soweit sie nicht im thermischen Gleichgewicht liegen, können zur Diffusion beitragen, die dann als strahlungsinduzierte Diffusion bezeichnet wird [Dienes und Damask 1958]. Das bedeutet, daß wegen der erhöhten Defektkonzentration während der Bestrahlung eine Beschleunigung der Diffusion auftritt, dabei ist vorausgesetzt, daß die Bestrahlungstemperatur Platzwechselfvorgänge zuläßt. Der Anteil der strahlungsinduzierten Diffusion ist in einem Temperaturbereich wirksam, bei welchem die Defektkonzentration höher liegt als die thermische Leerstellenkonzentration. Demzufolge verschwindet die strahlungsinduzierte Diffusion oberhalb ca. $0,5 T_m$ (T_m = Schmelzpunkt des Materials in $^{\circ}$ Kelvin) [Wiedersich 1972].

2.2 Das Ausscheidungsverhalten einer Phase

Die Entmischung des übersättigten Mischkristalls ist eine diffusionsabhängige Phasenumwandlung im festen Zustand. Die Keimbildung, das Wachstum und die Vergrößerung einer neuen Phase, die eine andere Zusammensetzung als die Matrix hat, stellen die wesentlichen Merkmale des Vorgangs dar. Die Triebkraft ist die Abnahme der freien Energie, ΔG ,

$$-\Delta G = -\Delta G_{\text{chem.}} + \Delta G_{\text{strukt.}} \quad (2)$$

$\Delta G_{\text{chem.}}$ ist die chemische Energie, bestimmt durch die Übersättigung.
 $\Delta G_{\text{strukt.}}$ ist eine strukturabhängige Energie, die sich nach den gebildeten Phasen-Grenzflächen und der resultierenden Verzerrung der Matrix richtet.

In erster Linie wird $\Delta G_{\text{strukt.}}$ von der Struktur und Form der sich auscheidenden Phase beeinflusst und stellt eine Barriere dieser Umwandlung dar. Während der Auslagerung wird die zu der Umwandlung benötigte Energie in Form von Wärme zugeführt, und somit ist die erforderliche Umordnung des Mischkristalls durch die Diffusion ermöglicht. Die Keimbildung [Russel 1975] ist die kritische Stufe dieser Umwandlung und kann soweit es sich um eine heterogene Keimbildung handelt durch Gitterfehler erleichtert werden.

Die stabilen Bereiche der ausgeschiedenen Phase - Ausscheidungen, Teilchen oder Partikeln genannt - wachsen unabhängig voneinander bis die Gleichgewichtskonzentration entsprechend der Auslagerungstemperatur eingestellt ist. Eine weitere Zunahme der Teilchengröße, d. h. Vergrößerung, Koagulation oder Ostwald-Reifung, ist aber von der Größe eines Teilchens abhängig. Im Vergleich zu den großen Teilchen besitzen die kleinen Teilchen ein ungünstiges Oberflächen-zu-Volumen-Verhältnis, so daß in ihrer Umgebung die Konzentration der gelösten Atome höher ist. Dadurch wird ein Konzentrationsgradient von den kleinen zu den großen Teilchen hergestellt, der zu einer bevorzugten Auflösung der kleinen Teilchen zugunsten der großen führt.

Wegen der engen Beziehungen zwischen den strukturellen Änderungen und den Eigenschaften einer ausscheidungsfähigen Legierung [Böhm 1963], beschreibt man die Phase nach verschiedenen Kriterien, wie zum Beispiel :-

- i) nach der Orientierungsbeziehung zur Matrix
kohärent, teilkohärent, inkohärent

- ii) nach dem (stabil/metastabil) Phasendiagramm
(G.P.-Zonen), metastabil, stabil, elementar
- iii) nach der Form
Nadel, Stab, Platte, Würfel, Kugel
- iv) nach der resultierenden Verspannung der Matrix⁺
(gitterparameterabhängig,

$$\Delta a \% = \frac{a_{\text{Ausscheidung}} - a_{\text{Matrix}}}{a_{\text{Matrix}}} \times 100 \quad)$$

- Δa : Leerstellentyp, + Δa : Zwischengittertyp

- v) nach der Atomordnung
geordnet, ungeordnet

Es ist jedoch keineswegs eine strenge Einteilung. Im Gegenteil werden diese Kriterien sehr oft miteinander verwendet, um die Eigenschaften der Ausscheidungen zu betonen.

Mit Ausnahme der Vergrößerung ist die Stabilität der Ausscheidungen unter thermischen Bedingungen eine legierungsspezifische Eigenschaft. Im allgemeinen wird die Stabilität von den Eigenschaften der ausgeschiedenen Phase, wie Struktur, Form, Verspannung und Grenzflächenenergie, bestimmt. In der Tat beeinflussen sich diese Parameter derart gegenseitig, daß sie eine Reihe von Zuständen hervorrufen können, die wiederum legierungsspezifisch sind.

+

Wenn die Gitterkonstante einer Ausscheidung kleiner bzw. größer als die Gitterkonstante der Matrix ist, kommt eine negative bzw. positive Verspannung um die Ausscheidung zustande, die der Verspannung von Leerstellenversetzungsringen (Leerstellenloops) bzw. Zwischengitterversetzungsringen (Zwischengitterloops) ähnelt. Wegen dieser Ähnlichkeit wurde von Ashby und Brown [1963] die Bezeichnung Leerstellentyp für eine negativ-verspannte und Zwischengittertyp für eine positiv-verspannte Ausscheidung eingeführt.

Die obigen Gesichtspunkte, Beschreibung sowie Stabilität der Ausscheidung, werden an Hand folgender Beispiele erläutert.

In Ni-Al-sowie Ni-Si-Legierungen scheidet sich die geordnete, stabile γ' -Phase kohärent mit der Matrix aus. Der wesentliche Unterschied der γ' -Phase in beiden Legierungen, abgesehen von ihrer Zusammensetzung, ist die Verspannung. $\gamma'_{(\text{Ni-Si})}$ -Phase ist Leerstellentyp ($\Delta a \approx -0,3\%$), $\gamma'_{(\text{Ni-Al})}$ -Phase ist Zwischengittertyp ($\Delta a \approx +0,5\%$) [Hornbogen und Roth 1967]. Bei einer vergleichbaren Konzentration der gelösten Atome und Wärmebehandlung hätte man daher keine grundsätzlichen Unterschiede erwartet. $\gamma'_{(\text{Ni-Al})}$ -Ausscheidungen bleiben auch bis zu 3000 Å vollständig kohärent [Philips 1966], dagegen verlieren $\gamma'_{(\text{Ni-Si})}$ -Ausscheidungen ihre Kohärenz bei kleineren Teilchengrößen ($d > 1800$ Å), dabei tritt eine Änderung weder in der Zusammensetzung noch in der Orientierung auf [Rastogi und Ardell 1971]. Ein völlig anderes Verhalten zeigen die Al-Legierungen. In Al-Cu zum Beispiel [Hornbogen 1967], bilden sich G.P.-Zonen, oder metastabile Phasen - δ'' , δ' - bevor sich die stabile, inkohärente δ -Phase ausscheidet. Der Verlauf jeder Entmischungsstufe ist mit Änderungen sowohl in der Zusammensetzung als auch in der Orientierung und Form gekennzeichnet. Bedingt durch die Auslagerung und/oder Vorbehandlung, ist es außerdem auch nicht ausgeschlossen, daß diese Zustände gleichzeitig auftreten oder fortlaufend umgewandelt werden.

Diese Komplikationen des Ausscheidungsverhaltens zeigen eindeutig die Notwendigkeit der Erkenntnisse über den genauen Zustand der Legierung, um den Einfluß der Bestrahlung auf die Stabilität der Ausscheidung behandeln zu können.

2. 3 Einfluß der Bestrahlung auf die Auflösung der Ausscheidungen

2. 3. 1 Die "spike"-Auflösung

Vor etwa 20 Jahren wurde das Grundkonzept der Störbereiche "spikes" von Brinkman [1956] entworfen. Als "displacement spikes" bezeichnet er die Bereiche, die mehrfachen Atomverlagerungen ausgesetzt sind.

Eine starke Umordnung der Atome in der Umgebung führt dann zur erhöhten Temperatur dieser Mikrobereiche - genannt "thermal spikes", in denen für sehr kurze Zeit, $t_s \approx 10^{-13}$ s, die Temperatur schlagartig über den Schmelzpunkt hinaus hochsteigt [Brinkman 1956].

Die Suche nach einer experimentellen Bestätigung der "spikes" führte zu der Untersuchung ausscheidungs-fähiger Legierungen. Man kann die "spike"-Effekte an einem heterogenen Material folgenderweise vorstellen. Wenn z.B. eine Ausscheidung in dem Wirkungsbereich von "displacement spike" liegt, werden die Atome wegen der elastischen Stöße aus der Ausscheidung herausgestoßen, demzufolge löst sich die Ausscheidung auf. Eine Auflösung der Ausscheidung ist auch dann zu erreichen, wenn die Temperatur T die Löslichkeitstemperatur T_{solvus} der Legierung überschreitet, was während der Bestrahlung durch "thermal spike" auch vorkommen kann.

Die ersten Experimente wurden an Cu-Fe-Legierungen durchgeführt. In diesen Legierungen [Denney 1956, Saji et al. 1973] scheidet sich zunächst die metastabile γ -Fe-Phase (flächenzentriert) kohärent aus, ihre Umwandlung zur stabilen, inkohärenten α -Fe-Phase (innenzentriert) erfolgt allerdings nur nach starker Kaltverformung und nicht wie normalerweise durch Auslagerung. Die elektrische Leitfähigkeit und besonders die magnetische Eigenschaft, γ : paramagnetisch, α : ferromagnetisch, lassen die Umwandlung sehr gut verfolgen. Eine Zunahme des elektrischen Widerstandes deutet auf die Auflösung der α - oder γ -Phase hin, und eine Abnahme des Sättigungsmagnetismus auf die Auflösung der α -Phase.

Denney [1954] stellte nach Beschuß von 9-MeV-Protonen die Auflösung der inkohärenten α -Fe-Phase in einer Cu-2,4 % ^{+) Fe-Legierung fest.}

+)

Die Konzentration der gelösten Atome wird in Gew % angegeben.

Er hat angenommen, daß die Ausscheidungen durch "displacement-spike" aufgelöst werden, dabei deutet er auch auf die temperaturabhängigen Effekte hin, wie Mischkristallbildung und abgeschmolzene Bereiche. Seine Angaben und Andeutungen lassen eigentlich eher auf eine "thermal spike"-Auflösung schließen.

Boltax [1957] erkannte die technische Bedeutung des Auflösungs Vorgangs. Er untersuchte eine Cu-3,25 % Fe-Legierung nach Reaktorbestrahlung (Dosis $\approx 5 \cdot 10^{19}$ n/cm², $T_B \approx 70^\circ\text{C}$) und fand eine Abhängigkeit zwischen den Vorauslagerungsbedingungen und den Änderungen der elektrischen Leitfähigkeit sowie des Sättigungsmagnetismus. Die bei niedriger Temperatur vorausgelagerten Proben zeigten eine Erhöhung des elektrischen Widerstandes, die auf eine Auflösung der kohärenten γ -Fe-Ausscheidungen hindeutet. Daraus schloß er auf eine bevorzugte Auflösung der kleinen Ausscheidungen, da sie ein größeres Oberflächen-zu-Volumen-Verhältnis haben. Dagegen zeigten sich die großen Teilchen stabiler, eine Zunahme der Größe wurde sogar festgestellt. Die Abnahme des Sättigungsmagnetismus wies auf ein ähnliches Verhalten bei den inkohärenten α -Fe-Ausscheidungen auf.

Boltax konnte diese Ergebnisse durch weitere Experimente an verschiedenen Cu-Fe-Legierungen bestätigen [Boltax 1959, 1965]. Die bis 500°C vorausgelagerten Proben zeigten nur Auflösung, dagegen zeigten alle oberhalb 500°C vorausgelagerten Proben überwiegend Wachstum der γ -Fe-Teilchen. Bei niedriger Auslagerungstemperatur scheidet sich eine Vielzahl der kleinen Teilchen aus, und da sie unter Bestrahlung nicht stabil sind, lösen sie sich auf [Boltax 1957]. Dagegen enthalten die bei höherer Temperatur ausgelagerten Proben größere Teilchen. Von Natur aus sind diese Teilchen auch während der Bestrahlung stabil und daher werden sie wachsen. Die experimentelle Bestätigung dieser Überlegungen führte Boltax [1965] zu dem Schluß, daß der gesamte Vorgang aus a) Auflösung und b) beschleunigter Entmischung der sich noch in Lösung befindlichen oder durch die Auflösung in Lösung gebrachten gelösten Atome - also Rückdiffusion - besteht. Allerdings bleibt unklar, wie die Auflösung wegen

der "spikes" vorgeht. "displacement" sowie "thermal spike" sind in Betracht gezogen, hauptsächlich wird aber ein rückbildungsähnlicher Vorgang für die Teilchenauflösung vermutet [Boltax 1957, 1965], was auf die "thermal spike"-Auflösung hinweist.

Für die Teilchenauflösung unter Bestrahlung betrachtet Piercy [1962] hauptsächlich die "displacement spikes", wobei nach seinen Angaben die begleitenden thermischen Effekte (thermal spikes) keine wesentliche Rolle spielen. Statt Cu-Fe-Legierungen verwendete er eine Cu-2 % Co-Legierung. Der Cu-Fe-Legierung gegenüber bietet sie den Vorteil, daß es keine Umwandlung - metastabil \rightarrow stabil - stattfindet, und sich die kugelförmigen kobaltreichen Teilchen kohärent mit der Matrix ausscheiden [Philips 1964]. Wegen der einfachen Teilchenform und des Ferromagnetismus ist die Legierung auch für quantitative Untersuchungen geeignet. Die Bestrahlung wurde an bereits ausgelagerten Proben durchgeführt (Dosis $\approx 3,4 \times 10^{19}$ n/cm² bei ca. 50°C). Die Co-Teilchen bis etwa 25 Å-Durchmesser waren völlig durch die Bestrahlung aufgelöst. Teilchen größer als 25 Å lösten sich nicht auf, sie zeigten nur eine Abnahme der Größe. Piercy [1962] deutete dies als ein Beweis für "displacement spike" an, wobei nur der im "spike" sich befindliche Teil aufgelöst wird. In anderen Worten ist eine Teilauflösung der Ausscheidung möglich und dadurch wird die Auflösung eine Funktion der Teilchengröße.

Boltax sowie Piercy waren sich hinsichtlich der "spike"-Größe und Zahl der sich im "spike" befindlichen Atome ($\approx 10^4$ bis 10^5 Atome pro "displacement spike") einig. Eine Einigkeit bestand auch darin, daß die Auflösung einer Ausscheidung an der Oberfläche anfängt, und daß die Ausscheidung wegen der Bestrahlung nicht gebrochen wird.

In der letzten Zeit wurden einige Untersuchungen an Legierungen durchgeführt, die auch G.P.-Zonen enthielten. G.P.-Zonen sind keine "Ausscheidungen", jedoch sind sie mit Ausnahme der Kristallstruktur den gleichen Gesetzen wie die Ausscheidungen unterworfen [s. Shewmon 1969].

Nach einer Reaktorbestrahlung (Dosis bis 10^{16} n/cm²) an verschiedenen Al-Legierungen beobachteten Liu et al. [1972], daß der Radius der G. P. - Zonen unabhängig von der Zusammensetzung der Legierungen abnimmt und dementsprechend von einer Änderung des Volumenanteils und der Verteilung begleitet wird. Dies wurde als der Beitrag von "displacement spike" interpretiert, weil Diffusion, und damit ein "thermal spike", wegen der ausgewählten Bestrahlungstemperatur $T_B = -253^\circ\text{C}$ grundsätzlich ausgeschlossen war. Eine ähnliche Feststellung machten auch Grinchuk und Kirsanov [1974] an G. P. - Zonen in Ni-2 % Be-Legierung (Dosis 10^{16} bis 10^{21} n/cm² $T_B \approx 70^\circ\text{C}$).

Es besteht aber einen Unterschied in der Art der Betrachtung. Liu et al. vermuten, daß die G. P. - Zonen gebrochen werden (particle break-up). In Ni-Be-Legierungen sind die G. P. - Zonen sehr stabil, damit kommt die thermische Aktivierung (=Diffusion) nicht in Frage. Nach Grinchuk und Kirsanov trägt die dynamische Wechselwirkung der Zwischengitteratome (crowdion) zu der Auflösung bei, wobei - so scheint es - die Be-Atome überwiegend die entfernten substitutionellen Gitterplätze besetzen.

Die G. P. - Zonen in Al-3, 5 % Cu-Legierung konnten auch durch Elektronenbestrahlung in HVEM ($E = 650$ keV, $K \approx 10^{-3} - 10^{-4}$ dpa/s) zur Auflösung gebracht werden [Sklad und Mitchell 1975]. Allerdings wurde ein direkter Übergang von G. P. - Zonen, statt zur kohärenten δ'' , zur teilkohärenten δ' -Phase beobachtet, der eindeutig ein strahlungsinduzierter Effekt war. Die Auflösung der G. P. - Zonen sowie der δ'' -Phase entstand nach Sklad und Mitchell durch das "Durcheinanderwirbeln" (mixing), damit meinen sie, mit Recht auch, vielleicht die tatsächlichen Komplikationen des Vorgangs.

Ein Übergang der δ'' zur δ' -Phase ist eine Frage der Wärmebehandlung, wenn sich aber δ' -Phase gebildet hat, ist sie stabil, d. h. die Vergrößerung oder eine weitere Umwandlung ist nur zur stabilen, inkohärenten δ -Phase möglich. Miura et al. [1973/74] beobachteten die Vergrößerung

der δ -Phase in Al-4,24 % Cu-Legierung nach einer siebenstündigen Gammabestrahlung, die nach weiterer Bestrahlung ($t_B = 25$ h), vermutlich durch die vollständige Auflösung und nochmalige Ausscheidung, wieder fein verteilt erschien.

Diese TEM-Ergebnisse von Miura et al. [1973/74] sowie von Sklad und Mitchell [1975] zeigen, daß die Bestrahlung einen beträchtlichen Einfluß auf die Gefügestabilität von Ausscheidungen hat, obwohl während der Gamma- bzw. Elektronenbestrahlung trotz der Atomverlagerung weder "displacement spikes" noch "thermal spikes" entstehen.

Zusammenfassend kann man feststellen, daß unabhängig von der Bestrahlungsart sowohl die kohärenten als auch die inkohärenten Ausscheidungen aufgelöst werden können [z.B. Denney 1954, Boltax 1957, Shiraishi 1970, Sklad und Mitchell 1975], wobei die kleinen Teilchen bevorzugt zur Auflösung neigen [Boltax 1957, 1965, Piercy 1962]. Dabei kann eine strahlungsinduzierte - allerdings zustandsspezifische - Umwandlung der Art metastabil \rightarrow stabil auch vorkommen [Denney 1953, Boltax 1957, Sklad und Mitchell 1975].

Die bisherigen Untersuchungen stellen den Beweis für die Existenz der "spikes" dar. Welches von denen - "displacement" - und/oder "thermal spike" - die Teilchenauflösung verursacht, bleibt vorerst umstritten. Daß die Stoßprozesse stattfinden, ist jedoch unumstritten und bildet auch gewissermaßen die Basis der nachfolgenden Modelle. In diesem Sinne sind sie mehr oder weniger als Zweige der "spike"-Auflösung zu verstehen. Da diese Untersuchungen hinsichtlich der Legierungen und Untersuchungsmethode der vorliegenden Arbeit nahestehen, wird es darüber etwas ausführlich berichtet.

2.3.2 Die "disorder"-Auflösung

Nach Boltax [1959, 1965] waren es Nelson und Mitarbeiter [1969, 1972], die umfangreiche Versuche durchführten, um den Einfluß der Bestrahlung auf die Auflösung von Ausscheidungen zu verfolgen. Im Vergleich

zu den bereits zitierten Arbeiten benutzten sie zum ersten Mal Schwerionenbestrahlung und untersuchten die strukturellen Änderungen mittels TEM.

Die Bedeutung ihrer Arbeiten liegt darin, daß sie die "recoil"-Auflösung - im allgemeinen als "spike"-Auflösung bezeichnet - klar definierten, einen Mechanismus für die Auflösung der geordneten, kohärenten Ausscheidungen vorschlugen und grundlegende Überlegungen anstellten.

Die Tatsache, daß die Bestrahlung die Atomordnung eines geordneten Kristalls zerstört [Dixon und Bowen 1954, Brinkman 1956], bildet das Grundargument der "disorder"-Auflösung [Nelson 1974]. Es wird angenommen, daß die Störbereiche (displacement spikes), deren direkter Nachweis jetzt vorliegt [Seiler et al. 1974], die Ordnung einer geordneten Ausscheidung vernichten, was zur Auflösung solcher Ausscheidungen führen kann.

Der grundsätzliche Unterschied zwischen "recoil" und "disorder"-Auflösung kommt durch die Art der Entfernung der Ausscheidungsatome zustande. Für Auflösung durch "recoil" ist eine Mindestenergie von etwa 25 eV notwendig, damit ein Atom die Ausscheidung:Matrix-Grenzfläche überhaupt überspringen kann [Nelson 1969]. Während der "disorder"-Auflösung aber diffundieren die Atome aus der Ausscheidung:Matrix-Grenzfläche heraus [Nelson et al. 1972], und somit sollte die "disorder"-Auflösung eine verhältnismäßig niedrigere Energie benötigen als die "recoil"-Auflösung. Welcher von beiden Prozessen während der Auflösung wirksam wird, hängt von der Natur der Ausscheidung ab. Nelson et al. [1972] postulieren "recoil"-Auflösung für die inkohärenten und "disorder"-Auflösung für die geordneten, kohärenten Ausscheidungen. Die physikalischen Unterschiede zwischen den beiden Vorgängen spiegeln sich in der Auflösungsrate wider. Die "disorder"-Auflösung läuft viel schneller ab und, je nach der Verspannung der Ausscheidung, kann eine Auflösungsrate erreicht werden, die bis zu einem Faktor 10^3 höher als im "recoil"-Fall liegt [Nelson 1974]. Wegen der genannten Gründe sollten die inkohärenten Teilchen unter Bestrahlung stabiler sein als die

anderen [Nelson et al. 1972].

Unabhängig davon wie die Auflösung abläuft, ist die Teilchengröße ein wesentlicher Faktor, der die Stabilität einer Ausscheidung während der Bestrahlung beeinflusst. Nelson et al. [1972], wie Boltax [1959, 1965], betrachten die sich im dynamischen Gleichgewicht einstellende Endgröße der Teilchen als ein Ergebnis von zwei gegenseitig wirkenden Vorgängen : einerseits die Auflösung, die ein Teilchen verkleinert, andererseits die strahlungsinduzierte Diffusion, die zum Teilchenwachstum beiträgt. Je nach der Bestrahlungstemperatur wird daher hinsichtlich der Teilchengröße ein Gleichgewichtszustand zwischen der Auflösung und Diffusion hergestellt. Unabhängig von der Ausgangsteilchenverteilung erreicht dann die Teilchengröße unter Bestrahlung eine Gleichgewichtsgröße, wobei die großen Ausscheidungen auf diese Größe schrumpfen und die kleinen wachsen [Nelson et al. 1972].

Dieser Vorgang ist das Gegenteil der Ostwald-Reifung, die während der Vergrößerung vorkommt. Unter thermischen Bedingungen lösen sich die kleinen Ausscheidungen wegen der verhältnismäßig höheren Konzentration der gelösten Atome in ihrer Umgebung auf, bei einer gleichzeitigen Diffusion zu den größeren Teilchen, die dann weiter wachsen. Während der Bestrahlung wird aber eine Umkehr des Konzentrationsgradienten hergestellt [Nelson et al. 1972], weil durch die Auflösung sich die Konzentration der gelösten Atome im Bereich der großen Teilchen erhöht. Somit wird unter Bestrahlung der Strom der gelösten Atome von den großen zu den kleinen Teilchen fließen und die kleinen Ausscheidungen stabilisieren [Nelson et al. 1972].

Nelson et al. [1972] bestätigen diese Überlegungen durch die Schwerionenbestrahlung an Ni-Al-sowie PE 16-Legierung. In den beiden Legierungen scheidet sich die kohärente und geordnete γ' -Phase aus. Unterhalb einer kritischen Temperatur $T_c \approx 350^\circ\text{C}$ fand unter Bestrahlung eine beschleunigte Auflösung statt. Oberhalb 350°C wurde die strahlungsinduzierte Diffusion wirksam und, wie erwartet, statt Koagulation wurde eine feine Dispersion der γ' -Ausscheidungen beobachtet.

Die Aussage, daß unter Bestrahlung die kleinen Ausscheidungen stabiler sind als die großen, und ihre Bestätigung durch die Simulationsbestrahlung ist überraschend, weil unter Neutronenbestrahlung genau das Gegenteil festgestellt wurde. Sharpe und Whapham [1974] zum Beispiel beobachteten in der gleichen Legierung, also PE 16, die bevorzugte Auflösung der kleinen γ' -Ausscheidungen und dies ist in Übereinstimmung mit den Ergebnissen von Boltax [1957] und Piercy [1962].

Im Zusammenhang mit der Auflösung der inkohärenten Ausscheidungen sind die Aussagen und Beobachtungen von Nelson et al. [1972] jedoch widersprüchlich. Durch die Bestrahlung bei Raumtemperatur konnten sie keine Auflösung der inkohärenten MgNi_2 -Phase in einer Ni-Mg-Legierung feststellen, beobachteten jedoch die Auflösung von Karbiden in der PE 16-Legierung, die meistens als teil-oder inkohärent auftreten. Nelson [1969] hat eine Aufnahme zitiert, in der die Auflösung der stabilen, inkohärenten MgZn_2 -Phase in einer Al-Zn-Mg-Legierung deutlich zu sehen ist.

Unabhängig voneinander haben Vaidya und Böhm [1974] sowie Rowcliff et al. [1975] einen Übergang von Kohärenz zur Inkohärenz der γ^+ -Phase durch eine Bestrahlung in Inconel 625 und γ' -Phase in Inconel X-750 beobachtet. Zur Erklärung wurde vorgeschlagen [Vaidya und Böhm 1974], daß der ursprüngliche Zustand (kohärent oder teil-kohärent) oder die Atomordnung (geordnet oder ungeordnet) einer Ausscheidung während der Bestrahlung keine wesentliche Rolle für ihr Auflösungsverhalten spielt, durch die Bestrahlung eine Ausscheidung immer inkohärent wird und ihre Auflösung über "recoil" abläuft. Dies gilt auch für die geordneten Ausscheidungen.

2. 3. 3 Das Fragmentierungsmodell

Potter und Hoff [1975, 1976] untersuchten den Einfluß der Bestrahlung auf das Ausscheidungsverhalten einer Ni-6,35 % Al-Legierung. Die Proben wurden im lösungsgeglühten Zustand in einem Temperaturbereich von 300° bis 650°C mit 3,2-MeV-Ni⁺-Ionen ($K = 2,7 \times 10^{-3}$ dpa/s)

bestrahlt und anschließend mittels TEM untersucht.

Sie stellten Veränderungen in der Teilchengröße, Verteilung sowie Morphologie durch die Bestrahlung fest. Bereits nach 1 dpa nahm die Teilchengröße zu, die Teilchenverteilung wurde jedoch ungleichmäßig. Dabei änderte sich die Teilchenform von Kugel zu Würfel, oberhalb 5 dpa erschienen die Teilchen fragmentiert und nach 24 dpa setzte die Auflösung ein. Es wurde beobachtet, daß mit der beginnenden Fragmentierung das strahlungsinduzierte Wachstum der Teilchen verlangsamt wird, was oberhalb 20 dpa schließlich zu einem scheinbaren stationären Zustand in der γ -Größe führte. Bei der thermischen Auslagerung erfolgt eine Formänderung der Teilchen von Kugel zu Würfel, die teilchengrößenabhängig ist [Hornbogen und Roth 1967]. Eine Fragmentierung der Teilchen ist allerdings bei thermischer Auslagerung bisher nicht beobachtet worden, so daß die Autoren es für einen strahlungsinduzierten Effekt halten, der bereits bei 5 dpa auftritt. Da die bisherigen Überlegungen - weder "disorder"- noch "recoil"-Auflösung - diese Beobachtungen erklären, stellen Potter und Hoff ein Fragmentierungsmodell vor.

Als Mechanismus der Fragmentierung der Teilchen erörtern Potter und Hoff die folgenden Möglichkeiten. Die Fragmentierung der Ausscheidung entsteht nach Ansicht der Autoren durch die Wechselwirkung zwischen den strahlungsinduzierten Versetzungen (oder Loops) und den Ausscheidungen, dabei schneiden die in der Matrix gebildeten Loops die Ausscheidungen. Wenn sich die Loops aber innerhalb der γ -Ausscheidungen bilden, kommt es im Innen der Ausscheidung zur Auflösung [Potter und Hoff 1976]. Das bedeutet, daß die ursprüngliche Ausscheidung, die bei niedrigen Dosen zum beschleunigten Wachstum neigt, bei zunehmender Bestrahlung fragmentiert, d. h. geteilt wird. Obwohl dann unter Bestrahlung weiterhin eine beschleunigte Vergrößerung stattfindet, erreicht die Teilchengröße einen fast stationären Zustand, da die Ausscheidung wegen der Fragmentierung nicht als gesamt sondern als geteilt vergrößert. Potter und Hoff [1976] stellten fest, daß die großen Teilchen ($d > 150 \text{ \AA}$) unter Bestrahlung bevorzugt fragmentiert werden. Daraus postulierten

sie, daß Teilchen oberhalb einer kritischen Größe für die Fragmentierung anfälliger sind als die kleinen. Der Grund liegt, ihrer Meinung nach, in der kohärenten γ' : γ -Oberfläche, die als eine Senke für die Defekte innerhalb der Teilchen wirkt. Das bedeutet, daß die Defekte innerhalb der kleinen Teilchen, im Vergleich zu den größeren, einen kurzen Weg zur Oberfläche haben und schneller ausheilen. Infolgedessen bleiben die Defekte in den größeren Teilchen erhalten, in den kleinen aber nicht. In der Tat würde dies die Aussage von Nelson et al. [1972] unterstützen, daß unter der Bestrahlung die kleinen Ausscheidungen stabiler als die großen sind.

Potter und Hoff [1976] vermuten, daß die Versetzungen (oder Loops) eine bevorzugte Segregation von Ni-Atomen um sich bilden, da die Ni-Atome kleiner als die Al-Atome sind, und daß die Versetzungen während des Schneidens eine künstliche Nickel-Anreicherung in γ' -Ausscheidungen hinterlassen, was zur Auflösung der Ausscheidungen führt. Eine andere Möglichkeit ist durch die Wechselwirkung zwischen der Gitterverspannung und dem Spannungsfeld der Zwischengitterloops gegeben. Die γ' -Ausscheidungen in dieser Legierung erweitern das Matrixgitter (Zwischengittertyp, $\Delta a \approx +0,5\%$), und da sie sich unter dem Einfluß der Druckspannung dieser Loops befinden, sind sie nicht stabil.

Im Zusammenhang mit dem Schneiden und der Fragmentierung der Teilchen sind die Arbeiten von Gleiter [1968] und Beardmore et al. [1969] zu erwähnen, obwohl sie keineswegs die Bestrahlung behandeln.

Häufig beobachtet man, daß nach einer starken Verformung die vorhandenen Ausscheidungen aufgelöst werden. Gleiter [1968] hat gezeigt, daß eine schneidende Stufenversetzung die gelösten Atome durch ihr Spannungsfeld anzieht. Damit kommt eine spannungsinduzierte Diffusion im Verzerrungsfeld der Versetzung zustande, so daß die Matrix-Atome in die Ausscheidung und die gelösten Atome von der Ausscheidung in die Versetzung hineindiffundieren. Das bedeutet, daß in einer Ni-Al-Legierung die Al-Atome, nicht aber die Ni-Atome, wie es Potter und Hoff annehmen [1976], um

eine schneidende Versetzung segregieren würden.

Während der Verformung werden die Versetzungen entweder die Ausscheidungen schneiden oder umgehen. Beardmore et al. [1969] stellten fest, daß in Ni-Cr-Al-Legierungen die Wechselwirkung zwischen den Ausscheidungen und Versetzungen vom Volumenanteil der γ' (V_f) und von der Verformungstemperatur abhängt. In Legierungen mit $V_f < 20\%$ bewegen sich die Versetzungen bis 500°C paarweise und schneiden die Ausscheidungen, dagegen werden die Versetzungen bei 900°C die Ausscheidungen umgehen (Orowan-Mechanismus). Auf jeden Fall befinden sich die Versetzungen nach der Wechselwirkung immer in der γ -Matrix. Ein ähnliches Verhalten zeigten die Legierungen mit $V_f > 20\%$. Nur bei 900°C aber wurden die Versetzungen auch in γ' -Ausscheidungen beobachtet und wegen der gebildeten Substruktur erscheinen die Ausscheidungen wie fragmentiert. Dies bestätigt die Annahme von Potter und Hoff [1976], daß die Fragmentierung allein durch das Schneiden nicht zustande kommt und die Versetzungen in den Ausscheidungen zurückbleiben müssen. Allerdings muß hier betont werden, daß wie in den von Potter und Hoff untersuchten Legierungen ($V_f < 20\%$) die Versetzungen nicht in Ausscheidungen sondern in Matrix beschränkt sind [Beardmore et al. 1969] und demzufolge keine Fragmentierung vorkommt.

Man kann aber jedenfalls entnehmen, daß eine Versetzung-Ausscheidung-Wechselwirkung, sei es wegen des Schneidens oder der Fragmentierung, zur Auflösung der Ausscheidung führen kann [Potter und Hoff 1976, Gleiter 1968, Beardmore et al. 1969].

3. STELLUNGNAHME ZU DEM THEMA

Aus der Literaturübersicht kann man entnehmen, daß es keinen Zweifel daran gibt, daß die Bestrahlung die Stabilität einer Ausscheidung beeinflußt und zur Auflösung führen kann. Wie der Mechanismus der Auflösung ist, bleibt umstritten, soweit umstritten, daß auch über den Auflösungs-

vorgang der Ausscheidungen mit vergleichbaren strukturellen Eigenschaften keine Einigung besteht [Nelson et al. 1972, Vaidya und Böhm 1974, Rowcliff et al. 1975, Potter und Hoff 1976]. Dies könnte durchaus in den legierungsspezifischen Eigenschaften begründet sein. Noch überraschender ist aber die Tatsache, daß während der Neutronen- und Ionenbestrahlung z.T. unterschiedliche Effekte auftreten, u. z. hinsichtlich der teilchengrößenabhängigen Auflösung und Auflösung inkohärenter Teilchen [z.B. Boltax 1957, Nelson et al. 1972, Sharpe und Whapham 1974].

Die Ionenbestrahlung wurde zunächst für die Simulation der Porenbildung verwendet, wobei man sogar quantitative Übereinstimmung zwischen Neutronen- und Ionenbestrahlung festgestellt hat [Nelson et al. 1970]. Die Porenbildung und Ausscheidung sind insofern vergleichbar, daß sie diffusionsgesteuerte, also zeitabhängige Vorgänge sind. Im Gegensatz zur Porenbildung gibt es aber im Falle des Einflusses der Bestrahlung auf die Ausscheidung noch nicht mal einen qualitativen Vergleich zwischen Ionen- und Neutronenbestrahlung.

Man stelle sich den gesamten Vorgang vor. Es wird Energie an die Legierung übertragen und dadurch werden die Punktdefekte oder ihre Aggregate erzeugt. Also hat man hier mit einem Vorgang zu tun, in dem eine Wechselwirkung zwischen Leerstellen, Zwischengitteratomen, Versetzungen, gelösten Atomen und Ausscheidungen stattfindet. Trotz zahlreichen Untersuchungen bleibt aber die Frage : wie und unter welchen Bedingungen löst sich eine Ausscheidung auf ? In dieser Arbeit ist ein Versuch unternommen, mittels Ionenbestrahlung und TEM mindestens eine annähernde Lösung der genannten Frage zu erzielen. Zu diesem Zweck wurden Legierungen mit unterschiedlichen Ausscheidungszuständen verwendet.

Die Reaktorbestrahlung wäre für die experimentelle Durchführung ideal gewesen. Jedoch ist sie mit verschiedenen aber gleichzeitig laufenden Vorgängen gekennzeichnet, die ein kollektives und kompliziertes Bild zurücklassen [Böhm 1974]. Die unterschiedlichen Andeutungen der

Auflösung der Ausscheidung überhaupt und besonders der Neutronenbestrahlung, wie es aus der Literaturübersicht zu entnehmen ist, beweisen diese Schwierigkeiten. In dieser Hinsicht bietet die Ionenbestrahlung folgende Vorteile :

- i) gesteuerte experimentelle Bedingungen während der Bestrahlung, z.B. freie Auswahl der Ionen, der Energie und Schädigungsrate, sowie der Temperatur.
- ii) saubere Proben, d.h. keine radioaktive Kontamination, was die Handhabung der Proben erleichtert.
- iii) gezielte Schädigung innerhalb kurzer Zeit (dies kann auch nachteilig auswirken).

Ein Nachteil der Ionenbestrahlung ist die geringere Eindringtiefe der Ionen und demzufolge der Schädigung, z.B. die Eindringtiefe der 250-keV- Ni^+ -Ionen in Nickeltarget beträgt nur noch ca. 600 Å [Kaletta 1973].

Da sich die Schädigung in sehr dünnen Bereichen befindet, können keine mechanischen (z. B. Härtemessung) oder physikalischen (z.B. elektrische Leitfähigkeit) Untersuchungen durchgeführt werden. In solchem Fall ist TEM die einzige Methode, die in dieser Schädigungstiefe Untersuchungen erlaubt. Man hat die Möglichkeit über die Morphologie der Ausscheidung, über die strahlungsinduzierten Defekte, sowie über deren Wechselwirkung Aufschlüsse zu ermitteln.

Obwohl die neuesten Arbeiten auf diesem Gebiet in der Literatur zitiert sind, muß an dieser Stelle betont werden, daß außer der Arbeit von Nelson et al. [1972] über die Anwendung der Ionenbestrahlung sehr wenig Anhaltspunkte hinsichtlich der experimentellen Durchführung vorlagen. Im Anfangsstadium der vorliegenden Arbeit waren aus diesen Gründen einige empirischen Versuche notwendig, die schließlich zu einer geeigneten Legierung führten. Die im folgenden Kapitel dargestellte Entwicklung ist von diesem Standpunkt zu betrachten und daher ist es auch unerlässlich, über die Legierungsauswahl mit den Ergebnissen zu berichten.

4. VERSUCHSDURCHFÜHRUNG

4.1 Probenmaterial

Aus der Literatur war zu ersehen, daß über den Zusammenhang zwischen den Eigenschaften einer Ausscheidung und ihrer Stabilität unter Bestrahlung sehr unterschiedliche Meinungen vertreten waren. Daher stand hinsichtlich der Auswahl von Legierungen vor allem die Eigenschaften der Ausscheidung wie Form, Verspannung, Atomordnung und Orientierungsbeziehung zur Matrix im Vordergrund.

Die Versuche wurden an Inconel 625- (12,5 mm ϕ), Al-Mg-Si- (50 x 5 mm Platten) Legierungen sowie an für diese Untersuchungen extra hergestellten Fe-Cu-, Ni-Cr-Al- und Ni-Si-Legierungen durchgeführt. Dazu dienten folgende Ausgangsmaterialien : Hochreines Eisen (28 ppm C, 0,16 % O₂), Elektrolyt-Kupfer (> 99,9 %), Mond- oder Inconickel (> 99,99 %), Elektrolyt-Chrom (> 99,9 %), Reinst-Aluminium (> 99,999 %) und Handelsqualität-Silizium (> 98,7 %). Die Legierungen wurden im Induktionsofen unter Vakuum erschmolzen und in Rundkokillen aus Eisen oder Kupfer abgegossen.

Um die Verformbarkeit der Fe-Cu-Legierung zu testen, wurde der 2 kg-Block leicht vorgeschmiedet; er zeigte bereits Risse. Es wurden dann Segmente herausgeschnitten, die auch nach längerer Homogenisierung (850°C - 100 h/15°C) nicht kaltverformt werden konnten, daher wurde für die weiteren Behandlungen das Material im homogenisierten Guß-Zustand verwendet.

Die Ni-Cr-Al-Legierung (20 kg-Block) wurde warmverformt. Der Gußblock wurde auf 1150°C aufgeheizt, 5 Stunden gehalten und bei 980°C - 1180°C auf 16 x 16 mm geschmiedet.

Eine ähnliche Verformbarkeit wurde auch für die Ni-Si-Legierung erwartet, während des Walzens bei 1050°C brach aber der Gußblock (3kg) ab,

und dies trotz einer vorhergegebenen Homogenisierung ($1100^{\circ}\text{C} - 30 \text{ h} \rightarrow$ walzen bei 1050°C). Es stellte sich heraus, daß die Legierung erst oberhalb 1080°C verformt werden konnte, und dementsprechend wurde sie bei etwa 1100°C auf $13,5 \text{ mm } \phi$ stranggepreßt.

Die chemische Analyse der Legierungen ist in Tabelle 1 wiedergegeben.

4.2 Wärmebehandlung

Mit Ausnahme der Al-Mg-Si-Legierung war die Form der anderen Legierungen für weitere Behandlungen geeignet. Von den Platten der Al-Mg-Si-Legierung wurden Streifen herausgesägt, die dann nach einer Weichglühung ($550^{\circ}\text{C} - 2 \text{ h}/10^{\circ}\text{C}$) auf Bleche von $0,5 \text{ mm}$ Dicke kaltgewalzt wurden.

Je nach der Zusammensetzung der Legierung wurden die Proben bei entsprechender Temperatur lösungsgeglüht und erst nach der Feststellung der Homogenität mittels TEM wurden sie ausgelagert. Die verschiedenen Wärmebehandlungen sind in Tabelle 2 zusammengefaßt. Die Abweichung in der Lösungsglühtemperatur der Ni-Legierungen lag bei $\pm 10^{\circ}\text{C}$, alle anderen Temperaturen waren bis $\pm 3^{\circ}\text{C}$ geregelt.

4.3 Probenpräparation für die Bestrahlung

Von dem ausgelagerten Material wurden Plättchen (Al-Mg-Si-Legierung, $15 \times 15 \text{ mm}$) oder Scheiben von $0,5 \text{ mm}$ Dicke abgetrennt. Da sämtliche Legierungen mit Ausnahme der technischen Inconel 625-Legierung verhältnismäßig weich waren, wurden Trennscheiben mit Weichbindemittel und feinkörnigem Schleifmittel unter langsamer Vorschubgeschwindigkeit ($\approx 2 \text{ mm}/\text{min}$) und ständiger Wasserkühlung verwendet, um eine Verformung zu vermeiden.

Beim Naßschleifen und Polieren wurde dann die Probendicke auf etwa $0,2 \text{ mm}$ gebracht, wie sie für die Bestrahlung erforderlich war. Um die mögliche durchs Schleifen entstandene Kaltverformung zu entfernen,

wurde die zu bestrahlende Oberfläche kurzzeitig elektropoliert. Zu diesem Zweck wurde ein Probenhalter nach Abb. 1 verwendet. Da die Probenkanten abgedeckt waren, konnte ein verstärktes Polieren der Kanten vermieden werden und dadurch waren die Stromdichte und der Poliergang gleichmäßig. Weil wegen der Form des Probenhalters das Rühren des Elektrolytes nicht möglich war, trat eine starke Polarisation und somit eine Erhöhung der örtlichen Badtemperatur (bis ca. 40°C) an der Probenoberfläche auf. Dies wurde folgendermaßen verhindert :

- i) hohe Spannung, um die benötigte Stromdichte zu erreichen.
- ii) größere Kathodenfläche, um einen gleichmäßigen Angriff an Anode (Probe) zu erreichen. Dazu diente ein säurebeständiges Stahlblech (100 x 50 x 1 mm) gebogen in Halbkreis ($\approx 80 \text{ mm } \phi$) als Kathode.
- iii) Unterkühlung des Elektrolytes ($-20^{\circ}/-30^{\circ}\text{C}$).
- iv) Polieren für sehr kurze Zeit ($< 10 \text{ s}$).

Die Polierbedingungen sind in Tabelle 3 zusammengefaßt und gelten für oben beschriebene Anoden- und Kathodenform mit einem Anode-zu-Kathode-Abstand von 20 bis 30 mm.

Bei den Proben der Fe-Cu-Legierung mußte allerdings auf das elektrolitische Vorpolieren verzichtet werden, weil aus dem Elektrolyt ein Cu-Niederschlag an der Probe auftrat, der auf die unterschiedlichen elektrochemischen Eigenschaften der Elemente (Cu elektropositiver als Fe) zurückzuführen ist. Aus dem Grund wurden diese Proben nach einer Gefüge-Überprüfung mittels TEM im polierten Zustand bestrahlt.

4.4 Bestrahlung der Proben

Die Proben wurden an einem Beschleuniger der Fa. Danphysik/Dänemark im Institut für Angewandte Kernphysik des Kernforschungszentrums

bestrahlt. Die Targetkammer des Beschleunigers ist mit Turbomolekular- und Ionengetterpumpe ausgerüstet, die ölfreies Vakuum erzeugen. Für die Bestrahlung wurden die jeweiligen Matrix-Ionen mit einer einheitlichen Energie von 250-keV benutzt und die Dosis sowie die Temperatur als Bestrahlungsparameter ausgewählt.

Die Bestrahlung erfolgte mit einem Ionenstrom im Bereich von 1 bis $10 \mu\text{A}/\text{cm}^2$, der einem Ionenfluß von $6,24 \times 10^{12}$ bis $6,24 \times 10^{13}$ Ionen/ cm^2 entspricht. Sämtliche Proben wurden im Dosisbereich von 5×10^{14} bis 2×10^{17} Ionen/ cm^2 ($\pm 10\%$) bestrahlt, dabei wurden Probenmasken (7, 8 oder 10 mm ϕ = Strahldurchmesser an Probe) verwendet, die den Vorteil haben, den bestrahlten Bereich für die Nachuntersuchungen genau zu markieren.

Eine Probenhalterung erlaubte Bestrahlung bis zu 5 Proben ohne die Targetkammer zu belüften, allerdings nur bei der Raumtemperatur ($T_B \approx 50^\circ\text{C}$: einschließlich Temperaturerhöhung bis ca. 30°C wegen der Aufheizung durch den Ionenstrahl). Die Bestrahlung bei höheren Temperaturen mußte mit Einzelproben durchgeführt werden. Die Probe und ein NiCr-Ni-Thermoelement, das die Temperatur in unmittelbarer Nähe von dem bestrahlten Bereich maß, wurden auf einen Elektronenstrahlheizer (300 W max. Leistung) mit Hilfe einer Molybdänmaske festgeklemmt. In Abb. 2 ist dieser Arbeitsvorgang schematisch dargestellt. Die Bestrahlung bei höheren Temperaturen lief so ab :-

- i) Die Probe wurde eingebaut (Abb. 2) und mechanisch so justiert, daß der Strahl einen senkrechten Beschuß geben konnte.
- ii) Bei einem Vakuum besser als 10^{-7} Torr wurde die Probe auf die entsprechende Bestrahlungstemperatur T_B aufgeheizt, 5 Minuten lang gehalten und abgekühlt. Dieser Schritt war notwendig, um ein stabiles Vakuum während der Bestrahlung zu sichern.

- iii) Nachdem das Vakuum besser als 10^{-7} Torr wurde, wurde die Probe nochmals auf T_B aufgeheizt, vor der Bestrahlung 5 Minuten lang gehalten und bei T_B bestrahlt (Vakuum $< 10^{-6}$ Torr). Dabei war die Leistung des Elektronenstrahlheizers so reguliert, daß die Temperaturschwankungen maximal $\pm 10^\circ\text{C}$ betragen.
- iv) Nach Beendigung der Bestrahlung wurde der Elektronenstrahlheizer sofort abgeschaltet.

Die Abkühlungsgeschwindigkeit für die Probe war von der Dosis und Temperatur abhängig. Abb. 3 zeigt einen Ausschnitt einer Abkühlungskurve nach der Bestrahlung bei 725°C . Bei Abkühlung auf 200°C wurde die Targetkammer belüftet und die Probe herausgenommen. In der Regel dauerte eine Bestrahlung etwa 5 Stunden.

4.5 Die Probenanalyse mit Hilfe der Transmissionselektronenmikroskopie (TEM)

4.5.1 Herstellung der TEM-Proben

Wegen der geringeren Eindringtiefe der Ionen, einige $100 \overset{\circ}{\text{Å}}$ (s. Tabelle 4), konnte außer Ultraschallreinigung keine Nachbehandlung der bestrahlten Fläche, wie Abtragung, vorgenommen werden. Diese Fläche wurde daher stets mit dem Lack Lacomit der Fa. Canning/England, geschützt. Die Probe wurde von der nichtbestrahlten Seite mittels Naßschleife von $0,2 \text{ mm}$ auf $0,1 \pm 0,02 \text{ mm}$ abgeschliffen, danach wurden TEM-Proben von $2,3 \text{ mm } \phi$ ausgestanzt und von der nichtbestrahlten Seite (back-thinning) mit Hilfe eines Jet-Poliergeräts abgedünnt. Aus den verschiedenen zu diesem Zweck verwendeten Elektrolyten sind nur diejenigen in Tabelle 5 zusammengestellt, die unter angegebenen Polierbedingungen Folien reproduzierbarer Dicke lieferten.

4.5.2 TEM-Untersuchungen

Die Proben wurden am Siemens Elmiskop 1A und hauptsächlich am

JEM 200 A der Firma JEOL untersucht. Dabei wurde die Probe immer von der nichtbestrahlten Seite durchstrahlt und für die quantitative Auswertung (Dunkelfeld-Abbildungen) ein Bereich etwa 2 bis 10 μm von dem Lochrand entfernt verwendet, da die Foliendicke in dem Bereich fast konstant war. Zum Beispiel betrug die Foliendicke der Ni-Cr-Al-Legierung in diesem Bereich durchschnittlich $1500 \pm 300 \text{ \AA}$, so daß für foliendickenabhängige Parameter wie Teilchenkonzentration und Volumenanteil der Fehler $\pm 20 \%$ war.

Es wurden Hellfeld- und zentrierte Dunkelfeldabbildungen hauptsächlich für die Teilchenmorphologie verwendet (Abb. 4). Wegen der verhältnismäßig schwachen Intensität des Überstrukturreflexes waren entsprechend lange Belichtungszeiten, bis zu 3 Minuten in bestrahlten Proben, erforderlich, um die Teilchen in Anwesenheit von Defektstrukturen formtreu abzubilden.

Die quantitative Auswertung der Teilchengröße wurde einheitlich an Abzügen von 120000-facher Vergrößerung (Originalvergrößerung 40000) und an dem Teilchenzählgerät TGZ3 der Fa. Zeiss/Oberkochen vorgenommen. Die kugelförmigen Teilchen, die auf planarem Schnitt, d. h. auf dem Bild, kreisförmig erscheinen, lassen sich ohne Formkorrektur auswerten. Eine Abweichung in dieser Form wurde so kompensiert, daß durch die Einstellung der Blende die Fläche ausgeglichen war. Der maximale subjektive Fehler von etwa $\pm 0,5 \text{ mm}$ bei der visuellen Einstellung verfälschte die Teilchengröße um $\pm 40 \text{ \AA}$ bei 120000-facher Vergrößerung. Es wurden pro Meßwert mindestens 500 und in Regel ca. 1000 Teilchen von 2 TEM-Proben ausgewertet, um den Fehler möglichst gering zu halten.

Aus der gezählten Anzahl der Ausscheidungen n_i in der i-ten Klasse mit einem gemessenen Durchmesser d_i wurden dann folgende Parameter mittels des Computerprogrammes ausgewertet [Schneider 1974]:

1) mittlerer Teilchendurchmesser ($\overset{\circ}{\text{Å}}$)

$$\bar{d} = \frac{\sum_1^i n_i \times d_i}{n} \quad (3)$$

$$n = \sum_1^i n_i$$

2) mittlere Teilchenkonzentration (cm^{-3})

$$\bar{N} = \frac{n}{F_p \times t_p} \quad (4)$$

F_p = Probenfläche
 t_p = Probendicke

3) mittleres Teilchenvolumen (cm^3)

$$\bar{V} = \frac{\sum_1^i n_i \times \frac{\pi}{6} d_i^3}{n} \quad (5)$$

4) mittlerer Volumenanteil der Ausscheidungen (%)

$$\bar{V}_f = \frac{\sum_1^i n_i \times \frac{\pi}{6} d_i^3}{F_p \times t_p} \times 100 \quad (6)$$

Daraus wurde die Konzentration $c(\text{At} \%)$ für die ausgeschiedene Menge der Ni_3Al - sowie Ni_3Si -Ausscheidungen berechnet,

$$c = \bar{V} \times \bar{N} \times p \quad (7)$$

wobei c das Produkt des Teilchenvolumens \bar{V} mit der Teilchenkonzentration \bar{N} und dem Atomanteil (At %) der gelösten Atome in Ausscheidung p ist. Die Ni_3Al - und Ni_3Si -Ausscheidungen enthalten 25 At % (=p) der jeweiligen gelösten Atome. Im Vergleich zu dem $\pm 20 \%$ -Fehler in der Foliendicke ist der subjektive Fehler von ca. $\pm 50 \overset{\circ}{\text{Å}}$ im Teilchendurchmesser zu vernachlässigen, da er sich bei z. B. $d = 500 \overset{\circ}{\text{Å}}$ und $n = 625$ Messungen auf nur noch $\pm 0,4 \%$ ausmittelt. Somit ist der Gesamtfehler der berechneten Konzentration c ($3 \times 0,4 + 20 =$) $\pm 21,2 \%$.

5. VERSUCHSERGEBNISSE

Es wird über die Ergebnisse der untersuchten Legierungen, die die angegebenen Ausscheidungen enthielten, in folgender Reihenfolge berichtet :

<u>Legierung</u>	<u>Ausscheidung</u>
Inconel 625	γ^+ -Ni ₃ (NbX)
Al-Mg-Si	β' , $\beta' + \beta$ - Mg ₂ Si
Fe-Cu	Cu
Ni-Cr-Al	γ' -Ni ₃ Al
Ni-Si	γ' -Ni ₃ Si

Dabei wird ein kurzer Überblick über das Ausscheidungsverhalten der jeweiligen Legierung und die Struktur der Ausscheidung vorangestellt. Die Bestrahlungsdosen werden in dpa angegeben (s. Anhang).

5.1 Inconel 625-Legierung

Um den Bereich für die kritischen Bestrahlungsparameter - insbesondere die Dosis - auszuwählen, wurden die Experimente zunächst an dieser Legierung durchgeführt.

5.1.1 Das Ausscheidungsverhalten

In Inconel 625-Legierung scheidet sich die geordnete, metastabile γ^+ -Ni₃(NbX)-Phase kohärent mit der Matrix aus. Da sie eine innen-zentriert-tetragonale Struktur hat und die Matrix in c-Richtung verspannt ($\Delta a_c \approx +2,15\%$, Zwischengittertyp), treten plättchenförmige Ausscheidungen auf, die sich bei längerer Auslagerung in die stabile, inkohärente Ni₃(NbMo)-Phase umwandeln [Böhm et al. 1970].

5.1.2 Einfluß der Bestrahlung auf die Stabilität der γ^+ -Ausscheidungen

Nach der Bestrahlung mit einer Dosis von 396 dpa bei Raumtemperatur beobachtet man eine vollständige Auflösung der γ^+ -Teilchen, Abb. 5,

und zwar sowohl der kleineren (Dicke $t \approx 200 \text{ \AA}$, Länge = Breite $l \approx 1000 \text{ \AA}$) als auch der größeren ($t \approx 400 \text{ \AA}$, $l \approx 1600 \text{ \AA}$) Teilchen. Die kleinen Teilchen (Abb. 5a) werden sogar nach einer Dosis von 33 dpa aufgelöst. Für die Untersuchung der Dosisabhängigkeit der Auflösung wurde ein Auslagerungszustand (216 h bei 675°C) gewählt, der zu Ausscheidungen mittlerer Größe ($t \approx 250 \text{ \AA}$, $l \approx 650 \text{ \AA}$) führte (Abb. 6a).

Wegen der Verspannung ($+\Delta a$) zeigen die γ^+ -Ausscheidungen im unbestrahlten Zustand einen starken Grenzflächenkontrast, Abb. 6a. Bereits nach 3 dpa ($T_B = 50^\circ \text{C}$) verschwinden die γ^+ -Überstruktureflecke, obwohl die Teilchen in Hellfeld-Abbildung sichtbar bleiben, zugleich beobachtet man ein Verschwinden des starken Grenzflächenkontrastes, wie die Abb. 6b-e für verschiedene Orientierungen zeigen. Da diese Erscheinung auch bei 7 dpa auftrat, wurde angenommen, daß es sich um einen strahlungsinduzierten Effekt handelt, der im Kap. 6. 3. 2 eingehend diskutiert wird. Nach einer weiteren Bestrahlung entsprechend 66 dpa wurden die γ^+ -Ausscheidungen aufgelöst, Abb. 7. Innerhalb des Dosisbereichs von 3 bis 396 dpa ($T_B = 50^\circ \text{C}$) wurde kein Übergang von der metastabilen γ^+ - in die stabile $\text{Ni}_3(\text{NbMo})$ -Phase beobachtet.

5.1.3 Die strahlungsinduzierten Defektstrukturen

Die Form der gebildeten Defektstrukturen ist von der Dosis abhängig, Abb. 8. Bei kleineren Dosen bildeten sich die "black dots", oberhalb etwa 40 dpa lag dagegen die Strahlenschädigung in Form von einem Versetzungsnetz vor, dehnte sich bis zu den Korngrenzen aus und änderte sich abgesehen von ihrer zunehmenden Dichte auch nach weiter Bestrahlung nicht.

Diese Entwicklung der Defektstrukturen - bei beginnender Bestrahlung zuerst die Bildung von "black dots" und dann mit zunehmender Dosis der Übergang zu einem dichten Versetzungsnetz - wurde von den Vorauslagerungsbedingungen nicht beeinflusst, wohl aber von dem Materialzustand, Abb. 9. Im Gegensatz zu dem ausgelagerten Zustand blieb die

Strahlenschädigung im lösungsgeglühten Zustand auch bis zu 396 dpa black-dot-förmig, was darauf hindeutet, daß die Form der Defektstrukturen im wesentlichen von der Anwesenheit der Ausscheidungen beeinflusst wird.

Auf Grund dieser Versuche erschien es zweckmäßig, die weiteren Bestrahlungen in einem Dosisbereich von 2 bis 400 dpa durchzuführen.

5.2 Al-Mg-Si-Legierung

Nachdem sich gezeigt hatte, daß die kohärenten γ^+ -Ausscheidungen in Inconel 625-Legierung durch die Bestrahlung aufgelöst werden, stellte sich die Frage, welchen Einfluß die Bestrahlung auf die Stabilität metastabiler, teil- oder inkohärenter Ausscheidungen mit geordneter Atomordnung hat. Dieser Frage wurde durch Raumtemperaturbestrahlung ($T_B = 50^\circ\text{C}$) an der Al-1,5 Gew% Mg_2Si -Legierung nachgegangen. Diese Legierung bietet den Vorteil, daß sich die Al-Atome an der Bildung der Mg_2Si -Ausscheidungen nicht beteiligen, d. h. daß durch die Bestrahlung von Al-Ionen keine Änderung des Verhältnisses von Mg zu Si-Atomen in der Ausscheidung zu erwarten ist.

5.2.1 Das Ausscheidungsverhalten

Das ternäre Al-Mg-Si-System kann als quasi-binäres Al-(Mg_2Si)-System betrachtet werden. Unter thermischer Auslagerung läuft die Ausscheidung so ab :



Die teilkohärente β' - (Zwischengittertyp) sowie die inkohärente β -Phase hat eine geordnete Struktur, allerdings gibt es über ihre Orientierungsbeziehungen zur Matrix unterschiedliche Auffassungen [Thomas 1961/62, Jacobs 1972, Skalicky und Oppolzer 1972].

5.2.2 Einfluß der Bestrahlung auf die Stabilität der β' -Ausscheidungen

Die stabförmigen β' -Ausscheidungen, die durch eine dreißig-minütige Auslagerung bei 300°C gebildet wurden, ($d = 150\text{-}650 \text{ \AA}$, $l = 4000\text{-}6000 \text{ \AA}$) zeigen je nach der Bragg'schen Lage Grenzflächenversetzungen (A in Abb. 10a) und einige von ihnen zeigen entlang der Länge Verspannung, d. h. daß sie teil-kohärent sind.

Bei der Bestrahlung wurden bis zu der Dosis von 9 dpa ($T_B = 50^{\circ}\text{C}$) keine Veränderungen festgestellt, Abb. 10. Die Teilchen behielten die Grenzflächenversetzungen (A in Abb. 10c) sowie den (Moiré-) Kontrast (B in Abb. 10b) bei, was auch mit Hilfe der Dunkelfeld-Abbildungen bestätigt wurde, Abb. 11a + b. Ein Oberflächeneffekt, abhängig von der Eindringtiefe der Ionen, war auszuschließen, da die Untersuchung in ca. 4000 \AA -Eindringtiefe der Ionen keine wesentlichen Unterschiede zeigte, Abb. 11c+d. Erst bei 44 dpa waren Veränderungen wie Verlust des Kontrastes und Grenzflächenversetzungen zu beobachten, Abb. 12. Der in Abb. 12a zustandegekommene Effekt ist kein optischer- oder Oberflächeneffekt, da das Teilchen A innerhalb der Folie liegt, wie Abb. 12b es bestätigt. Bei dieser Dosis waren fast alle Teilchen ($d < 500 \text{ \AA}$) aufgelöst, ein $\beta' \rightarrow \beta$ -Übergang wurde dabei nicht festgestellt.

5.2.3 Einfluß der Bestrahlung auf die Stabilität der ($\beta' + \beta$)-Ausscheidungen

Der Zustand vor der Bestrahlung zeigt Abb. 13. Die β' -Ausscheidungen sind stabförmig ($d = 300\text{-}500 \text{ \AA}$, $l = 2000\text{-}10000 \text{ \AA}$), von Grenzflächenversetzungen umgeben, und zeigen (Moiré-) Kontrast, Abb. 13b, der vermutlich wegen der Grenzflächenversetzungen entsteht. Im Vergleich zur Abb. 10a ist hier die Ausscheidung fortgeschritten, es haben sich bereits die β -Ausscheidungen an der β' -Phase gebildet, Abb. 13c.

Nach einer Bestrahlung mit Al-Ionen entsprechend 18 dpa ($T_B = 50^{\circ}\text{C}$) waren die kleinen β' -Ausscheidungen aufgelöst. Die noch vorhandenen

Ausscheidungen zeigen an Stelle des ursprünglichen Kontrastes sowie der Grenzflächenversetzungen einen diffusen Ring, Abb. 14a, ähnlich wie in Abb. 6 und Abb. 12. Nach einer Dosis von 90 dpa wurden keine β' -Ausscheidungen mehr beobachtet, statt dessen trat eine feine Dispersion der β -Ausscheidungen auf, Abb. 14b. Diese Umlösung - die Auflösung der β' -Phase zugunsten der β -Phase - war sogar im Lichtmikroskop sichtbar, Abb. 15.

5.2.4 Die strahlungsinduzierten Defektstrukturen

Die black-dot-förmigen Defekte bildeten sich bereits nach 4 dpa und an ihrer Gestaltung änderte sich auch bis zu 18 dpa nichts. Dabei war eine gleichmäßige Verteilung der "black dots" sowohl in der Umgebung der Ausscheidungen, Abb. 10, als auch der Korngrenzen, Abb. 16, zu beobachten, ohne daß eine wegen der Ausheilprozesse resultierende verarmte Zone dadurch entstanden war, was auch in unterschiedlichen Probendicken festgestellt wurde, Abb. 11. Die verbleibende Schädigung oberhalb 44 dpa war allerdings von der Stabilität der Ausscheidungen abhängig. Im β' -Zustand wurde festgestellt, daß mit einsetzender Auflösung der β' -Ausscheidungen fast keine Strahlenschäden in der Matrix sichtbar sind, Abb. 12. Dagegen lag in dem ($\beta' + \beta$)-Zustand die strahlungsinduzierten Defekte als Einzelversetzungen vor, Abb. 14b, wobei anzumerken ist, daß sämtliche Versetzungen vermutlich wegen der Wechselwirkung mit (Punkt-) Defekten Sprünge erhielten (z.B. A und B in Abb. 14b).

5.3 Fe-Cu-Legierung

Aus den bisherigen Versuchen kann man entnehmen, daß es hinsichtlich des Auflösungsmechanismus von Interesse ist, die strahlungsinduzierte Auflösung von Ausscheidungen einer stabilen Phase mit einer geometrisch einfachen Form zu untersuchen. Hierzu wurde eine Fe-1,23 % Cu-Legierung ausgewählt.

5. 3. 1 Das Ausscheidungsverhalten

In der Fe-Cu-Legierung [Hornbogen und Glenn 1960, Hornbogen und Jung 1964] scheidet sich das Kupfer in Form von Kugeln ($d < 500 \text{ \AA}$) aus, die nach weiterer Auslagerung Stabform annehmen. Da die Teilchen flächenzentrierte Struktur haben, ist mit der innenzentrierten Fe-Matrix keine Kohärenz zu erwarten, solange die Teilchen kugelförmig bleiben. Was die TEM-Abbildung betrifft, tritt in der Umgebung der kugelförmigen Cu-Teilchen keine Verspannung auf.

5. 3. 2 Einfluß der Bestrahlung auf die Stabilität der Cu-Ausscheidungen

Die Proben wurden bei 600°C - 10 h ausgelagert, um Cu-Ausscheidungen von $d \approx 300 \text{ \AA}$ zu erreichen (Abb. 17a), und bei Raumtemperatur ($T_B = 50^\circ\text{C}$) mit 250-keV- Fe^+ bestrahlt.

Bereits nach einer Dosis von 3 dpa waren "black-dots" in so hoher Zahl vorhanden, daß ihre Unterscheidung von den Ausscheidungen schwer ist. Nach einer Bestrahlung entsprechend 66 dpa konnte eine vollständige Auflösung festgestellt, Abb. 17b, der Auflösungsverlauf konnte aber aus obigen Gründen nicht verfolgt werden.

5. 3. 3 Die strahlungsinduzierten Defektstrukturen

Bei 3 dpa wurden "black-dots" beobachtet, die die Ausscheidungen voll bedeckten, auch das Kippen und Drehen der Probe brachte keine Verbesserung der Abbildungsbedingungen. Abb. 17b zeigt die Schädigung nach einer Dosis von 66 dpa. Die feinen Versetzungen und besonders die mit Folie abgeschnittenen Stoßpunkte der Versetzungen liefern ausscheidungsähnliche Abbildung, sind aber keine Ausscheidungen, wie es durch Kontrast-Experimente festgestellt wurde.

Diese experimentellen Schwierigkeiten in der Unterscheidung von Ausscheidungen und Strahlendefekten ließen eine weitere Untersuchung an

der Fe-Cu-Legierung nicht sinnvoll erscheinen, da die Cu-Ausscheidungen überhaupt keine Überstrukturreflexe aufweisen.

5.4 Ni-Cr-Al-Legierung

Aus den obengenannten Gründen erschien es zweckmäßig, für quantitative Untersuchungen Legierungen zu nehmen, deren Ausscheidungen leicht nachweisbar sind. Dies ist z. B. der Fall bei Legierungen mit Ausscheidungen, die intensive Überstrukturreflexe aufweisen, so daß mit Hilfe der Dunkelfeld-Methode die Ausscheidungen auch in Anwesenheit von Defekten abgebildet werden können. Die Suche nach solcher Legierung führte zu den Ni-Legierungen mit γ' -Ausscheidungen.

Die Vorversuche an Inconel X-750 und RGT-3 ergaben, daß die γ' -Phase in diesen technischen Legierungen - vermutlich wegen des hohen Ti-Gehalts und der resultierenden Verspannung - verhältnismäßig schwache Überstrukturreflexe aufweist. Daher wurde eine Ni-17,83 % Cr-2,85 % Al-Legierung ausgewählt, die folgende Vorteile bietet :-

- 1) Die γ' -Ni₃Al-Ausscheidungen scheiden sich ohne nennenswerte Verspannung kohärent mit der Matrix aus, dabei kommt eine Umwandlung der Art metastabil → stabil nicht vor.
- 2) Wegen der Nullanpassung und der daraus resultierenden homogenen Keimbildung haben Versetzungen und damit auch strahlungsinduzierte Versetzungsloops keinen Einfluß auf das Ausscheidungsverhalten, weiterhin können die gebildeten Ausscheidungen auf Grund der Nullanpassung keine Anziehung zu den Defekten ausüben.
- 3) Es liegt eine statistische Teilchenverteilung vor und sämtliche Teilchen in der Folie können mit einem Überstrukturreflex abgebildet werden, sofern die Bedingungen erfüllt sind (Abb. 4).

5.4.1 Das Ausscheidungsverhalten

Innerhalb des $600^{\circ} - 750^{\circ}\text{C}$ - Temperaturbereiches scheiden sich die geordneten, stabilen γ' -Ni₃Al-Ausscheidungen kohärent mit der ungeordneten Matrix aus, ohne daß dabei eine nennenswerte Verspannung ($\Delta a = +0,05\%$) auftritt, da die Gitterkonstanten der Ausscheidung und Matrix fast gleich sind. Auf Grund dieser guten Anpassung ist bisher allein durch die thermische Auslagerung der Übergang kohärent \rightarrow inkohärent nicht beobachtet worden [Taylor und Floyd 1952/53, Taylor und Hinton 1952/53, Gleiter und Hornbogen 1967, Hornbogen und Roth 1967].

5.4.2 Die Bestrahlungsparameter

Die Proben wurden bei $700^{\circ}\text{C} - 864\text{ h}$ vorausgelagert ($\bar{d} = 556 \text{ \AA}$, $\bar{N} = 8,5 \times 10^{14} \text{ Teilchen/cm}^3$, $\bar{V}_f = 9,2\%$) und mit 250-keV-Ni⁺ bestrahlt. In den nachfolgenden Bestrahlungsversuchen wurde hauptsächlich der Dosisbereich 2 bis 398 dpa bei Temperaturen zwischen 50° und 725°C untersucht. Im Vergleich zu der Vorauslagerungstemperatur ($T_A = 700^{\circ}\text{C}$) lassen sich die ausgewählten Bestrahlungstemperaturen (T_B) in drei Bereichen anordnen :-

- i) Es tritt keine thermische Ausscheidung auf ($50^{\circ}, 340^{\circ}\text{C}$).
- ii) Die Ausscheidung fängt an, ist aber vernachlässigt (525°C).
- iii) Es kommt zur verstärkten Ausscheidung ($625^{\circ}, 725^{\circ}\text{C}$).

5.4.3 Die TEM-Meßdaten

Die Meßdaten aus der TEM-Auswertung sind in Tab. 6 zusammengefaßt. Zusätzlich zu den im Kap. 4.5.2 gegebenen Parametern sind die Prozentualänderungen in der Teilchenkonzentration (ΔN) und in dem Volumenanteil (ΔV_f) ermittelt: -

$$\Delta N = \frac{N_B - N_o}{N_o} \times 100 \quad (8)$$

N_o sowie N_B ist die mittlere Teilchenkonzentration vor, bzw. nach der Bestrahlung.

$$\Delta V_f = \frac{(V_f)_B - (V_f)_o}{(V_f)_o} \times 100 \quad (9)$$

$(V_f)_o$ sowie $(V_f)_B$ ist der mittlere Volumenanteil der Ausscheidungen vor, bzw. nach der Bestrahlung.

In N_o sowie $(V_f)_o$ ist die Anzahl bzw. der Anteil der Ausscheidungen, die während der Bestrahlung im unbestrahlten Bereich ausgeschieden waren, nicht berücksichtigt.

5.4.4 Einfluß der Bestrahlung auf die Stabilität der γ' -Ausscheidungen

Bevor wir den Einfluß der Bestrahlungsparameter betrachten, ist es notwendig, zunächst die Morphologie der Ausscheidungen zu überprüfen.

5.4.4.1 Die Morphologie der γ' -Ausscheidungen unter Bestrahlung

Sämtliche Dunkelfeld-Abbildungen sind mit dem $\langle 100 \rangle$ oder $\langle 110 \rangle$ -Überstrukturreflex aufgenommen. Unabhängig von der Dosis, Temperatur sowie Teilchengröße waren die strahlungsinduzierten Defektstrukturen stets in der Matrix zu finden, dabei wurde keine Änderung der Morphologie bei den γ' -Ausscheidungen festgestellt. Die scheinbaren Veränderungen wie in Abb.18, die bis 625°C auftreten und bei 725°C verschwinden, Abb.19 (vergl. Abb.18 und 19), sind optische Effekte, die wegen der an der Ausscheidung:Matrix-Grenzfläche

liegenden strahlungsinduzierten Versetzungen (und Loops) zustandekommen ; sie werden im Zusammenhang mit dem Fragmentierungsmodell im Kap. 6. 2.1 behandelt.

5. 4. 4. 2 Einfluß der Dosis und Temperatur

Nach der Raumtemperaturbestrahlung ($T_B = 50^\circ\text{C}$) war bereits nach 2 dpa die Intensität der γ' -Überstrukturereflexe auch im Zwei-Strahl-Fall so vermindert, daß ein Nachweis der Ausscheidungen im Dunkelfeld nicht möglich war. Bis 40 dpa waren einige Ausscheidungen im Hellfeld, besonders in der Umgebung der Bragg'schen Konturen, sichtbar und lösten sich nach weiterer Bestrahlung auf. Erst in den bei höheren Temperaturen bestrahlten Proben waren die Ausscheidungen im Dunkelfeld nachweisbar und damit konnte die Teilchenauflösung quantitativ verfolgt werden, wobei sich zwei Temperaturbereiche voneinander unterscheiden lassen : a) 340° bis 625°C und b) 725°C .

Der Einfluß der Bestrahlung auf die Teilchengrößenverteilung für die obigen Temperaturbereiche ist anhand der Abb. 20 und 21 dargestellt. Abgesehen von geringfügigen Veränderungen bei den jeweiligen Bestrahlungstemperaturen trat bis 625°C keine wesentliche Änderung in der Teilchengrößenverteilung auf, bei einer konstanten Temperatur blieb die Verteilung auch mit zunehmender Dosis fast unverändert (z.B. Abb. 20). Die ursprüngliche Teilchengröße ($\bar{d} = 556 \text{ \AA}$) nahm bis zu 40 dpa geringfügig ab (ca. 50 \AA) und änderte sich auch nach weiterer Bestrahlung kaum noch, Abb. 22. Innerhalb des 2-40 dpa Dosisbereiches ($T_B < 725^\circ\text{C}$) ging die Teilchenkonzentration bis zu 30 % zurück, bis 525°C blieb sie auch bis 398 dpa fast konstant, dagegen trat eine leichte Zunahme bei 625°C auf (Abb. 23).

Im Vergleich zu diesem Verhalten bis 625°C wurde bei 725°C eine beschleunigte Teilchenauflösung unter Bestrahlung festgestellt, obwohl bei dieser Temperatur eigentlich eine verstärkte thermische Ausscheidung zu erwarten war. Die Teilchengrößenverteilung rückte mit zunehmender

Dosis stets zu kleineren Teilchengrößen und die Teilchenkonzentration nahm ab (Abb. 21-23). Nach 40 dpa waren keine Ausscheidungen nachweisbar, weder in der Beugung noch in den Bragg'schen Konturen im Hellfeld, Abb. 24, 25. Dagegen waren im unbestrahlten Bereich die Ausscheidungen vorhanden und vergleichbare Änderungen in ihrer Größe, Verteilung sowie Konzentration hatten nicht stattgefunden (Abb. 25a).

Der Einfluß der Bestrahlungstemperatur auf den Auflösungsverlauf (z.B. Abb. 26) läßt sich am deutlichsten an Veränderungen in der Ausscheidungsmenge verfolgen (Abb. 27), ein Parameter, der sich aus dem Teilchenvolumen und der Teilchenkonzentration ergibt (s. Kap. 4.5.2). Aus der Abb. 27 kann man entnehmen, daß bis 625°C und bei einer konstanten Dosis die Ausscheidungsmenge mit zunehmender Temperatur leicht ansteigt, mit zunehmender Dosis nimmt sie allerdings ab. Der Auflösungsverlauf und seine Dosisabhängigkeit sind bei 725°C deutlicher, bei dieser Temperatur waren keine strahlungsinduzierten Defektstrukturen in der Matrix sichtbar. Gegensätzlich zu diesem Verhalten unter Ionenbestrahlung setzt während der Auslagerung keine vergleichbare thermische Auflösung ein, wenn die Auslagerungstemperatur von 700°C ($c_{Al} = 2,3 \text{ At } \%$) auf 750°C ($c_{Al} = 1,9 \text{ At } \%$) erhöht wird (A und B in Abb. 27, P-0 in Tab. 6, PX-NB in Tab. 7).

5.4.4.3 Die teilchengrößenabhängige Auflösung

Aus den bisherigen Versuchen folgte nicht eindeutig, ob die großen oder die kleinen Teilchen unter Bestrahlung stabil sind, da durch die Bestrahlung eine Verschiebung der Teilchenverteilung vorkam. Es wurde daher eine bei 750°C - 200 h ausgelagerte Probe bei 600°C zu 40 dpa bestrahlt (Abb. 28). Die Meßdaten sind in Tab. 7 zusammengefaßt.

Die Abb. 28b stellt den eindeutigen Nachweis der Stabilität von größeren Teilchen ($d > 200 \text{ \AA}$) dar, wobei die feine Dispersion der kleineren Teilchen ($d \approx 70 \text{ \AA}$) während der Bestrahlung vollständig aufgelöst wird. Eine leichte Zunahme der Teilchengröße ($\bar{d} = 663 \text{ \AA} \rightarrow 675 \text{ \AA}$), begleitet

von Abnahme der Teilchenzahl ($\Delta N = -13\%$) und des Volumenanteils ($\Delta V_f = -27\%$), deutet weiterhin auf die bevorzugte Auflösung der kleinen Teilchen (nicht berücksichtigt in diesen Werten ist die bevorzugt aufgelöste feine Dispersion, d. h. die zusätzliche Ausscheidungsmenge).

5.4.5 Die strahlungsinduzierten Defektstrukturen

Wie in der Inconel 625- und Al-Mg-Si-Legierung waren die strahlungsinduzierten Defekte stets in der Matrix zu finden und erstreckten sich bis zu den Korngrenzen. Bereits nach 2 dpa bei Raumtemperatur ($T_B = 50^\circ\text{C}$) bildeten sich die "black dots", die mit zunehmender Dosis in ein komplexes Versetzungsnetz übergingen. Ein ähnliches Verhalten wurde bis 525°C festgestellt, jedoch war die Loopbildung mit zunehmender Temperatur erkennbar, Abb. 29.

Im Vergleich zu dem Temperaturbereich von 50° bis 525°C , in dem bei kleineren Dosen die Loops auftraten, bis 40 dpa ihre Dichte zunahm und eine weitere Bestrahlung keine sichtbare Änderung brachte (Abb. 29), zeigte die Strahlenschädigung bei 625°C eine deutlichere Dosisabhängigkeit, Abb. 30. Nach 2 dpa waren Einzelversetzungen vorhanden, die Loops bildeten sich aber erneut nach 20 dpa und mit zunehmender Dosis nahm ihre Größe zu, die Dichte jedoch ab.

Die Entwicklung der Defektstrukturen wurde eher von der Bestrahlungstemperatur als von der Dosis abhängig gefunden. Abb. 31 verdeutlicht den Einfluß der Bestrahlungstemperaturen auf die Strahlenschädigung in der Matrix nach einer Dosis von 40 dpa - eine Dosis bis welche die Maximaländerungen in der Größe der γ' -Teilchen auftraten. Man sieht, daß die Dichte der Defekte mit zunehmender Temperatur abnimmt. Bei 725°C wurden bis 40 dpa keine Defektstrukturen festgestellt, allerdings war eine beschleunigte Auflösung der γ' -Ausscheidungen zu beobachten.

Ein anderer Parameter, der die Art der Strahlenschädigung wesentlich beeinflusst, ist der Material-Zustand, Abb. 32. Im lösungsgeglühten Zustand war bei Raumtemperaturbestrahlung ($T_B = 50^\circ\text{C}$) die

Strahlenschädigung black-dot-förmig, dagegen hatte sich im ausgelagerten Zustand ein Versetzungsnetz gebildet, was auch in Inconel 625-Legierung bereits festgestellt wurde (Abb. 9). Bei 625°C trat allerdings dieser Unterschied nicht mehr so ausgeprägt auf, Abb. 32c und d, die Art der Schädigung war in beiden Zuständen die gleiche, es bildeten sich Franksche- und prismatische Loops. In der lösungsgeglühten Probe bildeten sich bei der Bestrahlungstemperatur von 625°C die γ' -Ausscheidungen. Sie waren kugelförmig, hatten die normale γ - γ' -Beziehung und waren größer im bestrahlten ($d \approx 150-200 \text{ \AA}$) als im unbestrahlten Bereich ($d < 100 \text{ \AA}$). Es liegen keine Anhaltspunkte für eine heterogene Keimbildung ($\Delta a_{\gamma'} \approx 0$) oder fragmentierungsähnliche Erscheinung der im bestrahlten Bereich gebildeten γ' -Ausscheidungen vor, eine Porenbildung wurde auch nicht beobachtet.

Erst nach 199 dpa bei 625°C bildeten sich vereinzelte Poren mit recht unterschiedlicher Morphologie, Abb. 33. Besonders interessant in Abb. 33c und d ist die Gestaltung der Versetzungen und ihr Einfluß auf die Porenbildung. Die kletternden Versetzungen haben Sprünge erhalten, an deren Knotenpunkten sich die Poren gebildet haben (z.B. A in Abb. 33d), wobei nach der Bestrahlung bei 725°C oberhalb 40 dpa keine γ' -Ausscheidungen mehr vorhanden waren. Die im Hintergrund erscheinenden Ausscheidungen in Abb. 33c und d sind während der Bestrahlung entstanden, dabei handelt es sich um eine inkohärente Phase (oder Phasen) ungeklärter Struktur.

5.5 Ni-Si-Legierung

Die Ni-6, 32 % Si-Legierung wurde aus folgenden Gründen untersucht :-

- 1) Die γ' -Ni₃Si- und die γ' -Ni₃Al-Ausscheidungen sind Strukturähnlich. Da die γ' -Ni₃Al-Ausscheidungen nur bei einer Bestrahlungstemperatur von 725°C aufgelöst wurden, sollte überprüft werden, ob bei dieser Bestrahlungstemperatur auch die γ' -Ni₃Si-Ausscheidungen ein ähnliches Auflösungsverhalten aufweisen.

- 2) Im Vergleich zu der untersuchten γ' -Ni₃Al-Phase ($\Delta a \approx 0$) ist die γ' -Ni₃Si-Phase verspannt und vom Leerstellentyp. Daher sollte auch die Frage untersucht werden, ob die Gitterverspannung einen Einfluß auf die Auflösung hat.

5.5.1 Das Ausscheidungsverhalten

Die γ' -Ni₃Si-Ausscheidungen sind stabile und kohärente Ausscheidungen mit geordneter Atomordnung, allerdings haben sie eine negative Verspannung um sich ($\Delta a = -0,3\%$, Leerstellentyp) [Hornbogen und Roth 1967]. Die Lösungsglüh-temperatur ($= T_{\text{solvus}}$) der gewählten Legierung liegt um 850°C [Rastogi und Ardell 1969, 1971].

5.5.2 Einfluß der Bestrahlung auf die Stabilität der γ' -Ausscheidungen

Nach der Auslagerung bei $775^{\circ}\text{C} - 0,5 \text{ h}$ scheideten sich statistisch verteilte verspannte Teilchen aus ($\bar{d} = 634 \text{ \AA}$), dabei hatten sie sich sowohl an Defekten als auch in der defektfreien Matrix gebildet, Abb. 34. Die Proben wurden bei 725°C , also 50°C unter der Auslagerungstemperatur ($T_{\text{B}} < T_{\text{A}} < T_{\text{solvus}}$), mit 250-keV-Ni⁺ zwischen 2 und 38 dpa bestrahlt. Die Meßdaten aus der TEM-Auswertung sind in Abb. 8 zusammengefaßt.

Bereits nach 2 dpa verloren sämtliche Teilchen ihre Verspannung, Abb. 35, und ihre Größe nahm zu ($\bar{d} = 634 \rightarrow 770 \text{ \AA}$). Dabei wurden die großen Teilchen ($d > 400 \text{ \AA}$) stabiler gefunden, Abb. 36, 37. Nach 38 dpa waren sämtliche Teilchen aufgelöst ($t_{\text{p}} \approx 1500 \text{ \AA}$) und es kam, wie nach 2 dpa (Abb. 36), zur erneuten Keimbildung, Abb. 38. Daß diese Teilchen ($d < 150 \text{ \AA}$) während der Abkühlung nach der Bestrahlung gebildet waren, verdeutlicht sowohl Abb. 36 als auch Abb. 39 ($t_{\text{p}} > 1800 \text{ \AA}$). Die kleinen Teilchen haben sich bis zu den großen erstreckt, ohne daß dabei eine verarmte Zone an Ausscheidungen in der Umgebung der großen Teilchen entstanden ist.

5.5.3 Die strahlungsinduzierten Defektstrukturen

Im Gegensatz zu der Bestrahlung ($T_B = 725^\circ\text{C}$, Dosis < 40 dpa) an Proben der Ni-Cr-Al-Legierung waren in Proben der Ni-Si-Legierung die strahlungsinduzierten Defekte vorhanden, und zwar als Einzelversetzungen. Abb. 35 zeigt eine Wechselwirkung zwischen Ausscheidungen und Versetzungen, sie wurde auch nach 19 dpa festgestellt, Abb. 40. Nach einer weiteren Bestrahlung entsprechend 38 dpa waren keine Defektstrukturen mehr sichtbar, dabei stellte man eine beschleunigte Teilchenauflösung fest. In dieser Probe wurde eine strahlungsinduzierte Korngrenzenbewegung beobachtet, Abb. 41.

Diese Ergebnisse bestätigen, daß sich die strahlungsinduzierten Versetzungen in unmittelbarer Nähe der Ausscheidungen befinden. Unabhängig von der ursprünglichen Gitterverspannung tritt eine beschleunigte Teilchenauflösung dann auf, wenn die Versetzungsstruktur nicht mehr stabil ist, wie es an den β' - Mg_2Si -Ausscheidungen ($+\Delta a$) bei Raumtemperaturbestrahlung ($T_B = 50^\circ\text{C}$) und an den unverspannten γ' - Ni_3Al -Ausscheidungen bei Hochtemperaturbestrahlung ($T_B = 340^\circ - 725^\circ\text{C}$) bereits festgestellt wurde.

6. DISKUSSION

Der Einfluß der Bestrahlung auf die Gefügestabilität ausscheidungs-fähiger Legierungen wurde von zwei Gesichtspunkten untersucht :

a) die Stabilität der Ausscheidung und b) die Entwicklung der Defektstrukturen in der Matrix. Aus den verschiedenen zu diesem Zwecke untersuchten Legierungen konnte an den kohärenten γ' - Ni_3Al -Ausscheidungen ($\Delta a = 0$) in der Ni-Cr-Al-Legierung die Dosisabhängigkeit in einem breiten Temperaturbereich von 340° bis 725°C quantitativ erfaßt

werden. Es wurde festgestellt, daß diese Ausscheidungen bis zu 625°C keine nennenswerte Auflösung zeigen, solange in ihrer Umgebung eine ausgeprägte strahlungsinduzierte Defektstruktur vorhanden ist. Erst oberhalb 725°C , eine Temperatur bei der bis zu 40 dpa keine Strahlenschädigung beobachtet wurde, neigten die Ausscheidungen zur Auflösung, was auch an den γ' - Ni_3Si -Ausscheidungen in der Ni-Si-Legierung festgestellt wurde. Dabei waren es die kleinen Teilchen ($d < 200 \text{ \AA}$), die durch die Bestrahlung bevorzugt aufgelöst wurden. Unabhängig von der Bestrahlungstemperatur trat ein zusätzlicher Effekt an den verspannten γ^+ - $\text{Ni}_3(\text{NbX})$ -Ausscheidungen ($+\Delta a$) in der Inconel 625- und den γ' - Ni_3Si -Ausscheidungen ($-\Delta a$) in der Ni-Si-Legierung auf: die Gitterverspannung wurde bereits nach beginnender Bestrahlung (Dosis = 2 dpa) aufgehoben.

Im Vergleich zu den Ausscheidungen in den Ni-Legierungen waren die Ausscheidungen in der Al-Mg-Si- und Fe-Cu-Legierung teilkohärent bzw. inkohärent, außer der Cu-Ausscheidungen haben sämtliche Ausscheidungen eine geordnete Struktur. Trotz dieses Unterschieds in den Eigenschaften konnten die Ausscheidungen durch Raumtemperaturbestrahlung ($T_B = 50^{\circ}\text{C}$) aufgelöst werden. Die Auflösung der β' - Mg_2Si -Ausscheidungen war mit dem Verlust der Grenzflächenversetzungen und des Kontrastes verbunden, wenn aber ein gemischter ($\beta' + \beta$)-Zustand vorlag, beschleunigte die nachfolgende Bestrahlung die $\beta' \rightarrow \beta$ -Umwandlung, die allerdings zustandsspezifisch war.

Obwohl sich die untersuchten Legierungen -hinsichtlich der Eigenschaften sowohl der Matrix als auch der Ausscheidung- stark voneinander unterscheiden, war gewissermaßen ein Zusammenhang zwischen den Defektstrukturen und der Auflösung von Ausscheidungen festzustellen, und zwar stabilisierten die Versetzungen die Ausscheidungen. Die strahlungsinduzierten Defektstrukturen, die sich stets in der Matrix befanden, erstreckten sich bis zu den Korngrenzen und eine verarmte Zone, wie sie durch die Ausheilung von Leerstellen um die Korngrenze entsteht, wurde in keiner Legierung beobachtet. In Anlehnung an

Untersuchungen anderer Autoren [z.B. Hertel et al. 1974, Barbu und Ardell 1975] wurde angenommen, daß durch die Schwerionenbestrahlung oberhalb etwa 2 dpa ein überwiegender Teil der Strahlenschädigung aus den Zwischengitterloops besteht. Einige unserer Ergebnisse sind mit den Ergebnissen anderer Arbeiten im Einklang, und zwar hinsichtlich der teilchengrößenabhängigen Auflösung [z.B. Boltax 1965, Sharpe und Whapham 1974 : Neutronenbestrahlung] und der Entwicklung von Defektstrukturen [z.B. Rowcliff et al. 1975 : 5-MeV-Ni⁺-Bestrahlung].

Beim Vergleich der eigenen experimentellen Ergebnisse mit denen anderer Untersuchungen ist darauf hinzuweisen, daß z. T. erhebliche Unterschiede in der Energie der verwendeten Ionen bestehen. In den mit MeV-Energie-Ionen durchgeführten Untersuchungen hat man den Vorteil, daß die Schädigungstiefe einige 1000 Å beträgt und durch Abtragung der Oberfläche bestimmt werden kann. Dies ist im Falle der bei dieser Arbeit verwendeten keV-Ionen wegen der geringeren Eindringtiefe von einigen 100 Å nicht möglich und aus diesem Grund ist vor der eigentlichen Diskussion die Frage zu klären, ob die Strahlenschädigung in der untersuchten Foliendicke ($\bar{t}_p = 1500 \text{ Å}$) vorhanden war.

6.1 Der Zusammenhang zwischen der Ioneneindringtiefe und der Strahlenschädigung

Bei gleicher Energie ist die Eindringtiefe der jeweiligen Matrix-Ionen von Target zu Target unterschiedlich (Tab. 4). Die berechnete Eindringtiefe R_p (= projektierte Reichweite) der 250-keV-Al⁺ in Al-Target ist 3300 Å und wir haben die Strahlenschädigung auch bis zu 4000 Å beobachtet (Abb. 11). Dagegen beträgt R_p der 250-keV-Ni⁺ in Ni-Target nur noch 560 Å. In letztem Fall sollten dann die strahlungsinduzierten Effekte nicht in der gesamten Folie sondern nur in einer Tiefe bis etwa 600 Å unter der bestrahlten Fläche entstehen.

Wir haben diesen Standpunkt unter Anwendung von Hellfeld-Dunkelfeld-Analyse untersucht und festgestellt, daß auch bei der kleinsten Dosis die Strahlenschädigung in der Ni-Cr-Al-Legierung über die ganze Foliendicke

vorhanden war, Abb. 42. Weiterhin waren keine Veränderungen in der Morphologie oder der Größe der γ' -Ausscheidungen zu beobachten, als die Folie von unbestrahlter- oder bestrahlter Seite durchstrahlt wurde; die strahlungsinduzierte Auflösung der Ni_3Al - bzw. Ni_3Si -Ausscheidungen bei 725°C wurde ebenfalls in der gesamten Folie ($t_p < 1800 \text{ \AA}$) beobachtet.

Nach dieser Feststellung können wir davon ausgehen, daß die beobachteten Effekte tatsächlich durch die Bestrahlung entstehen, obwohl die berechnete Eindringtiefe der Ni-Ionen in Ni-Target ca. 40% der Foliendicke betrug. Dies steht in Übereinstimmung zu anderen Untersuchungen [z.B. Gettings et al. 1974, Kaletta 1976, Sood und Dearnaley 1976], die ebenfalls feststellten, daß die Strahlenschädigung über die Reichweite der eingeschossenen Teilchen hinausgeht.

6.2 Diskussion der Ergebnisse an Hand der bestehenden Modelle

Für die Interpretation der Ergebnisse stehen verschiedene Modelle zur Verfügung. Da das Fragmentierungsmodell sowie die "disorder"-Auflösung wegen der Legierungsauswahl und der Untersuchungsmethode zu dieser Arbeit nahestehen, werden sie vor der "spike"-Auflösung in Betracht gezogen.

6.2.1 Das Fragmentierungsmodell

Das Fragmentierungsmodell [Potter und Hoff 1976] geht davon aus, daß mit zunehmender Dosis die in den Ausscheidungen gebildeten Strahlenschäden zur Teilchenauflösung beitragen.

Einige unserer Ergebnisse, besonders die an der Ni-Cr-Al-Legierung, sind bis zu einer Bestrahlungstemperatur von 625°C (z.B. Abb. 18) optisch mit dem Modell im Einklang, allerdings stellten wir mit Hilfe der Hellfeld-Dunkelfeld-Abbildungen fest, daß die strahlungsinduzierten Defekte stets in der Umgebung von Ausscheidungen vorhanden waren. Dies führte

zu der Vermutung, daß bei der Dunkelfeld-Abbildung der Ausscheidungen die an der Ausscheidung:Matrix-Grenzfläche liegenden Versetzungen rein aus Kontrastbedingungen die Elektronenstrahlintensität vermindern, und die Teilchen dadurch fragmentiert erscheinen, was auch an einer unbestrahlten Probe bestätigt werden konnte, Abb. 43. Mit Hilfe dieses Befunds kann man dann die Gründe der während der Bestrahlung aufgetretenen fragmentierungsähnlichen Abbildungen erklären, Abb. 44.

Daß die Fragmentierung eine optische Erscheinung ist, läßt sich auch aus einem Vergleich der Abb. 11 und 12 verdeutlichen. Mit zunehmender Dosis verschwindet die Fragmentierung der β' -Ausscheidungen, der Grund - wie bereits erläutert - liegt in dem Verlust der Grenzflächenversetzungen, d. h. nicht innerhalb der Ausscheidung, wie Potter und Hoff es annehmen, sondern um die Ausscheidung. In diesem Zusammenhang ist anzumerken, daß die Grenzflächenversetzungen um die β' -Ausscheidungen in Abb. 11 vor der Bestrahlung vorhanden waren.

Nach dem Modell sollten die großen Teilchen der Fragmentierung anfällig sein, aus unseren Ergebnissen können wir es nicht bestätigen (z. B. Abb. 44), auch wenn wir das Fragmentierungsmodell annehmen. Im Gegenteil sind wir der Meinung, daß die sogenannte Fragmentierung, wie gezeigt (Abb. 43, 44), eine optische Erscheinung ist. Die beschleunigte Teilchenauflösung bei 725°C, die mit Sicherheit auf die Abwesenheit der strahlungsinduzierten Defekte zurückzuführen ist, läßt sich durch dieses Modell nicht erklären.

6. 2. 2 Die "disorder"-Auflösung

In der Theorie der "disorder"-Auflösung geht man davon aus, daß durch die Bestrahlung die Ordnung von Ausscheidungen mit geordneter Atomverteilung zumindest teilweise zerstört wird, was zur Auflösung der Teilchen führt.

Nach diesem Modell [Nelson et al. 1972] wäre innerhalb des 340° - 725° C Temperaturbereiches und oberhalb etwa 5 dpa für die geordneten γ' -Ni₃Al-Ausscheidungen ($\bar{d} = 556 \text{ \AA}$) eine Gleichgewichtsgröße von $d \approx 200 \text{ \AA}$ zu erwarten, wobei mit zunehmender Dosis die Konzentration dieser Teilchengröße zunehmen sollte. Stattdessen stellten wir fest, daß innerhalb des Temperaturbereiches von 340° bis 625° C auch bis zu 398 dpa keine derartigen Veränderungen auftreten, die mittlere Teilchengröße nur um 50 \AA abnimmt, bei $\bar{d} = 500 \text{ \AA}$ konstant bleibt und die Teilchenkonzentration bis zu 30 % zurückgeht (Abb. 22, 23). Eine beschleunigte Auflösung, wie sie bei $T_B = 725^{\circ}$ C beobachtet wurde und sich von den strahlungsinduzierten Defekten abhängig erwies, ist nach dem Modell nicht zu erwarten.

Daß die Bestrahlung die Atomordnung eines geordneten Kristalls zerstört, ist eine Tatsache [Dixon und Bowen 1954, Brinkman 1956, Seiler et al. 1974]. Nun ist die Frage, ob es auch für eine geordnete Ausscheidung zutrifft. Die Erklärung sollte man nicht in der strukturellen Ähnlichkeit, sondern in dem Unterschied dieser Vorgänge suchen. Die Triebkraft der Ordnungsumwandlung ist die gegenseitige Anziehung der ungleichen Atome. Dagegen spielt in den Ausscheidungsvorgängen diese gegenseitige Anziehung eine untergeordnete Rolle, es ist die Übersättigung der gelösten Atome - d. h. das chemische Potential $\Delta G_{\text{Chem.}}$ -, die zur Ausscheidung führt. Der Konzentrationsgradient, der durch eine sich ausscheidende Phase entsteht, ist das wesentliche Merkmal des Ausscheidungsvorgangs und kommt im Falle der Ordnungsumwandlung nicht vor. Die Bedeutung des chemischen Potentials in einer ausscheidungsfähigen Legierung sowie der Unterschied zwischen der Ordnungsumwandlung und dem Ausscheidungsvorgang unter Bestrahlung werden aus einem von Miura et al. [1974] zitierten Experiment noch deutlicher. Es wurde eine Ni-6,3 % Al-Legierung im ausgelagerten Zustand (γ' -Ni₃Al, $\bar{d} = 108 \text{ \AA}$) mit Gammastrahlen bestrahlt ($E = 1 \text{ MeV}$, $\phi = 10^{10} \text{ e/cm}^2 \cdot \text{s}$, $T_B < 100^{\circ}$ C). Wie im Falle eines geordneten Kristalls (Cu₃Au oder Ni₃Mn) kann man hier eine z. T.

ungeordnete γ' -Ausscheidung und damit eine Abnahme der Größe erwarten. Stattdessen wurde eine Teilchenzunahme von $\bar{d} = 108 \text{ \AA}$ auf $\bar{d} = 140 \text{ \AA}$ beobachtet, was auf die durch die strahlungsinduzierten Leerstellen beschleunigte Entmischung der gelösten Atome aus der immer noch übersättigten Matrix zurückzuführen ist.

Warum findet dann keine "disorder"-Auflösung statt, obwohl die Ausscheidung eine geordnete Struktur hat? Wir sind der Auffassung, daß die Gründe für eine strukturelle Änderung in der Cu_3Au -Phase und der Cu_3Au -Typ-Ausscheidung wie Ni_3Al nicht unbedingt in strukturellen Ähnlichkeiten liegen sollten, wie Nelson und Mitarbeiter es annehmen [1972, 1974]. Betrachten wir Abb. 45. Die Tangente XY zeigt den ursprünglichen Zustand vor der Bestrahlung, die geordnete Ausscheidung ist mit der Matrix im Gleichgewicht, die eine Konzentration c_0 der gelösten Atome zurückhält und immer noch übersättigt ist. Nehmen wir an, daß die Ausscheidung ungeordnet wird [Nelson et al. 1972]. Wie die Tangente YZ zeigt, hat dann die ungeordnete Ausscheidung eine Konzentration c_1 der gelösten Atome in ihrer Umgebung und wird zur Auflösung neigen ($c_0 < c_1$). So kann man sich die Herausdiffusion der Atome während der "disorder"-Auflösung vorstellen, wenn man die Veränderungen in der Matrix, d. h. die Bildung von Defekten, außer Acht läßt. Wie die Ergebnisse zeigen, befinden sich die strahlungsinduzierten Defektstrukturen nicht in der Ausscheidung sondern in der Matrix. Mit anderen Worten wird die freie Energie der Matrix erhöht und dies hat zur Folge, daß die Matrix zur weiteren Entmischung neigt, wie die Tangente RX das neue Gleichgewichtsverhältnis andeutet. Das würde bedeuten, daß der Strom der gelösten Atome nicht von sondern nach der Ausscheidung fließt, was die "disorder"-Auflösung widersprechen würde.

Es darf betont werden, daß außer den Cu-Teilchen sämtliche Ausscheidungen in dieser Untersuchung eine geordnete Struktur haben. Trotzdem konnte eine "disorder"-Auflösung weder direkt noch indirekt nachgewiesen werden.

6.2.3 Die "spike"-Auflösung

Eine Reihe von Untersuchungen deuten auf eine "spike"-Auflösung hin (Kap. 2.3.1), wobei es zwei Möglichkeiten für die Teilchenauflösung gibt : a) durch "displacement spikes", die durch die elastischen Stöße entstehen und/oder b) durch "thermal spikes", die durch die örtliche Umordnung der herausgestossenen Atome entstehen.

Wegen der höheren Schädigungsrate der Ionenbestrahlung im Vergleich zu der Neutronenbestrahlung ($K_i \approx 10^{-2}$ dpa/s, $K_n \approx 10^{-6}$ dpa/s), tritt die Wahrscheinlichkeit der "thermal spike"-Auflösung im Vordergrund, da bei gleicher Dosis die Temperatur im bestrahlten Bereich während einer Ionenbestrahlung innerhalb kurzer Zeit erhöht werden kann ($t_i \ll t_n$). Wenn die Wärme nicht abgeleitet wird, wird die Löslichkeitstemperatur T_{solvus} überschritten und die Ausscheidungen könnten sich auflösen. An Hand der von Jenkins und Wilkens [1976] berechneten Werte läßt sich abschätzen, daß durch 250-keV-Ionen eine "spike"-Temperatur von $T_s \approx 10^4$ °K erreicht wird, allerdings bei einer "spike"-Dauer von nur etwa 10^{-11} s. Von 340°C bis 625°C wurde eine Auflösung der γ' -Ni₃Al-Ausscheidungen nicht beobachtet (Abb. 22). Die Vorstellung, daß sich die Teilchen durch die "thermal spikes" auflösen und sich während der "spike"-Abkühlung erneut ausgeschieden haben, ist mehr als unwahrscheinlich, allein schon wegen der Tatsache, daß die Teilchengröße - sowie Verteilung nahezu unverändert bleibt. Die Auflösung bei 725°C läßt sich ebenfalls durch die "thermal spike"-Auflösung nicht erklären, wenn man berücksichtigt, daß im Vergleich zu der "spike"-Temperatur die Unterschiede bei den Bestrahlungstemperaturen unbedeutend sind.

Die Entstehung der "thermal spikes" ist eine Begleiterscheinung der "displacement spikes" [Brinkman 1956] und sie oder ihre Effekte können voneinander nicht getrennt betrachtet werden. Andererseits scheint es aber, daß in unseren Untersuchungen die "thermal spikes" keinen Einfluß auf die Teilchenauflösung haben. Wenn die "displacement spike"-Auflösung von der "thermal spike"-Auflösung dann als isoliert betrachtet wird und das bestehende Konzept unter Berücksichtigung der gebildeten

Defektstrukturen angewandt wird, können sämtliche Ergebnisse erklärt werden.

Nachstehend wird die "displacement spike"-Auflösung als "recoil"-Auflösung beschrieben, zunächst wird eine quantitative Beschreibung des Auflösungs Vorgangs gegeben und der mögliche Einfluß der Defekte wird im folgenden Kapitel behandelt.

Die Ergebnisse zeigen, daß die Teilchenauflösung von der Oberfläche aus anfängt und der Innenbereich des Teilchens nicht beeinflußt wird. Wenn einem Atom eine Energie oberhalb der Verlagerungsenergie übertragen wird, wird es von seinem Platz entfernt und auf eine Strecke R_a , ca. 25 \AA [Kaletta 1973], verlagert. Der Schädigungsrate K entspricht damit ein Atomfluß ϕ_a aus der Ausscheidung,

$$\phi_a = K n_A R_a \quad (10)$$

$$n_A = \text{Zahl der Atome/cm}^3$$

damit wird die Auflösungsgeschwindigkeit $\frac{dv}{dt}$ eines Teilchens mit einem ursprünglichen Radius r

$$\frac{dv}{dt} = - \frac{4 \pi r^2 \phi_a}{n_A} \quad (11)$$

Bei hohen Bestrahlungstemperaturen muß die Wahrscheinlichkeit einer Rückdiffusion berücksichtigt werden. In dem Fall können die Veränderungen des Teilchenradius nach folgender Gleichung ermittelt werden [Nelson et al. 1972]:

$$\frac{dr}{dt} = - \frac{\phi_a}{n_A} + \frac{3 (D + D') C}{4 \pi p r} - (D + D') r^2 N \quad (12)$$

- ϕ_a = Atomfluß
- n_A = Zahl der Atome/cm³
- D = thermischer Diffusionskoeffizient
- D' = strahlungsinduzierter Diffusionskoeffizient
- C = gesamte Konzentration der gelösten Atome
- p = Anteil der ausscheidungsbildenden Atome
- N = Teilchenzahl/cm³

Nach der Gleichung (10) und (12) überprüfen wir die Übereinstimmung in berechneten und experimentellen Δr -Werten in Proben P-17 - P-19 und NSP-3 (Tab. 6 und 8), in denen nach der Bestrahlung bei 725°C der Auflösungsverlauf bzw. eine vollständige Auflösung beobachtet wurde; es wird angenommen, daß bei dieser Bestrahlungstemperatur der Anteil der thermischen -sowie der strahlungsinduzierten Diffusion etwa gleich groß ist. Die Werte für K ($= dpa/t_B$), t_B , r und N sind aus der Tab. 6 und 8 entnommen. Für Ni₃Al und Ni₃Si ist $p = 25\%$ und die Konzentration der gelösten Atome in den untersuchten Legierungen beträgt $C_{Al} = 5,9$ (At %), $C_{Si} = 12$ (At %). Mit $D = D' = 5 \times 10^{-14}$ cm²/s und $R_a = 25$ Å ergeben sich dann folgende Δr -Werte :

Probe ^{a)}	Dosis (dpa)	- $\Delta r_{\text{expt.}}$ (Å)	- $\Delta r_{\text{theo.}}$ (Å)
P-17	2	32	40
P-18	20	87	473
P-19	40	278	941
NSP-3	38	317	866

a) $T_B = 725^\circ\text{C}$

Da die Unterschiede zwischen den berechneten und gemessenen Δr -Werten groß sind, läßt sich eine genau quantitative Beschreibung des Auflösungsverlaufs nicht angeben, was vermutlich auf die relativ große Ungenauigkeit bei der Bestimmung der K-Werte zurückzuführen ist. Nach dem von Nelson et al. [1972] angegebenen Atomfluß ϕ_a sollte dagegen in obigen Fällen nach dem "recoil"-Modell statt einer Auflösung ein Teilchenwachstum auftreten, während nach dem "disorder"-Modell die Teilchenauflösung wesentlich schneller erfolgen sollte. Wenn man diese Unterschiede berücksichtigt, kann die Übereinstimmung in den Δr -Werten als befriedigend betrachtet werden, obwohl das "recoil"-Modell für die Auflösung der geordneten Teilchen verwendet wird. Innerhalb des $340^{\circ}\text{C} - 625^{\circ}\text{C}$ Temperaturbereiches läßt sich allerdings die Teilchenauflösung nicht beschreiben, wenn die Versetzungsstruktur in der Ausscheidungsumgebung stabil ist, deren stabilisierende Wirkung im folgenden Kapitel ausführlich diskutiert wird.

6.3 Arbeitshypothese und Interpretation der Ergebnisse

Obwohl während der Bestrahlung nur zwei Grundarten von Defekten - Zwischengitteratome und Leerstellen - erzeugt werden, sind die eigentlichen Vorgänge wegen der verschiedenen Wechselwirkungen so kompliziert, daß man die Frage, wie die Grenzflächenversetzungen die Teilchenauflösung beeinflussen können, allein durch die Betrachtung eines Einzelparameters wie Atomordnung [Nelson et al. 1972] oder Verspannung der Ausscheidung [Potter und Hoff 1976] nicht beantworten kann. Dies hat die bisherige Diskussion z.T. verdeutlicht. Sicherlich könnte eine Reihe von Parametern wie die obigen, um einige zu nennen, die Teilchenauflösung beeinflussen. Jedoch ist während der Bestrahlung nicht allein die Ausscheidung sondern auch die Matrix den Stoßprozessen unterworfen und daher muß man dem möglichen Zusammenhang zwischen der Teilchenauflösung und der Entwicklung von Defektstrukturen in der Matrix nachgehen.

Die folgende Diskussion beschränkt sich auf die Ausscheidung substitutionell gelöster Atome (z.B. Ni_3Al) und geht von der Annahme der durch die elastischen Stöße (recoils) resultierenden Störbereiche (displacement spikes) aus. Das bedeutet, daß die Teilchenauflösung durch "recoils" von den Eigenschaften der Ausscheidungen sowie der Grenzfläche weitgehend unabhängig erfolgen sollte (vergl. Nelson et al. 1972). Wie sich ein aus der Ausscheidung herausgestoßenes Atom in der umgebenden Matrix weiter verhält, hängt natürlich von den Eigenschaften der Ausscheidung, der durch die Teilchenauflösung veränderten Konzentration der gelösten Atome, der Temperatur sowie den unter der Bestrahlung gebildeten Grenzflächen ab.

6. 3. 1 Der strahlungsinduzierte Übergang zur Inkohärenz : Hypothese

Wird einem Atom aus der Ausscheidung eine Energie oberhalb der Verlagerungsenergie übertragen, wird es von seinem Platz herausgestoßen, macht seinerseits weitere Stöße bis es seine Energie verliert und schließlich als Zwischengitteratom zur Ruhe kommt. Dadurch entsteht ein Frenkel-Paar, d.h. daß es zu einer räumlichen Trennung der Leerstelle und des Zwischengitteratoms kommt. Das herausgestoßene Atom kann solange nicht zurückkehren bis die günstigen Bedingungen für eine Rückdiffusion hergestellt sind.

Wenn Atome fortlaufend aus einer Ausscheidung in die umgebende Matrix herausgestoßen werden, wird es zu einer sichtbaren Teilchenauflösung kommen. Ähnliche zu Frenkeldefekten führende Stoßprozesse werden auch in der Matrix ablaufen. Findet dabei keine vollständige Rekombination der Defekte statt, werden Loops oder Versetzungen gebildet, die auch an der Ausscheidung:Matrix-Grenzfläche auftreten werden. Handelt es sich um eine kohärente Ausscheidung, so wird die ursprüngliche strukturelle Kontinuität zwischen der Ausscheidung und Matrix zerstört, d.h. die Ausscheidung wird inkohärent.

Daß die Ausscheidungen nach der Bestrahlung ihre Kohärenz verlieren, konnte an den unterschiedlich verspannten γ' -Ni₃Si- (- Δa , Abb. 34a-35), γ' -Ni₃Al- ($\Delta a \approx 0$, Abb. 44) und γ' -Ni₃(Ti + Al)- Ausscheidungen (+ Δa , Abb. 46-47) nachgewiesen werden. Ein ähnlicher Effekt wurde von Woolhouse und Ipohorski [1971] nach einer Neutronen- sowie Elektronenbestrahlung an den elementaren Ausscheidungen, Co in Cu-Co- (- Δa : Philips 1964) und γ -Fe in Cu-Fe-Legierung (+ Δa : Easterling und Johannesson 1971), und von Rowcliff et al. [1975] nach einer Schwerionenbestrahlung an den γ' -Ni₃(Ti + Al)- Ausscheidungen (+ Δa) in Inconel X-750-Legierung festgestellt.

Bei der Betrachtung des Zusammenhangs zwischen der Stabilität der Ausscheidung und den Strahlenschäden ist festzustellen, daß die Defektstrukturentwicklung in der Matrix durch die Anwesenheit von Ausscheidungen beeinflusst wird (Abb. 9, 32), was in den Abb. 40, 44 und 47 besonders deutlich zu sehen ist. Im Falle einer verspannten Ausscheidung ($\Delta a \neq 0$) kann dies durch die Wechselwirkung zwischen den Verspannungsfeldern der Ausscheidungen und den Punktdefekten (oder der Versetzungen) erklärt werden [Baker et al. 1959, Woolhouse und Ipohorski 1971], z.B. eine Leerstellentypausscheidung (- Δa) kann sich durch Anziehung von Zwischengitteratomen (oder Loops, + Δa) stabilisieren, d.h. ihre Verspannung abbauen und inkohärent werden. Allerdings scheint diese Erklärung für die untersuchten $\gamma'_{(Ni-Cr-Al)}$ -Ausscheidungen nicht zutreffend, da wegen ihrer guten Anpassung zur Matrix ($\Delta a \approx 0$) sie im Grunde genommen keine Anziehung auf Defekten ausüben können. Die mögliche Erklärung wäre : Bei hohen Dosen ist die Zahl der gebildeten Versetzungsloops so groß, daß trotz vernachlässigbarer Anziehung der Ausscheidung:Matrix-Grenzfläche das Auftreten von Loops um Ausscheidungen wahrscheinlich ist.

Bereits bei beginnender Bestrahlung läßt sich eine Umordnung der Ausscheidungsumgebung, d.h. der umgebenden Matrix ^(+) [Easterling und Johannesson 1971], vermuten, die unter Bestrahlung dann zustande kommen könnte, wenn die in unmittelbarer Nähe vorhandenen Matrixatome in den von herausgestoßenen Ausscheidungsatomen hinterlassenen Leerstellen verlagern. Mit zunehmender Umordnung werden dann sichtbare Versetzungsloops gebildet, in denen sich die Zwischengitteratome befinden können, die weitere Entwicklung wird von der Dosis und Temperatur, d.h. von dem Ausmaß der Schädigung und der Rekombinationswahrscheinlichkeit bestimmt. Die Anwesenheit von Ausscheidungen

(+)

Easterling und Johannesson betrachten die Umordnung (local micro-slip) um eine wachsende Ausscheidung während thermischer Auslagerung, wie sie durch die Einführung von einer Leerstelle an der Ausscheidung:Matrix-Grenzfläche zustandekommen könnte. Da solche Umordnung zur Abnahme der Verspannung (stress concentration) führt, könnte nach Ansicht der Autoren die Loopbildung durch den "prismatic loop punching"-Mechanismus erschwert werden. Während der Bestrahlung dagegen handelt es sich um Umordnung einiger 100 Atome in unmittelbarer Nähe der Ausscheidung, damit könnte die Loopbildung erleichtert oder begünstigt werden. Da die Reichweite der herausgestossenen Atome gering ist [Kaletta 1973], wäre durch solchen Prozess die Bildung von Zwischengitteratomenloops um die Ausscheidungen zu erwarten, wobei sich die (Einzel-)Leerstellen um Loops befinden würden.

würde dazu beitragen, als Zentren für eine gerichtete Umordnung zu wirken. Auf diese Weise läßt sich die bevorzugte Entstehung von Loops um die Ausscheidungen (z.B. Abb.44) sowie der Einfluß des Materialzustandes auf die Schädigungsart (z.B. Abb.9) erklären, ohne dabei die Verspannung zu berücksichtigen. Wenn die Ausscheidung schließlich inkohärent, d.h. unverspannt wird, braucht man den Einfluß ursprünglicher Verspannung auf die Teilchenauflösung [Potter und Hoff 1976] nicht zu erwägen.

An dieser Stelle bedarf es einer Anmerkung und zwar hinsichtlich der zur Inkohärenz führenden physikalischen Vorgänge sowie ihres direkten Nachweises durch TEM. Die Vorgänge - sei es die Wechselwirkung zwischen den Ausscheidungen und Punktdefekten oder das Verlagern von Matrixatomen - laufen im atomaren Bereich ab, weit außerhalb des Auflösungsvermögens der TEM-Methode. Erst im fortgeschrittenen Stadium sind sie nachweisbar, daher können die eigentlichen Ursachen nur vermutet werden. Um trotzdem Aussagen machen zu können, wurden die unverspannten $\gamma'_{(\text{Ni-Cr-Al})}$ -Ausscheidungen für die Untersuchungen ausgewählt und, wie gezeigt, lassen die Ergebnisse eher auf die Umordnung der Ausscheidungsumgebung schließen, was das Basisargument für die nachfolgende Interpretation bildet.

6.3.2 Der Verlust des Grenzflächenkontrasts

Der Verlust des ursprünglichen Grenzflächenkontrasts, der sowohl an den kohärenten γ^+ - (Abb.6) als auch an den teilkohärenten β' -Ausscheidungen (Abb.12 und 14a) nach der Raumtemperaturbestrahlung beobachtet wurde, ist auf den Übergang zur Inkohärenz sowie möglicherweise auch auf die Änderung der Konzentration um die Ausscheidung zurückzuführen.

Wenn unter Bestrahlung eine Ausscheidung zur Auflösung neigt, wird zunächst die Gitterverspannung aufgehoben (Kap.6.3.1). Dadurch verschwindet in der Hellfeld-Abbildung der Ausscheidungskontrast, der in

erster Linie durch die Gitterverzerrung entsteht [Hirsch et al. 1965]. Andererseits lassen sich in der Matrix die Stoßprozesse durch die Bildung von Defekten erkennen und um die Ausscheidung durch die Abnahme der Teilchengröße. Wenn die Teilchenauflösung beginnt, wird das ursprüngliche Konzentrationsprofil in der Ausscheidungsumgebung geändert.

Mit anderen Worten wird die mit den Stoßprozessen verbundene strukturelle Störung durch die diffusen Ringe sichtbar, da von solchen Bereichen der Elektronenstrahl willkürlich abgelenkt wird. Die gleichmäßige Erscheinung dieser Ringe (Abb. 6, 12a, 14a), deren Ausmaß um so deutlicher wird je ausgeprägter der ursprüngliche Kontrast ($\Delta a \neq 0$) ist, deutet dann auf eine in allen Richtungen ablaufende Teilchenauflösung hin. Aus dem genannten Grund ist jedoch solche Änderung an den unverspannten Teilchen ($\Delta a = 0$) wie den untersuchten γ' -Ni₃Al-Teilchen schwer nachweisbar.

6. 3. 3 Die $\beta' \rightarrow \beta$ -Umlösung

Außer dem Verlust des Grenzflächenkontrasts waren zusätzliche Erscheinungen wie Verlust der Grenzflächenversetzungen (Abb. 11-12) und Auflösung der β' -Ausscheidungen zugunsten der β -Ausscheidungen (Abb. 13-15), in den Al-Mg-Si-Proben zu beobachten. Das bedeutet, daß die Stabilität der Ausscheidungen unter Bestrahlung von den Ausgangsentmischungsstadien beeinflußt wurde.

Während der thermischen Auslagerung werden die Entmischungsstadien hauptsächlich von der Keimbildungsenergie bestimmt, wobei die Zustände minimaler Aktivierungsenergie bevorzugt werden. Wenn im Laufe der Entmischung die Verzerrungsenergie einer sich ausscheidenden kohärenten Phase größer als die Grenzflächenenergie wird, wird sie durch den Übergang zur inkohärenten Grenzfläche abgebaut [Friedel 1964], in den meisten Fällen werden dann die bereits vorhandenen Versetzungen an die Ausscheidung:Matrix-Grenzfläche angezogen [Weatherley und Nicholson 1968]. Man beobachtet auch, daß sich die stabile Phase an

der sich auflösenden metastabilen Phase bildet [Thomas 1960/61, Hornbogen 1967, Russel 1975]. Unterbricht man die Wärmebehandlung, wird solche Umlösung wegen fehlender Diffusion zum Stillstand gebracht, damit liegt ein gemischter Zustand vor (Abb. 13c).

Die unvollendete $\beta' \rightarrow \beta$ -Umwandlung wurde durch die anschließende Raumtemperaturbestrahlung beschleunigt (Abb. 13, 14b und 15), was mit ziemlicher Sicherheit auf die strahlungsinduzierte Diffusion zurückzuführen ist. Diese Art von Umwandlung benötigt nur noch eine Umordnung der Atome [Thomas 1960/61], die während der Bestrahlung durch die Übersättigung von Leerstellen nachvollzogen zu sein scheint. Im Vergleich zu diesem Verhalten findet im β' -Zustand nur eine Auflösung statt, die zweifellos mit dem Verlust der Grenzflächenversetzungen verbunden war (Abb. 11-12). Wenn die Auflösung über den inkohärenten Zustand erfolgt (Kap. 6. 3.1), sind im Prinzip die ursprünglichen Grenzflächenversetzungen überflüssig, mit Hilfe der übersättigten Leerstellen werden sie dann herausklettern. Aus der Literatur [z. B. Fig. 3, 4 und 10 : Ardell et al. 1974] ist zu entnehmen, daß durch die Elektronenbestrahlung im HVEM die Grenzflächenversetzungen um die inkohärenten Teilchen verschwinden. Läßt man die Arbeitshypothese außer Acht, scheint die Interpretation nicht vertretbar, daß unter den Bedingungen eine ursprünglich inkohärente Ausscheidung wieder kohärent wird [Williams und Fisher 1975], wenn man dabei die eigentlichen zu dem inkohärenten Zustand führenden Ursachen berücksichtigt [Friedel 1964]. In diesem Zusammenhang sei nochmals betont, daß die Grenzflächenversetzungen nicht immer nachweisbar sind (z. B. die inkohärenten Cu-Teilchen in Abb. 17a).

6. 3. 4 Der Einfluß von Grenzflächenversetzungen auf die Teilchenauflösung

Die Grenzflächenversetzungen - seien sie durch die Wärmebehandlung (z. B. Abb. 11) oder durch die Strahlenschädigung (z. B. Abb. 44)

entstanden - verhinderten die Teilchenauflösung. Dies führt zu dem Schluß, daß sie während der Bestrahlung eine stabilisierende Wirkung auf die Teilchen haben. Die folgende Diskussion bezieht sich hauptsächlich auf die Ergebnisse der Hochtemperaturbestrahlung an der Ni-Cr-Al-Legierung (Kap. 5.4). Zunächst werden die verschiedenen Auflösungs-möglichkeiten bei der Bestrahlungstemperatur von 725°C betrachtet, die auch in Abwesenheit des "recoil"-Vorgangs die Teilchenauflösung hervor-rufen könnten, und anschließend wird dem möglichen Einfluß der Grenz-flächenversetzungen nachgegangen.

Die Ni-Cr-Al-Proben waren bei 700°C vorausgelagert und bei 725°C mit Ni-Ionen bestrahlt, daraus ergeben sich für die Teilchenauflösung zwei Möglichkeiten :

- 1) rückbildungsähnliche Vorgänge können stattfinden [Burke 1965], da die Bestrahlungstemperatur (T_B) höher als die Auslage-
rungstemperatur (T_A) ist.
Dies scheidet jedoch von vornherein aus, weil die Teilchengröße mit Sicherheit erheblich über dem kritischen Keimradius bei 725°C liegt. Dafür spricht auch die Tatsache, daß der unbestrah-
lte Bereich immer noch Teilchen ohne nennenswerte Veränder-
ungen enthält (Abb. 25a).
- 2) wegen der eingeschossenen Ni-Menge wird die Löslichkeits-
grenze überschritten.

Da eine vollständige Teilchenauflösung nach 40 dpa
($= 1,27 \times 10^{16} \text{ Ni}^+ / \text{cm}^2$) auftrat (Abb. 27), wird nur diese
Dosis betrachtet. Nehmen wir an, daß die Ni-Menge, die auf
eine Fläche von $0,78 \text{ cm}^2$ bestrahlt wurde, bis 560 \AA ($= R_P$,
Tab. 4) in der Probe hineindringt. Dementsprechend erhöht
sich in diesem Bereich die Ni-Konzentration, die Ausgangs-
zusammensetzung (At %)



ändert sich und lautet nach der Bestrahlung (At%)

75,7 Ni + 18,6 Cr + 5,7 Al

Aus einem Vergleich mit anderen Arbeiten [Taylor und Hinton 1952/53, Hornbogen und Roth 1967] geht hervor, daß es keine nennenswerte Änderung der Übersättigung und damit des Ausscheidungsverhaltens zur Folge hat. Nach Taylor und Floyd [1952/53] sollte die Löslichkeitstemperatur der gewählten Legierung um 750°C liegen, wir beobachten dagegen die Bildung von Ausscheidungen auch bei 750°C (Abb. 28) und dies ist in Übereinstimmung mit den Ergebnissen ähnlicher Legierung [Hornbogen und Roth 1967].

Aus diesem Grund muß geschlossen werden, daß die bei 725°C beobachtete Teilchenauflösung (Abb. 22, 27) in der Tat auf die Bestrahlung zurückzuführen ist. Dies konnte auch an den γ' -Ni₃Si-Ausscheidungen ($T_{\text{solvus}} > 850^{\circ}\text{C}$: Rastogi und Ardell 1969) nachgewiesen werden (Kap. 5.5).

Soweit ein Mischkristall eine temperaturabhängige Löslichkeit aufweist, besteht die Wahrscheinlichkeit, daß eine bei höherer Temperatur vorausgelagerte Probe bei niedriger Temperatur eine zusätzliche Ausscheidung zeigt, da ein gewisses Ausscheidungspotential stets vorhanden ist. Ob eine weitere Ausscheidung tatsächlich stattfindet, hängt einerseits von der Übersättigung der gelösten Atome und andererseits von der Diffusion, d. h. von der Leerstellenkonzentration ab, die normalerweise wiederum durch die Temperatur bestimmt wird.

Im Falle einer ausscheidungs-fähigen Legierung kommt dadurch den während der Bestrahlung entstandenen Leerstellen eine wichtige Bedeutung zu : Die strahlungsinduzierte Diffusion, d. h. die Diffusion der sich noch in Lösung befindlichen gelösten Atome und die Rückdiffusion der aus der Ausscheidung herausgestoßenen Atome, weil für die gelösten Atome nicht die Matrix sondern die Ausscheidung die Idealsenke ist. Aus diesem Grund

stellt man unter Bestrahlung einige Vorgänge fest, wie strahlungsinduzierte Teilchenvergrößerung auch bei niedriger Temperatur [Miura et al. 1974] oder strahlungsinduzierte Ausscheidung aus einem Mischkristall mit geringfügiger Übersättigung der gelösten Atome [Barbu und Ardell 1975], die ansonsten nicht zu erwarten sind. Bleiben allerdings die Platzwechselfvorgänge (materialspezifische Eigenschaft) wegen unzureichender Temperatur aus, oder werden die strahlungsinduzierten Leerstellen vernichtet, bzw. die Atome schneller herausgestoßen als sie rückdiffundieren können, ist die Teilchenauflösung nicht zu vermeiden (z.B. Abb. 5). Wie können nun die Versetzungen die Teilchenauflösung beeinflussen ?

Aus physikalischen Gründen ist zu erwarten [Brinkman 1956], daß die herausgestoßenen Atome - seien sie aus der Ausscheidung oder der Matrix - zunächst als Zwischengitteratome verlagert werden, daß sie jedoch wegen ihrer Beweglichkeit und höheren Energie Loops bilden werden. Nehmen wir an, daß sich eine Ni_3Al -Ausscheidung von $d \approx 50 \text{ \AA}$ auflöst, dann müssen annähernd 4000 Al-Atome entfernt werden. Sind sie als stabile Zwischengitteratome verlagert, erhöht sich die Energiezufuhr um etwa 20000 eV, dagegen wird sie nach der Bildung eines Zwischengitteratomloops (Loop-Radius $\approx 100 \text{ \AA}$) an einer (111)-Ebene viel geringer sein, etwa 700 eV [Kroupa 1966]. Mit anderen Worten wird sich ein Zwischengitteratom bevorzugt einer Versetzung anschließen, vorausgesetzt, daß sie vorhanden ist, ansonsten muß sie zunächst gebildet werden.

Innerhalb des Bestrahlungstemperaturbereiches von 340° bis 525°C wurde beobachtet, daß die Versetzungsdichte bis zu einer Dosis von 40 dpa zunahm und nach weiterer Bestrahlung fast unverändert blieb (Abb. 29), dabei nahm die Teilchengröße geringfügig ab und blieb konstant (Abb. 22). Der Zusammenhang in diesen Beobachtungen ist nach der bisherigen Begründung folgenderweise zu erklären. Die bei beginnender Bestrahlung erzeugten Defekte - sowohl die Zwischengitteratome als auch die Leerstellen - tragen zu der Umordnung bei (Kap. 6. 3. 1) und bilden dabei

ein stabiles Versetzungsnetz auch um die Ausscheidung. Jedes Atom, das dann durch die weitere Bestrahlung aus der Ausscheidung herausgestoßen wird, findet in seiner veränderten Umgebung ($R_a \approx 25 \text{ \AA}$) einen Platz zu verankern und die Transportmittel, d. h. Versetzungen und Leerstellen, um zurückzudiffundieren. Dies hat zur Folge, daß zunächst bei beginnender Bestrahlung die Teilchengröße geringfügig abnimmt und dann auch mit zunehmender Dosis unverändert bleibt. Die Wahrscheinlichkeit einer spontanen Rekombination der Frenkelpaare ist dabei auch nicht auszuschließen. Die kleinen Teilchen, bevor sie sich durch eine inkohärente Grenzfläche stabilisieren können, lösen sich auf (Abb. 28).

Wenn die Bestrahlung bei einer Temperatur ($T_B > 0,5 T_{\text{solvus}}$) unterhalb der eigentlichen Vorauslagerungstemperatur durchgeführt wird, kann sich eine der Temperatur entsprechend zusätzliche Ausscheidungsmenge ausscheiden (Abb. 28a), damit ändert sich das Konzentrationsprofil um die Ausscheidung, Abb. 48. In den vorliegenden Untersuchungen war dies z. B. wegen der Bestrahlungsprozedur (Kap. 4.4), deren Wirksamkeit erst oberhalb 600°C deutlicher wurde, nicht zu vermeiden. Da die kleinen Teilchen - im Vergleich zu den großen - ein größeres Oberflächen-zu-Volumenverhältnis haben, werden sie auch unter Bestrahlung zur Auflösung neigen, ohne daß dabei eine Umkehr des Konzentrationsgradienten [Nelson et al. 1972] entsteht (Abb. 48). Dafür spricht auch die Zunahme der Teilchengröße ($\bar{d} = 634 \rightarrow 770 \text{ \AA}$) in der Ni-Si-Legierung, die nach 2 dpa beobachtet wurde (Abb. 37).

Mit zunehmender Bestrahlungstemperatur nimmt dann bei einer konstanten Dosis die Ausscheidungsmenge (Abb. 27) aus zwei Gründen zu :

- 1) Die Diffusion der gelösten Atome bzw. die Rückdiffusion der herausgestoßenen Atome. Dazu trägt auch die Matrix bei, da wegen der zunehmenden Defektkonzentration sie zur Entmischung neigt (Tangente RX in Abb. 45).
- 2) Eine gerichtete Diffusion der gelösten Atome zugunsten der großen Teilchen (Abb. 48).

Andererseits können in der Matrix die zu einer Abnahme von Defekten führenden Erholungsvorgänge erwartet werden. Wenn die gelösten Atome aus den Loops herausdiffundieren, gehen die Loops auf (unfaulting of loops) und mit zunehmender Temperatur nimmt ihre Dichte ab (Abb. 31). Je nach den Materialeigenschaften wird es dann eine Temperatur geben - in unseren Untersuchungen an Ni-Cr-Al- bzw. Ni-Si-Legierung lag sie bei ca. 725°C - bei der die Defekte nicht mehr stabil sein werden, d. h. sie werden sich zwar bilden aber sofort ausheilen, was sich an den Versetzungsgestaltungen in einigen Abbildungen erkennen läßt, z. B. Abb. 33c, d und 40 . Für solchen Ausheilprozeß während einer Ionenbestrahlung bietet sich die Probenoberfläche als eine Senke mit unerschöpflichem Senkpotential an, die gebildeten Versetzungen werden an die Oberfläche klettern. Die Annihilation von Leerstellen scheint auch der Grund für die Korngrenzenbewegung zu sein (Abb. 41), die erst bei 725°C deutlich erkennbar wurde. Dies würde die Stabilität von Ausscheidungen dadurch beeinflussen, daß es für die herausgestoßenen Ausscheidungsatome keine stabile Senke (= Versetzungen) mehr gibt, daher läuft die "recoil"-Auflösung schneller ab als die Rückdiffusion. Auf diese Weise läßt sich die Auflösung der β' - Mg_2Si -Ausscheidungen bei Raumtemperaturbestrahlung (Abb. 11-12) sowie die Auflösung der γ' - Ni_3Al - (Abb. 19) und der γ' - Ni_3Si - (Abb. 34-38) Ausscheidungen bei 725°C erklären, wenn es keine ausgeprägte Versetzungsstruktur mehr vorhanden war.

Mit anderen Worten liegt der Einfluß von Grenzflächenversetzungen auf die Teilchenauflösung in ihrer Wirkung als Potentialsenken, um die herausgestoßenen Ausscheidungsatome verankern zu können, damit sie rückdiffundieren. Die Stabilität der γ' - $\text{Ni}_3(\text{Ti} + \text{Al})$ -Ausscheidungen nach der Abb. 47 unterstützt weiterhin diese Überlegung. In diesem Zusammenhang ist auch auf den Einfluß der legierungsspezifischen Materialparameter wie Übersättigung der gelösten Atome oder Wahrscheinlichkeit einer heterogenen Keimbildung hinzuweisen, die weiterhin den Auflösungsverlauf beeinflussen könnten.

Die Bildung der kleinen Teilchen ($d_{\text{Ni-Cr-Al}} < 50 \text{ \AA}$, $d_{\text{Ni-Si}} < 200 \text{ \AA}$), die nach der Bestrahlung bei 725°C nur an einer Stelle in der Ni-Cr-Al- und häufig in der Ni-Si-Legierung (Abb. 38) vorkam, ist vermutlich auf die durch die bestrahlungsinduzierte Auflösung der Teilchen hervorgerufene Mischkristallübersättigung, die nachfolgende Abkühlung sowie auf die sehr geringe Keimbildungsenergie dieser Teilchen zurückzuführen. Diese Erklärung wird durch die Untersuchungen von Beardmore [1969/70] unterstützt. In Ni-Cr-Al- sowie Ni-Al-Legierungen beobachtete er eine zusätzliche Bildung hyperfeiner γ' -Ausscheidungen, als die bereits vorausgelagerten Proben nach der Auslagerung langsam abgekühlt oder abgeschreckt wurden. Unterhalb 700°C wurde jedoch die Bildung von hyperfeinen γ' -Ausscheidungen nicht beobachtet. Im Vergleich zu unserer Ni-Cr-Al (2,85 % Al)-Legierung handelt es sich allerdings hier um Legierungen mit sehr hoher Übersättigung der gelösten Atome (5-7,5 % Al), was mit der untersuchten Ni-Si (6,32 % Si)-Legierung oder mit der von Kirchner et al. [1976] untersuchten Ni-Al-Legierung vergleichbar ist. Ein Blick auf die Abkühlungskurve in Abb. 3, etwa der $725^{\circ} - 600^{\circ}\text{C}$ Bereich, bekräftigt dann die Erklärung, daß die feine Dispersion in Abb. 38-39 während der Abkühlung entstanden ist.

6.3.5 Die technologische Bedeutung

Im Mittelpunkt der bisherigen Diskussion stand die Frage der strukturellen Stabilität von Ausscheidungen im Vordergrund und es wurde davon ausgegangen, daß der Übergang zur Inkohärenz ein strahlungsinduzierter Effekt ist, was durch die experimentellen Untersuchungen nachgewiesen werden konnte. Im Rahmen einer Behandlung der Wechselwirkungen zwischen Strahlenschäden und Ausscheidungen soll auch kurz auf die Porenbildung eingegangen werden, deren Unterdrückung z.B. durch Ausscheidungen von technologischer Bedeutung für Reaktorwerkstoffe ist. Wie eine Ausscheidung die Porenbildung beeinflusst, ist trotz zahlreicher theoretischen und experimentellen Arbeiten noch weitgehend unklar [Vook et al. 1975]. Der Zweck der folgenden Diskussion ist es, auf Grund der

Ergebnisse der vorliegenden Arbeit einen Beitrag zum Verständnis des Einflusses von Ausscheidungen auf die Porenbildung zu liefern.

Innerhalb des 525° - 625° C Temperaturbereiches wurde in der Ni-Cr-Al-Legierung in Übereinstimmung mit Untersuchungen an ähnlichen Legierungen außer vereinzelter Poren (Abb. 33a) keine Porenbildung beobachtet, solange sich die γ' -Ni₃Al-Ausscheidungen stabil erwiesen. Ein möglicher Einfluß der γ' -Ausscheidungen auf die Porenbildung läßt sich allerdings -(m.E.)- auf die kohärente Grenzfläche der Ausscheidungen [Bullough und Perrin 1971] nicht zurückführen, da bereits bei beginnender Bestrahlung die Ausscheidungen ihre Kohärenz verlieren (Kap. 6. 3.1). Viel mehr scheint es, daß die strahlungsinduzierten Leerstellen für die Diffusion bzw. Rückdiffusion der substitutionell gelösten Atome sowie für den Abbau der Loops, d.h. die Diffusion der Matrix-Atome "verbraucht" sind (Kap. 6. 3.4). Dadurch kommt die für die Porenbildung benötigte Leerstellenübersättigung nicht zustande, weil in einer ausscheidungsfähigen Legierung die gelösten Atome, d.h. ihr Ausscheiden, stets den Vorrang haben werden.

Die in Abb. 33b-d beobachtete Porenbildung ist möglicherweise auf die Aufnahme von Verunreinigungen wie C, H₂ oder N₂ zurückzuführen. Für das Einnisten der Verunreinigungen während der Bestrahlung (impurity pick-up) spricht in diesen Proben das Auftreten anderer als der γ' -Phase. Der Grund einer Begünstigung der Porenbildung läßt sich in dem Fall dadurch erklären, daß die interstitiell gelösten Atome wie C, H oder N bevorzugt an Versetzungen segregieren [Friedel 1964] und im Gegensatz zu substitutionell gelösten Atomen (z.B. Al) sie wegen ihres kleinen Atomradius für die Diffusion keine Leerstellen brauchen. Einerseits wird durch die strahlungsinduzierten Versetzungen eine heterogene Keimbildung der sich ausscheidenden inkohärenten Phase(n) erleichtert und andererseits entsteht wegen der interstitiellen Diffusion der C-typartigen Atome ein Überschuß an freien Leerstellen in der Umgebung der sich gebildeten Ausscheidungen. Dies kann schließlich zur Porenbildung in diesen Proben geführt haben.

Im Zusammenhang mit der Anwendung der Ergebnisse hinsichtlich der Gefügestabilität, d. h. der Porenbildung und der Stabilität von Ausscheidungen unter Reaktorbestrahlung kann folgendes gesagt werden. Es scheint wahrscheinlich, daß die Ausscheidungen einer stabilen Phase, die aus substitutionell gelösten Atomen bestehen ($\Delta a = 0$, $d > 200 \text{ \AA}$, $V_f > 10 \%$), die Porenbildung wirksam verhindern oder vermindern können. Solange eine ausgeprägte und stabile Versetzungsstruktur um die Ausscheidungen vorhanden ist, ist unter Reaktorbestrahlung keine Teilchenauflösung und damit auch keine Verschlechterung der mechanischen Eigenschaften zu erwarten. Dabei sollte die Wahrscheinlichkeit einer mit beschleunigter Entmischung verbundenen heterogenen Keimbildung (für den Fall $\Delta a \neq 0$), die Art der gelösten Atome (substitutionell oder interstitiell), das Entmischungsstadium (metastabil oder stabil) und die Übersättigung der gelösten Atome (Ausscheidungspotential) eine entscheidende Rolle spielen. Wird allerdings durch die Wechselwirkung mit Neutronen ein Element in hoher Konzentration erzeugt (z. B. Helium), das überhaupt keine Löslichkeit in dem Werkstoff aufweist, dann kommt ein neues "Ausscheidungssystem" zustande. In dem Fall wird das obige Bild anders aussehen, da ihm eine sekundäre Bedeutung zukommt.

7. ZUSAMMENFASSUNG

Um den Einfluß der Bestrahlung auf die Stabilität von Ausscheidungen zu untersuchen, wurden verschiedene Legierungen mit unterschiedlichen Ausscheidungszuständen (Struktur, Form, Atomordnung, Verspannung und Orientierungsbeziehung zur Matrix) eingesetzt. Die Bestrahlung wurde mit einer einheitlichen Energie von 250-keV der jeweiligen Matrix-Ionen durchgeführt, die Dosis und die Temperatur wurden als Bestrahlungsparameter ausgewählt und die Gefügeänderungen sowie die Ausbildung der Defektstrukturen wurden mittels der Transmissionselektronenmikroskopie verfolgt.

Die wichtigsten Ergebnisse lassen sich wie folgt zusammenfassen :

- 1) Bereits bei beginnender Bestrahlung verlieren die kohärenten Ausscheidungen ihre Verspannung, dabei werden im Laufe der Bestrahlung sowohl die verspannten als auch die unverspannten Ausscheidungen von Versetzungen (oder Loops) umhüllt. Dies wird als Übergang zur Inkohärenz interpretiert.
- 2) Die Teilchenauflösung läßt sich an der Oberfläche nachweisen, im Innen des Teilchens liegen allerdings keine Anhaltspunkte für eine Auflösung vor. Weiterhin hat die Atomordnung einer Ausscheidung keinen Einfluß auf die Auflösung.
- 3) Unabhängig von ihrer Größe sowie Eigenschaften können sämtliche Teilchen durch die Raumtemperaturbestrahlung aufgelöst werden.
- 4) Wenn sich unter Bestrahlung ein (metastabil + stabil)-Zustand befindet, kann die nachfolgende Bestrahlung durch die strahlungsinduzierte Diffusion die unvollendete Umwandlung nachvollziehen, die allerdings material- und zustandsspezifisch ist.
- 5) Das Auflösungsverhalten der unverspannten γ' -Ni₃Al-Ausscheidungen ($\Delta a \approx 0$) wurde in einem breiten Temperaturbereich von 340°C bis 725°C quantitativ verfolgt. Es wurde festgestellt, daß diese Teilchen bis 625°C trotz zunehmender Dosis bis etwa 400 dpa keine nennenswerte Auflösung zeigen, solange in ihrer Umgebung eine ausgeprägte Versetzungsstruktur vorhanden ist. Erst bei 725°C beginnt die Teilchenauflösung, wenn die Versetzungsstruktur nicht mehr stabil ist. Ein ähnliches Auflösungsverhalten wurde an den β' -Mg₂Si-Ausscheidungen (+ Δa) bei Raumtemperatur und an den γ' -Ni₃(Ti + Al)-Ausscheidungen (+ Δa) bzw. γ' -Ni₃Si-Ausscheidungen (- Δa) bei 725°C festgestellt.

Diese Beobachtungen führen zum folgenden Schluß : Die Grenzflächenversetzungen - seien sie durch die Wärmebehandlung oder die Strahlenschädigung entstanden - stabilisieren die Ausscheidungen,

dabei spielt die ursprüngliche Verspannung der Ausscheidungen sowie ihre Orientierungsbeziehung zu der Matrix keine Rolle. Der Verlust dieser Versetzungen markiert den Beginn der Teilchenauflösung.

- 6) Um den stabilisierenden Einfluß der Grenzflächenversetzungen auf die Teilchenauflösung zu erklären, wurde angenommen, daß die Versetzungen für die herausgestoßenen Ausscheidungsatome als Potentialsenken wirken, aus denen die gelösten Atome rückdiffundieren können.
- 7) Zusätzlich zu der Stabilität von Versetzungen (materialspezifische Eigenschaft) beeinflussen a) das Verhältnis von der Vorauslagerungstemperatur zu der Bestrahlungstemperatur und b) die Übersättigung der gelösten Atome (restliches Ausscheidungspotential) die Teilchenauflösung, wobei eine von den Bestrahlungsparametern abhängige Teilchenzunahme vorkommen kann. Dabei sind es allerdings die kleinen Teilchen, die wie während der thermischen Auslagerung auch unter Bestrahlung zugunsten der großen Teilchen bevorzugt aufgelöst werden.
- 8) Die Teilchenauflösung läuft über den "recoil"-Mechanismus ab, eine annähernde quantitative Beschreibung des Auflösungs Vorgangs ist nur dann möglich, wenn die Grenzflächenversetzungen nicht mehr vorhanden sind.
- 9) In Anlehnung an Untersuchungen anderer Autoren wird davon ausgegangen, daß ein überwiegender Teil der zu beobachtenden Strahlenschädigung aus Zwischengitteratomen-Loops besteht. Die gebildeten Defektstrukturen sind stets in der Matrix und an der Ausscheidung: Matrix-Grenzfläche, in keinem Fall aber in der Ausscheidung zu finden. Ihre Dichte und Form ist im wesentlichen von der Bestrahlungstemperatur und dem Materialzustand beeinflusst. Aus einem Vergleich mit anderen Arbeiten kann entnommen werden, daß die

durch die keV-Ionenbestrahlung entstandenen Defektstrukturen und ihre Entwicklung mit der MeV-Ionenbestrahlung vergleichbar sind.

- 10) Innerhalb des 525°C - 625°C Temperaturbereiches wurde in der Ni-Cr-Al-Legierung auch bis 400 dpa keine Porenbildung festgestellt. Dies ist auf die Anwesenheit der γ' -Ausscheidungen zurückzuführen, wobei angenommen wird, daß die Leerstellen für die Diffusion der sich noch in der Matrix befindlichen gelösten Atome, die Rückdiffusion der aus den Ausscheidungen herausgestoßenen Atome und den Abbau der Defekte, d.h. die Diffusion der Matrix-Atome "verbraucht" werden.

LITERATUR

- Ardell, A. J., Mastel, B. und Laidler, J. J. [1974]
HVEM irradiation studies of several overaged γ/γ' alloys.
J. Nucl. Mat. 54 [1974] 313
- Ashby, M. F. und Brown, L. M. [1963]
Diffraction contrast from spherically symmetrical
coherency strains.
und
On diffraction contrast from inclusions.
Phil. Mag. 8 [1963] 1083, 1649
- Baker, R. G., Brandon, D. G. und Nutting, J. [1959]
The growth of precipitates.
Phil. Mag. 4 [1959] 1339
- Barbu, A. und Ardell, A. J. [1975]
Irradiation induced precipitation in Ni-Si alloys.
Scripta Met. 9 [1975] 1233
- Beardmore, P. [1969/70]
Hyperfine precipitation in Ni-alloys.
Mat. Sci. Engg. 5 [1969/70] 350
- Beardmore, P., Davies, R. G. und Johnston, T. L. [1969]
On the temperature dependence of the flow stress
of Ni-base alloys.
Trans. AIME 245 [1969] 1537
- Boltax, A. [1957]
Effects of radiation damage on precipitation hardening
alloys with special reference to Cu-Fe alloys.
ASTM Spec. Techn. Publ. 208 [1957] 183

- Boltax, A. [1959]
Effects of fast neutron irradiation on Cu-Fe precipitation
hardening alloys.
Bull. Am. Phys. Soc. 4 [1959] 136
- Boltax, A. [1965]
Displacement spike effects in copper rich Cu-Fe alloys.
Nucl. Appl. 1 [1965] 337
- Böhm, H. [1963]
Aushärtung
Aluminium 39 [1963] 753
- Böhm, H. [1974]
Bedeutung des Bestrahlungsverhaltens für die Auswahl
und Entwicklung warmfester Legierungen im Reaktorbau.
Arch. Eisenhüttenwes. 45 [1974] 821
- Böhm, H., Ehrlich, K. und Krammer, K.H. [1970]
Das Ausscheidungsverhalten der Nickellegierung
Inconel 625
Metall 24 [1970] 139
- Brinkman, J.A. [1956]
Production of atomic displacements by high-energy
particles.
Am. J. Physics 24 [1956] 246
- Bullough, R. und Perrin, R.C. [1971]
The theory of void growth in irradiated materials
in Voids Formed by Irradiation of Reactor Materials,
Pugh, S.F. et al. (Hrsg.) - BNES Proceedings/Reading
Uni. 1971, S. 80
- Burke, J. [1965]
The Kinetics of Phase Transformations in Metals
(Pergamon Press/London 1965)

- Denney, J. M. [1953]
Radiation-damage energy threshold in a f. c. c. alloy.
Phys. Rev. 92 [1953] 531
- Denney, J. M. [1954]
Experimental evidence for melted regions in metal
crystals resulting from particle bombardment.
Phys. Rev. 94 [1954] 1417
- Denney, J. M. [1956]
Precipitate kinetics and structure in a Cu-2.4% Fe alloy.
Acta Met. 4 [1956] 586
- Dienes, G. J. und Damask, A. C. [1958]
Radiation enhanced diffusion in solids.
J. Appl. Phys. 29 [1958] 1713
- Dixon, C. E. und Bowen, D. B. [1954]
Radiation ordering by cyclotron particles.
Phys. Rev. 94 [1954] 1418
- Easterling, K. E. und Johannesson, T. [1971]
On the coherency loss problem of growing particles.
Phil. Mag. 24 [1971] 981
- Eyre, B. L. [1973]
TEM studies of point defect clusters in fcc and bcc metals.
J. Phys. F (Metal Physics) 3 [1973] 422
- Friedel, J. [1964]
Dislocations (Pergamon Press/London, 1964)
- Gettings, M., Meyer, O. und Linker, G. [1974]
Radiation damage in ion implanted Vanadium
Rad. Eff. 21 [1974] 51
- Gleiter, H. [1968]
Die Formänderung von Ausscheidungen durch Diffusion
im Spannungsfeld von Versetzungen.
Acta Met. 16 [1968] 455

- Gleiter, H. und Hornbogen, E. [1967]
Die Bildung von kohärenten geordneten Teilchen
in einer Ni-Cr-Al-Legierung.
Z. Metallkunde 58 [1967] 157
- Grinchuk, P.P. und Kirsanov, V.V. [1974]
Dynamic destruction of G.P. -Zones in process
of irradiation.
Phys. Metals and Metallography 38, No. 4 [1974] 73
- Hertel, B. et al. [1974]
Formation of interstitial agglomerates and gas bubbles
in cubic metals irradiated with 5 keV Argon ions
in Applications of Ion Beams to Metals, Picraux, S. T.
et al. (Hrsg.) (Plenum Press/New York 1974) S. 507
- Hirsch, P.B. et al. [1965]
Electron Microscopy of Thin Crystals
(Butterworths/London 1965)
- Hornbogen, E. [1967]
Die elektronenmikroskopische Untersuchung der
Ausscheidung in Al-Cu-Mischkristallen.
Aluminium 43 [1967] 41, 115, 163
- Hornbogen, E. und Glenn, R.C. [1960]
A metallographic study of precipitation of copper
from alpha iron.
Trans. AIME 218 [1960] 1064
- Hornbogen, E. und Jung, H.P. [1964]
Aufstellung eines Keimbildungsdiagramms von
 α -Fe-Cu-Legierungen.
Z. Metallkunde 55 [1964] 691

- Hornbogen, E. und Roth, M. [1967]
Die Verteilung kohärenter Teilchen in Ni-Legierungen.
Z. Metallkunde 58 [1967] 842
- Jacobs, M.H. [1972]
The structure of the metastable precipitates formed
during ageing of an Al-Mg-Si alloy.
Phil. Mag. 26 [1972] 1
- Jenkins, M.L., Katerbau, K.-H. und Wilkens, M. [1976]
TEM-studies of displacement cascades in Cu_3Au , Part II.
Phil. Mag. 34 [1976] 1155
- Kaletta, D. [1973]
Persönliche Mitteilung (Kernforschungszentrum, Karlsruhe).
- Kaletta, D. [1976]
Die Defektstruktur in Vanadium und zwei binären V-Ti-
Legierungen nach He-Implantation bei 200- und 2000-keV
und höheren Temperaturen.
Doktorarbeit/Universität Karlsruhe, 1976
- Kirchner, L.G. et al. [1976]
Nickel-ion damage in a precipitation-hardened Ni-Al alloy.
ASTM Spec. Techn. Publ. 611 [1976] 370
- Kroupa, F. [1966]
Dislocation loops
in Theory of Crystal Defects, Proc. Summer School,
Hrazany 1964, Gruber, B. (Hrsg.) (Academia/Prague
1966) S. 275
- Liu, K.S. et al. [1972]
Structural changes in age-hardenable aluminium alloys
induced by low temperature neutron irradiation.
Rad. Eff. 15 [1972] 37

- Miura, K., Fiore, N.F. und Allen, C.W. [1973/74]
Gamma irradiation induced changes in precipitates.
J. Nucl. Mat. 49 [1973/74] 108
- Miura, K. et al. [1974]
Precipitate morphology changes in gamma-irradiated
age-hardened Al-alloys
in Materials Science Symposium (Detroit/Mich. Oct. 1974,
AED-CONF 74 507-007)
- Nelson, R.S. [1969]
Physical state of ion implanted solids.
Proc. Roy. Soc. A311 [1969] 53
- Nelson, R.S. [1974]
Precipitation during ion bombardment of metals
in Applications of Ion Beams to Metals, Picraux, S.T.
et al. (Hrsg.) (Plenum Press/New York 1974) S. 221
- Nelson, R.S., Hudson, J.A. und Mazey, D.J. [1972]
The stability of precipitates in an irradiation environment.
J. Nucl. Mat. 44 [1972] 318
- Nelson, R.S., Mazey, D.J. und Hudson, J.A. [1970]
The use of ion accelerators to simulate fast neutron-
induced voidage in metals.
J. Nucl. Mat. 37 [1970] 1
- Norgett, M.J., Robinson, M.T. und Torrens, I.M. [1972]
A proposed standard for calculating displacement dose rates
in IAEA Meeting on Radiation Damage Units, Seattle,
Wash./USA. Okt./Nov. 1972
- Norris, D.I.R. [1971]
The simulation of fast reactor irradiation effects in HVEM
in Voids Formed by Irradiation of Reactor Materials,
Pugh, S.F. et al. (Hrsg.) - BNES Proceedings/Reading
Uni. 1971, S. 247

Philips, V.A. [1964]

Electron microscope observations on precipitation
in Cu-3.1 wt % Co alloy.

Trans. AIME 230 [1964] 967

Philips, V.A. [1966]

A metallographic study of precipitation in a Ni-12.7 at %
alloy.

Acta Met. 14 [1966] 1533

Piercy, G.R. [1962]

The detection of displacement spikes by measuring the
effect of particle size on the dissolution of precipitate
particles by fast neutron irradiation.

J. Phys. Chem. Solids 23 [1962] 463

Potter, D.I. und Hoff, H.A. [1975]

The effect of heavy ion irradiation on the morphology of
 γ/γ' alloys

in Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals,
Robinson, M. T. und Young, J. W. (Hrsg.) (CONF-
751006, Gatlinburg /1975) S.1092

Potter, D.I. und Hoff, H.A. [1976]

Irradiation effects on precipitation in γ/γ' Ni-Al alloys.

Acta Met. 24 [1976] 1155

Rastogi, P.K. und Ardell, A.J. [1969]

The coherent solubilities of γ' in Ni-Al, Ni-Si and
Ni-Ti alloys.

Acta Met. 17 [1969] 595

Rastogi, P.K. und Ardell, A.J. [1971]

The coarsening behaviour of γ' precipitates in Ni-Si alloys.

Acta Met. 19 [1971] 321

Rowcliff, A.F. et al. [1975]

Swelling and irradiation induced microstructural changes
in Ni-based alloys.

ASTM Spec. Techn. Publ. 570 [1975] 565

Russel, K.C. [1975]

Nucleation in solids

in Nucleation III, Zettlemoyer, A.C. (Hrsg.) (Marcel Dekker/
New York, wird veröffentlicht)

Saji, S., Hori, S. und Mima, G. [1973]

Ageing characteristics of Cu-Fe alloys.

Trans. JIM 14 [1973] 82

Schneider, W. [1974]

Persönliche Mitteilung (Kernforschungszentrum, Karlsruhe).

Seiler, G., Wilkens, M. und Katerbau, K.H. [1974]

Diffraction contrast of disordered zones formed by heavy
ion bombardment of ordered specimens of type Cu_3Au
in 8th International Congress on Electron Microscopy,
Vol. 1, Canberra 1974, S. 618

Sharpe, R.M. und Whapham, A.D. [1974]

Effects of irradiation on γ' precipitation in Nimonic PE 16
alloy

in KTG/BNES Conference on Irradiation Behaviour of
Fuel Cladding and Core Component Materials, Karlsruhe
1974, S. 103

Shewmon, P.G. [1969]

Transformations in Metals, (McGraw-Hill Book Company,
London/1969), S. 290

Shiraishi, K. [1970]

Precipitation hardening of Al-2.2 wt % Li alloy after
neutron irradiation.

Trans. JIM 11 [1970] 381

- Skalicky, P. und Oppolzer, H. [1972]
Elektronenmikroskopische Untersuchung der
Ausscheidungs Vorgänge in einer Al-Mg-Si-Legierung.
Z. Metallkunde 63 [1972] 73
- Sklad, P.S. und Mitchell, T.E. [1975]
Effects of electron irradiation on precipitation
in Al-3.5 % Cu.
Acta Met. 23 [1975] 1287
- Sood, D.K. und Dearnaley, G. [1976]
Ion implanted surface alloys in Cu and Al.
in Applications of Ion Beams to Materials 1975,
Inst. Phys. Conf. Ser. No.28 [1976] 196
- Taylor, A. und Hinton, K.G. [1952/53]
A study of order-disorder and precipitation phenomena
in Ni-Cr alloys.
J. Inst. Metals 81 [1952/53] 169
- Taylor, A. und Floyd, R.W. [1952/53]
The constitution of Ni-rich Ni-Cr-Al System.
J. Inst. Metals 81 [1952/53] 451
- Thomas, G. [1961/62]
Electron-transmission studies of Al-Mg-Si alloys.
J. Inst. Metals 90 [1961/62] 57
- Vaidya, W.V. und Böhm, H. [1974]
Effect of Ni⁺-ion irradiation on precipitation behaviour
and stability of precipitates in Inconel 625
in KTG/BNES Conference on Irradiation Behaviour of Fuel
Cladding and Core Component Materials, Karlsruhe 1974,
S. 99

Vook, F.L. et al. [1975]

APS Report on Radiation Effects on Materials
Rev. Mod. Phys. 47, Suppl. 3 [1975]

Weatherly, G.C. und Nicholson, R.B. [1968]

An electron microscope investigation of the interfacial
structure of semi-coherent precipitates.
Phil. Mag. 17 [1968] 801

Woolhouse, G.R. und Ipohorski, M. [1971]

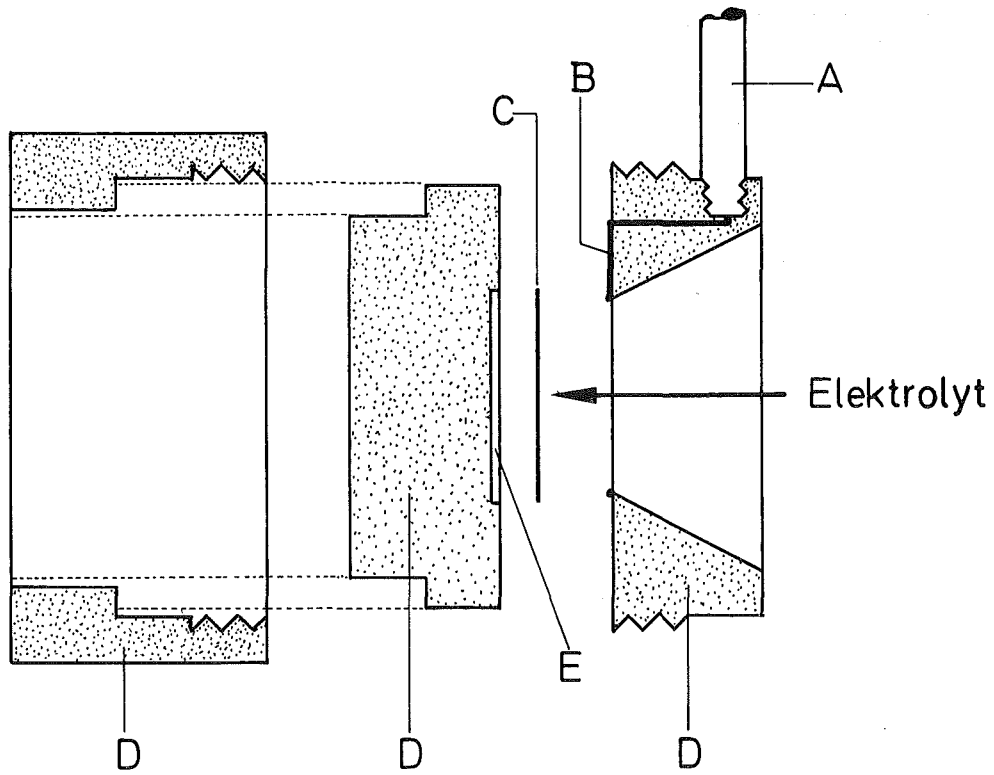
On the interaction between radiation damage and coherent
precipitates.
Proc. Roy. Soc. A324 [1971] 415

Wiedersich, H. [1972]

On the theory of void formation during irradiation.
Rad. Eff. 12 [1972] 111

Williams, K.R. und Fisher, S.B. [1975]

The interaction of dislocation loop and γ' precipitates
in Ni-based alloys.
Rad. Eff. 25 [1975] 97



- A Stromleiter
- B Platindraht (Anode)
- C Probe (Anode)
- D Probenhalter
 (zueinanderpassende Teile aus Teflon)
- E Vertiefung entsprechend der Probenform

Abb. 1 :- Der fürs Vorpulieren verwendete Probenhalter.

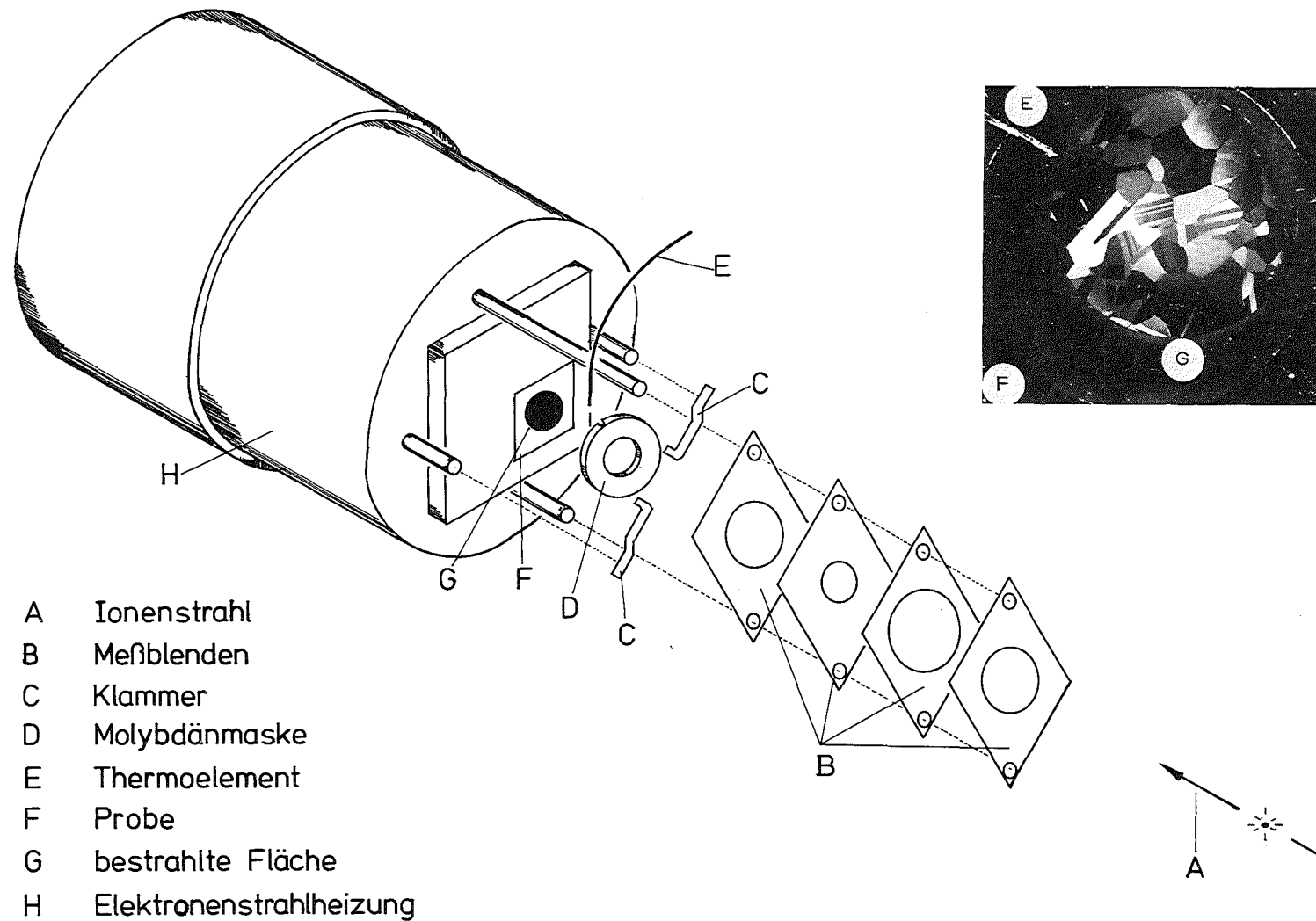


Abb. 2 :- Schematische Darstellung des Probeneinbaues für Bestrahlung bei höheren Temperaturen. Die obige Aufnahme (Makroaufnahme x6, P-30, 398 dpa bei 625^oC) zeigt die Temperaturmeßstelle (Thermoelementenspur) in unmittelbarer Nähe der bestrahlten Fläche.

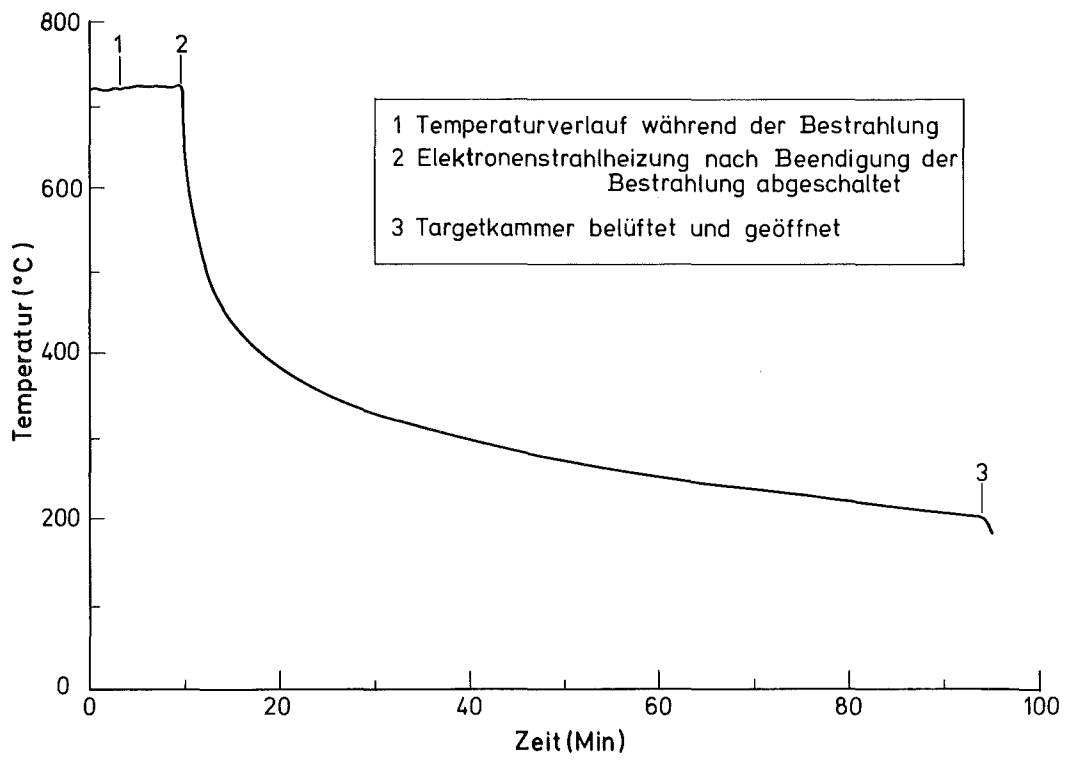


Abb. 3 :- Ausschnitt einer Abkühlungskurve nach der Bestrahlung bei 725°C.

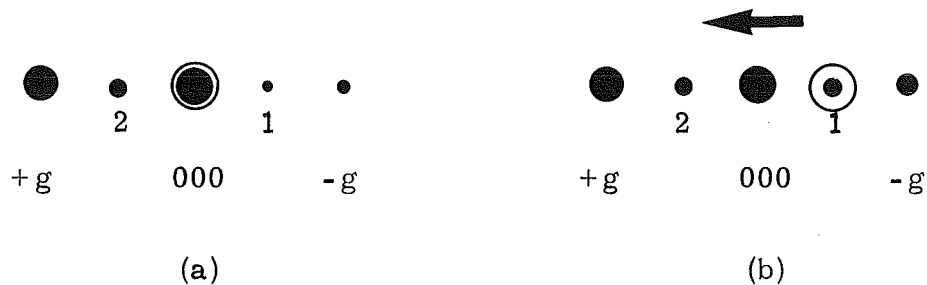
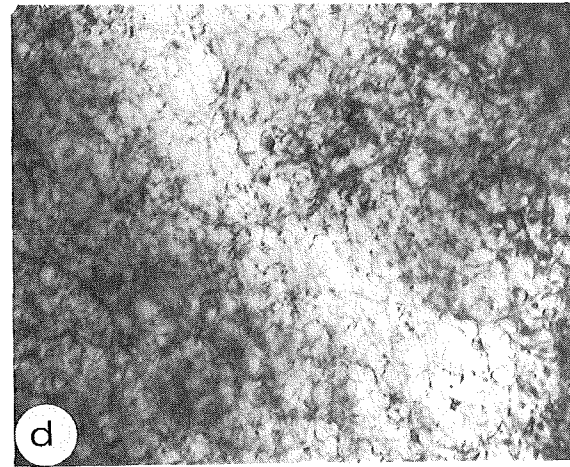
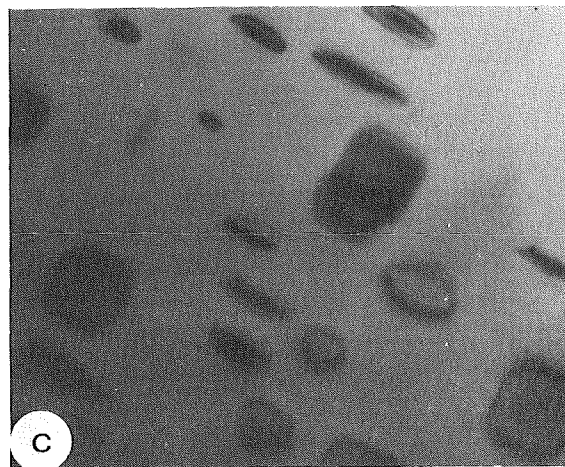
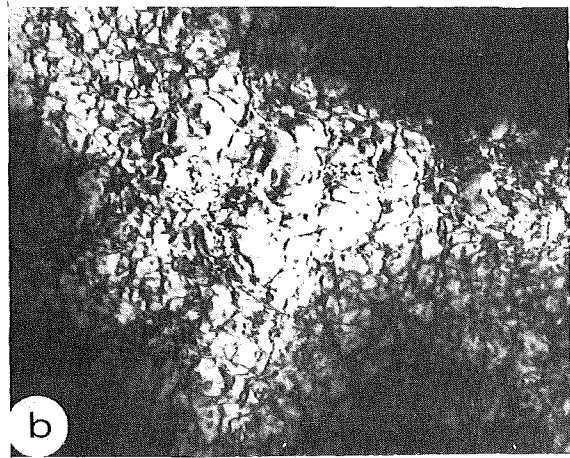
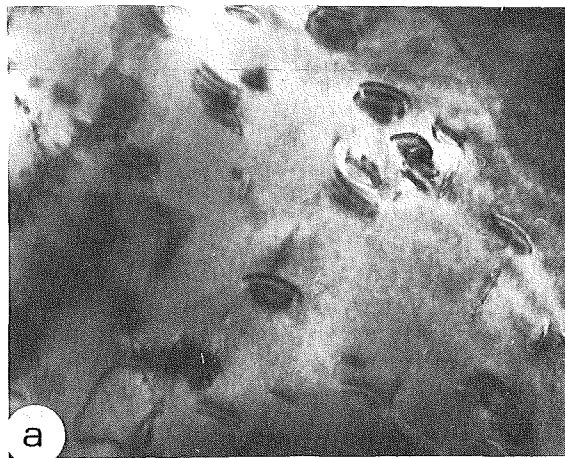


Abb. 4 :- Schematische Darstellung des Hellfeld (a)- und Dunkelfeld (b)-Verfahrens. Der Kreis um den Beugungspunkt bezeichnet die Objektivblende.

a) Die mit $+g$ bezeichnete Netzebene ist in Braggscher Lage und beeinflusst den Kontrast in dem mit dem Nullstrahl aufgenommenen Hellfeld-Bild, im Hellfeld erscheint der Überstruktureflex 2 stärker als 1.

b) Um die Abbildung der Ausscheidung durch zentriertes Dunkelfeld zu erreichen, wird der Strahl in Richtung der in Braggscher Lage reflektierenden Netzebene $+g$ gekippt (der Pfeil zeigt die Strahlkipprichtung) bis der Überstruktureflex 1 an der Stelle des Nullstrahls steht. Eine weitere Steigerung der Intensität ist durchs Kippen und/oder Drehen der Probe zu erreichen (Beobachtung bei Umschaltung auf Normalabbildung), wenn die Probe die Braggsche Bedingung exakt erfüllt, d. h. im Zwei-Strahl-Fall. Wird der Strahl in Richtung $-g$ gekippt, verlieren der im Hellfeld stark erscheinende Überstruktureflex 2 und die Netzebene $+g$ ihre Intensität.



— 0,5 μm —

Abb. 5 :- Die strahlungsinduzierte Auflösung der γ^+ -Ausscheidungen in Inconel 625-Legierung nach der Bestrahlung mit 250-keV- Ni^+ , Dosis = 396 dpa, Temperatur = 50°C

a) unbestrahlt (675°C-166 h) und b) bestrahlt
c) unbestrahlt (675°C-305 h) und d) bestrahlt

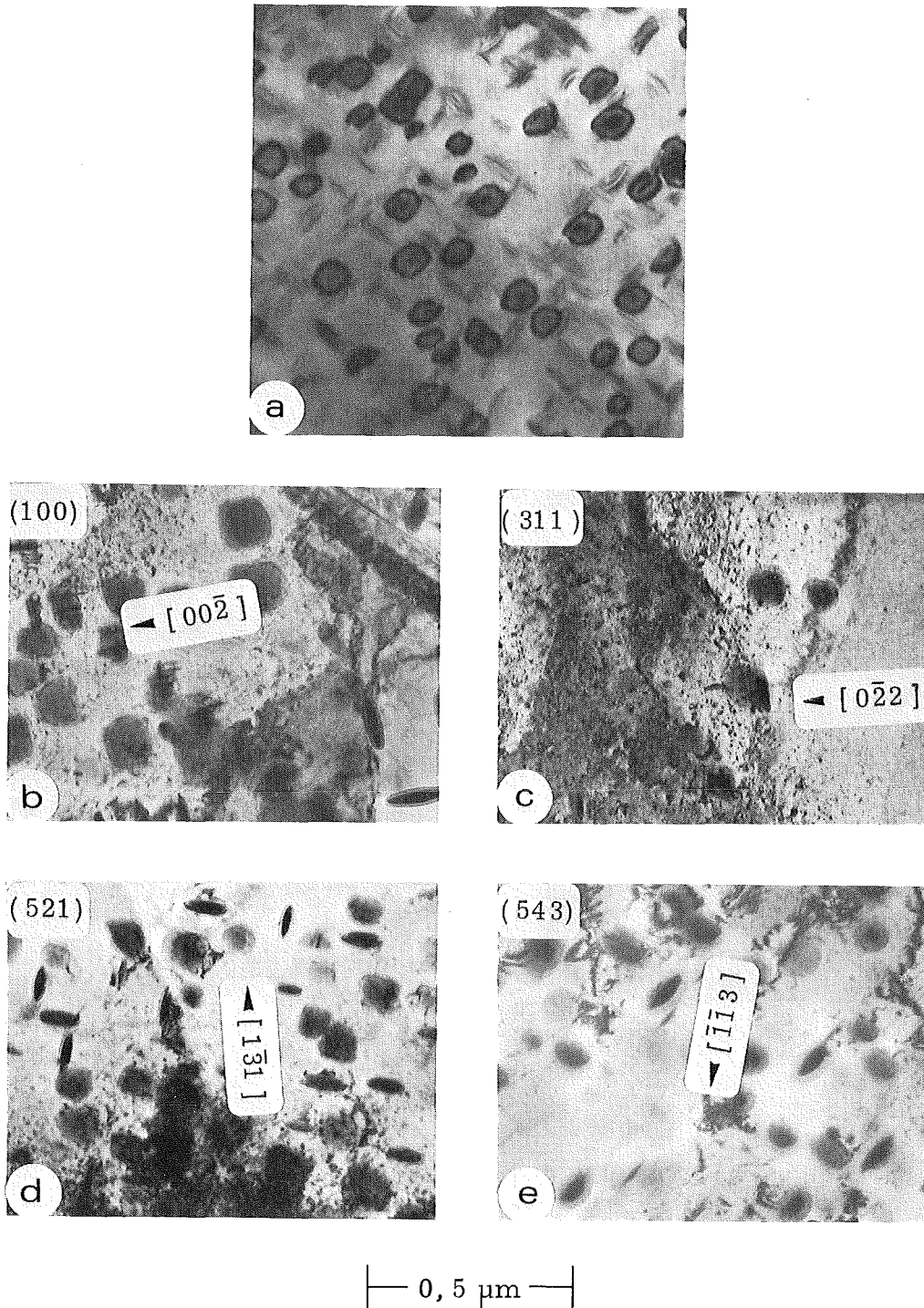


Abb. 6 :- Der in verschiedenen Matrix-Orientierungen beobachtete Verlust des Grenzflächenkontrasts der γ^+ -Ausscheidungen in Inconel 625-Legierung nach der Bestrahlung mit 250-keV- Ni^+ , Dosis = 3 dpa, Temperatur = 50°C

a) unbestrahlt (675°C -216 h) und b) - e) bestrahlt

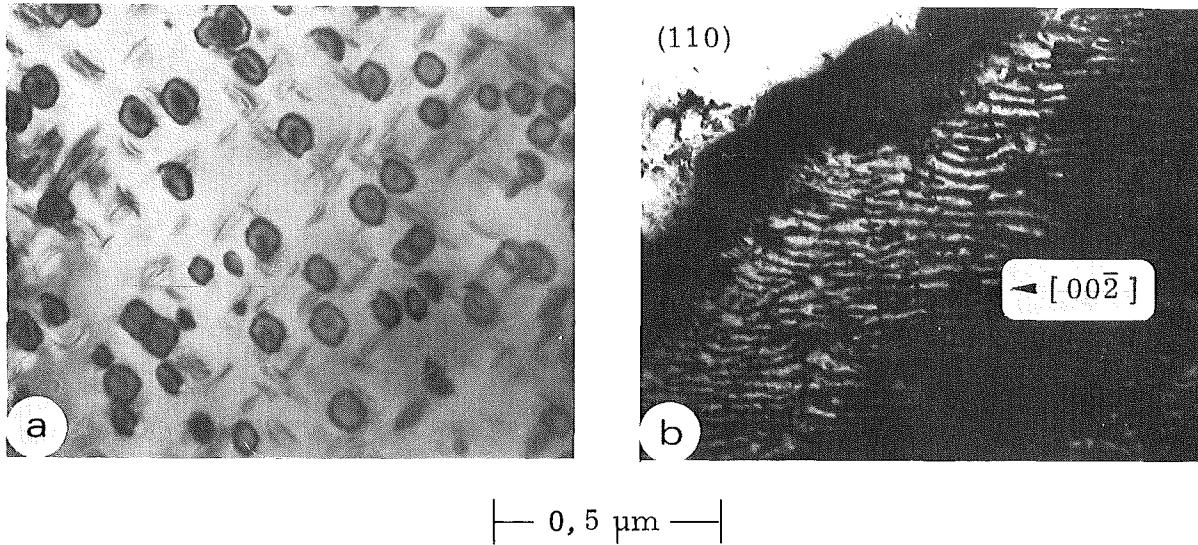


Abb. 7 :- Auflösung der γ^+ -Ausscheidungen in Inconel 625-Legierung nach der Bestrahlung mit 250-keV- Ni^+ , Dosis = 66 dpa, Temperatur = 50°C

a) unbestrahlt (675°C -216 h) und b) bestrahlt

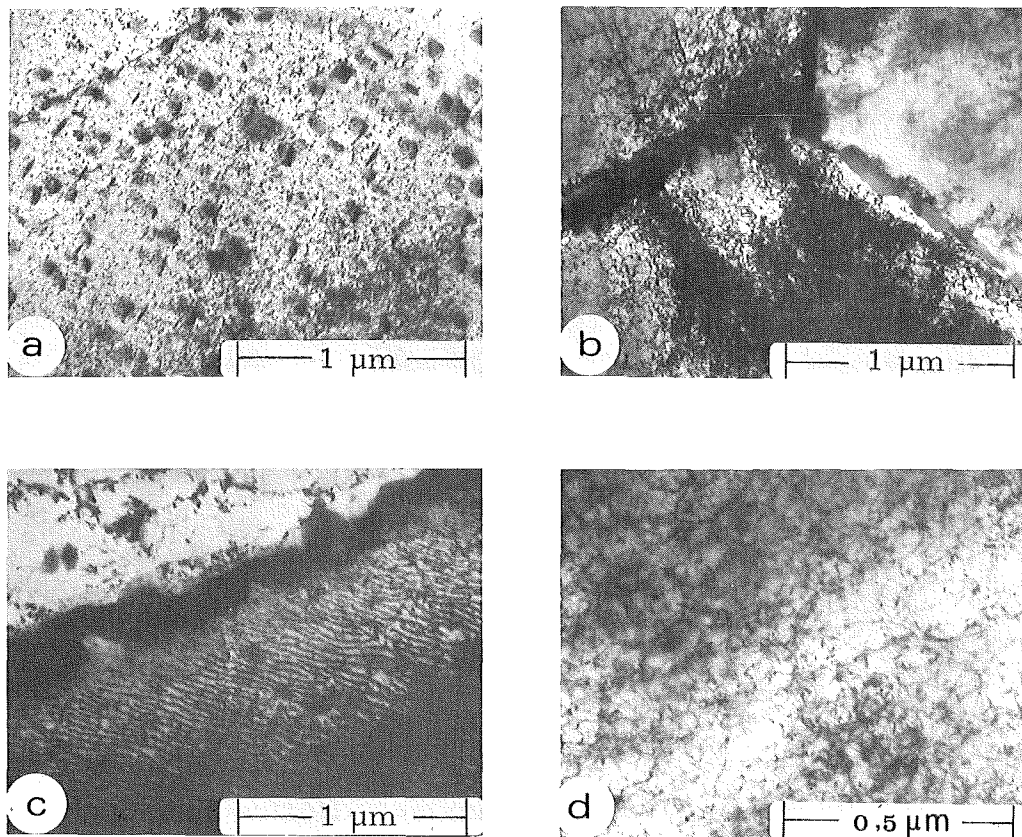


Abb. 8 :- Die strahlungsinduzierte Schädigung in Inconel 625-Legierung im ausgelagerten Zustand nach der Bestrahlung bei Raumtemperatur (50°C)

$E = 250\text{-keV}$

a) 675°C -216 h, 3 dpa b) 675°C -305 h, 40 dpa c) 675°C -216 h, 66 dpa
 d) 675°C -305 h, 396 dpa

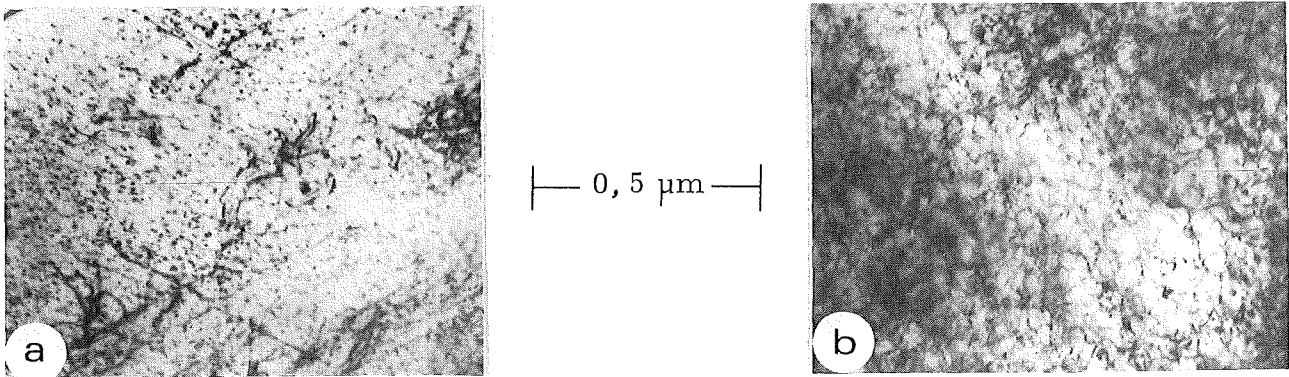


Abb. 9 :- Abhängigkeit der strahlungsinduzierten Defektstrukturen von dem Ausgangszustand des Materials, Inconel 625-Legierung bestrahlt mit 250-keV-Ni⁺. Dosis = 396 dpa, Temperatur = 50°C.

a) lösungsgeglüht (1100°C-4 h/15°C) b) ausgelagert (675°C-305 h)

(die Versetzungen in Abb.a sind während der Probenvorbereitung entstanden)

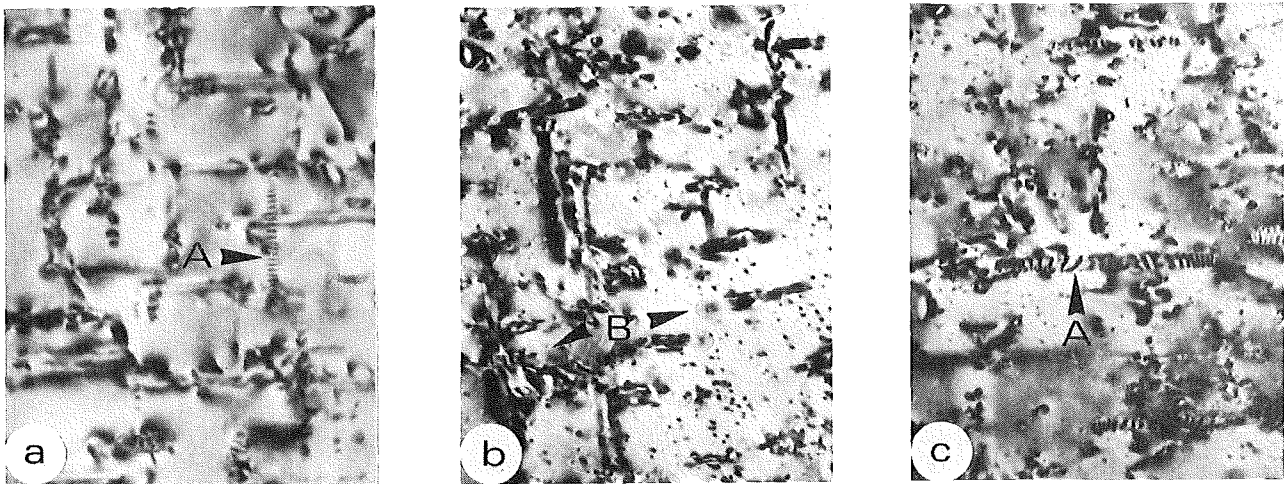
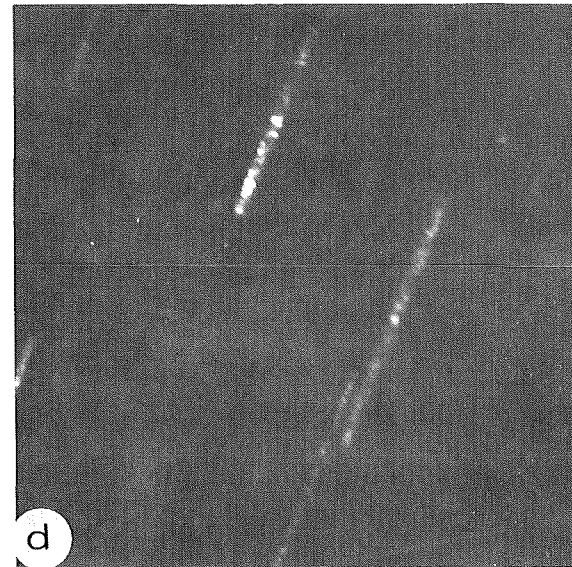
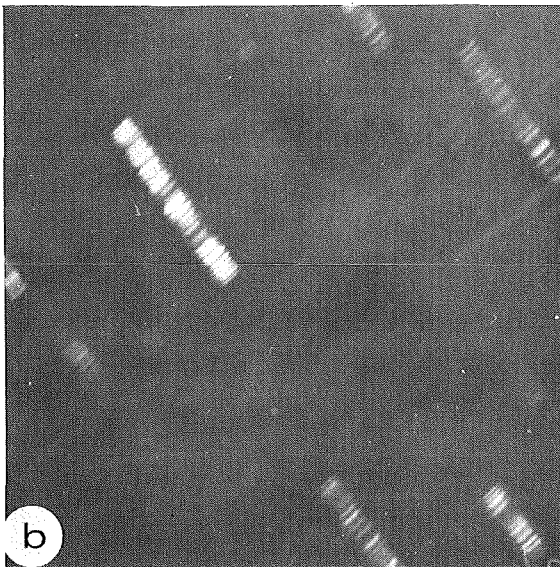
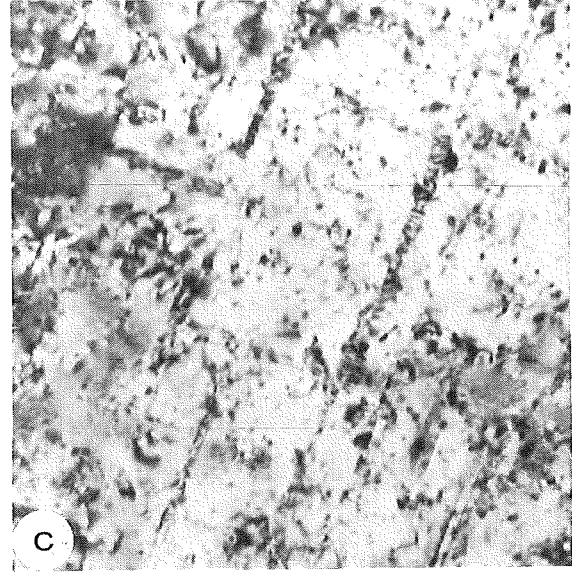
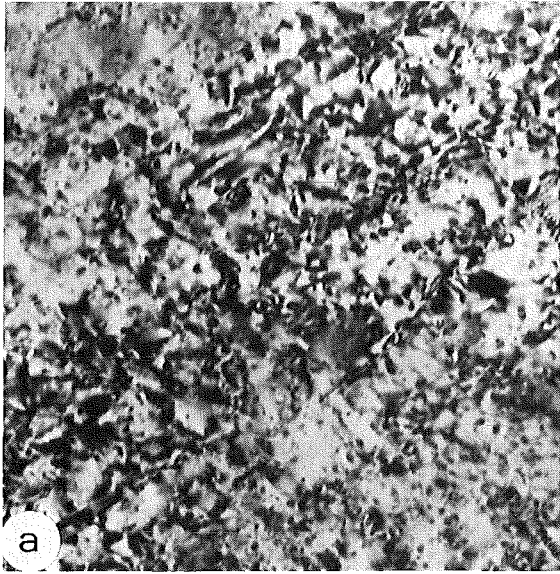


Abb. 10 :-Stabilität der β'-Ausscheidungen unter Bestrahlung.

Al-Mg-Si-Legierung, vorausgelagert 300°C-0,5 h (Salzbad) und mit 250-keV-Al⁺ bestrahlt. Temperatur = 50°C.

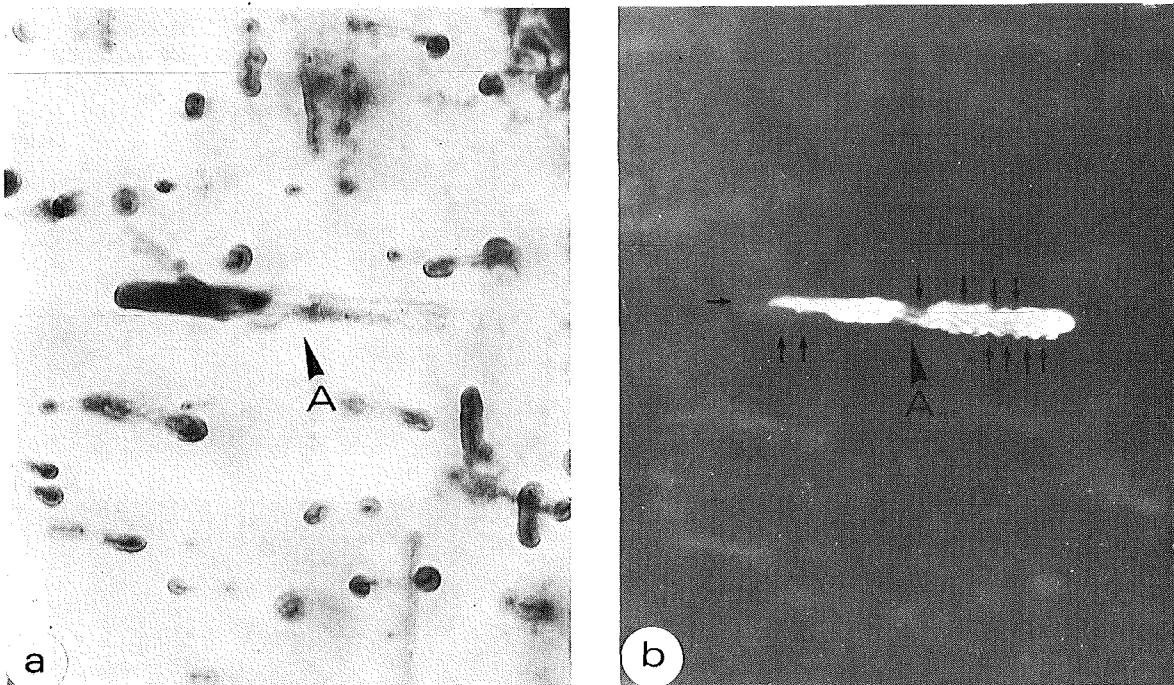
a) unbestrahlt b) 4 dpa c) 9 dpa.



— 0,5 μm —

Abb. 11 :- Nachweis der β' -Ausscheidungen in Al-Mg-Si-Legierung in verschiedenen Eindringtiefen der Ionen, vorausgelagert 300°C -0,5 h (Salzbad) und mit 250-keV- Al^+ bestrahlt, (Foliendicke ca. 2000 Å). Dosis = 9 dpa, Temperatur = 50°C .

- | | |
|--------------------------------------|--|
| a) und b) Hellfeld : Dunkelfeld-Paar | -keine Oberflächenbehandlung |
| c) und d) Hellfeld : Dunkelfeld-Paar | -vor der Abdünnung ca. 2000 Å von der Oberfläche abgetragen. |



— 0,5 μm —

Abb. 12 :-Verlust der Grenzflächenversetzungen sowie des Kontrastes bei beginnender Auflösung der β' -Ausscheidungen in Al-Mg-Si-Legierung, vorausgelagert 300°C -0,5 h (Salzbad) und mit 250-keV- Al^+ bestrahlt. Dosis = 44 dpa, Temperatur = 50°C .

a) Hellfeld-Abbildung b) Dunkelfeld-Abbildung der gleichen Stelle.

Im Vergleich zu Dunkelfeld-Abbildungen 11b und d stellt man in Abb.12b eine Veränderung der Morphologie von β' -Ausscheidungen, und zwar ist die scheinbare Fragmentierung der Ausscheidungen, die wegen der Grenzflächenversetzungen entsteht (s. Kap.6.2.1), verschwunden.

Die mit Pfeilen markierten Stellen verdeutlichen die Teilchenauflösung, die von der Grenzfläche aus angefangen hat; eine Veränderung im Innen des Teilchens ist dabei nicht erkennbar.

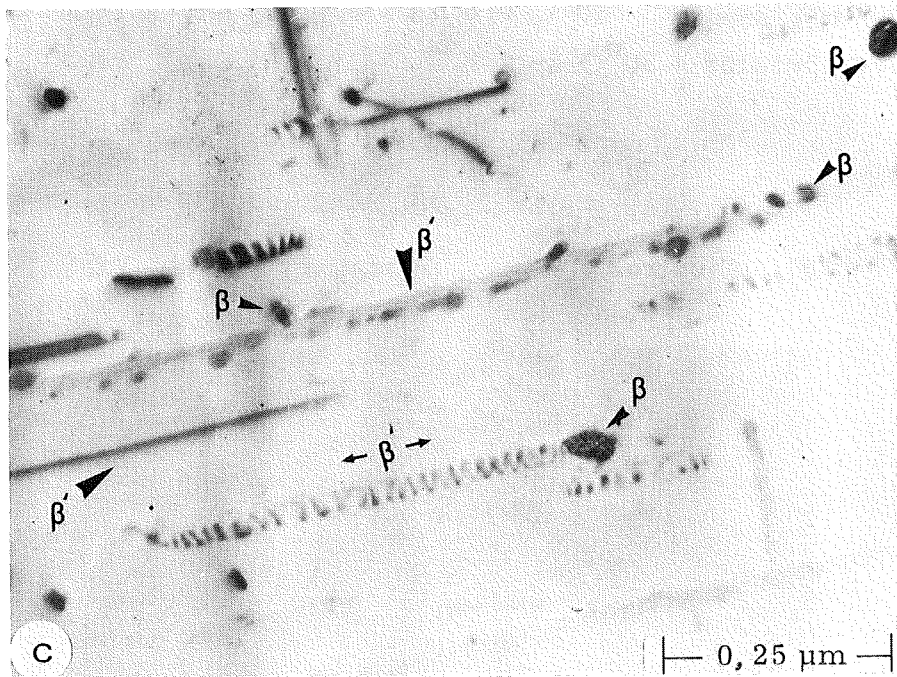
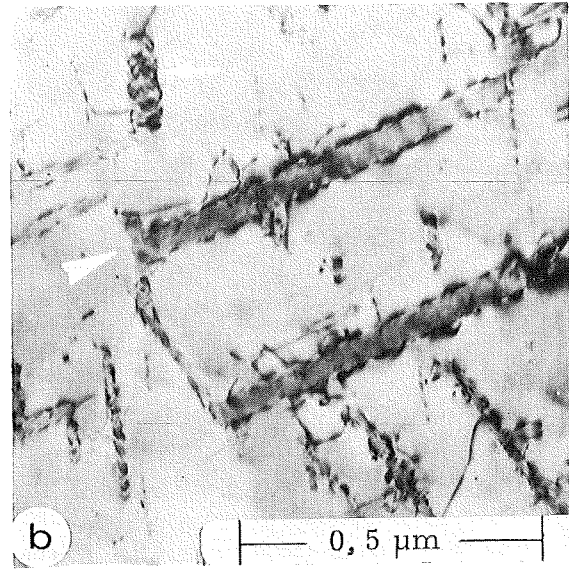
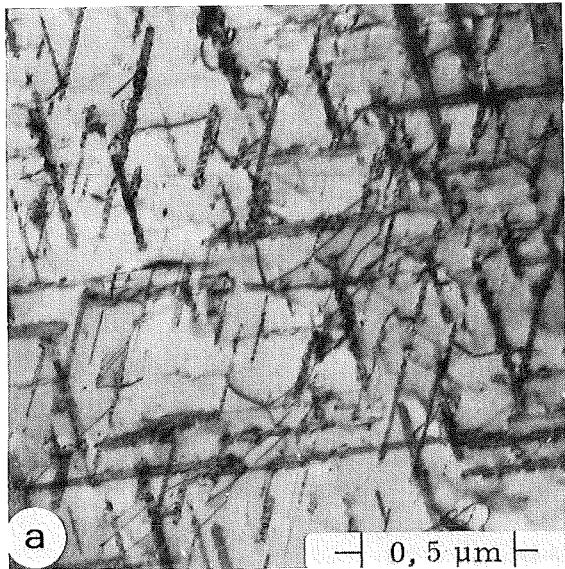
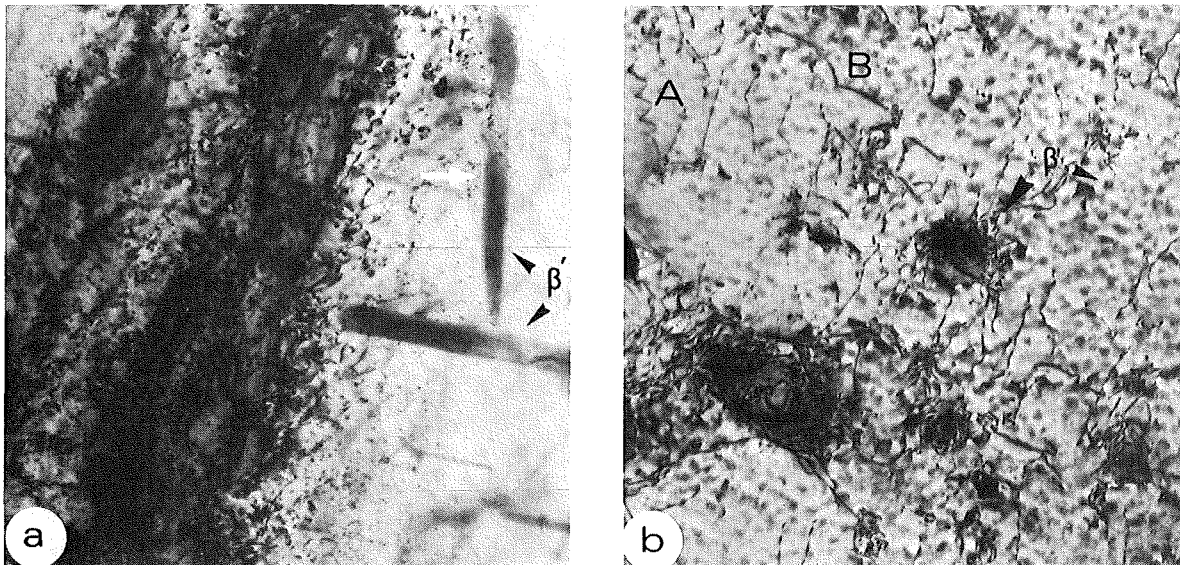


Abb. 13 :-Der ($\beta' + \beta$)-Zustand in Al-Mg-Si-Legierung vor der Bestrahlung, ausgelagert bei 300°C -0,5 h (Vakuum).

- a) Die Grenzflächenversetzungen um die β' -Ausscheidungen
- b) (Moiré)-Kontrast der β' -Ausscheidungen
- c) Bildung der stabilen β -Ausscheidungen an den stabförmigen, metastabilen β' -Ausscheidungen.



— 1 μm —

Abb. 14 :- Die Stadien während der $\beta' \rightarrow \beta$ -Umlösung, Al-Mg-Si-Legierung, vorausgelagert 300°C -0,5 h (Vakuu) und mit 250-keV- Al^+ bestrahlt, Temperatur = 50°C .

a) 18 dpa

b) 90 dpa.

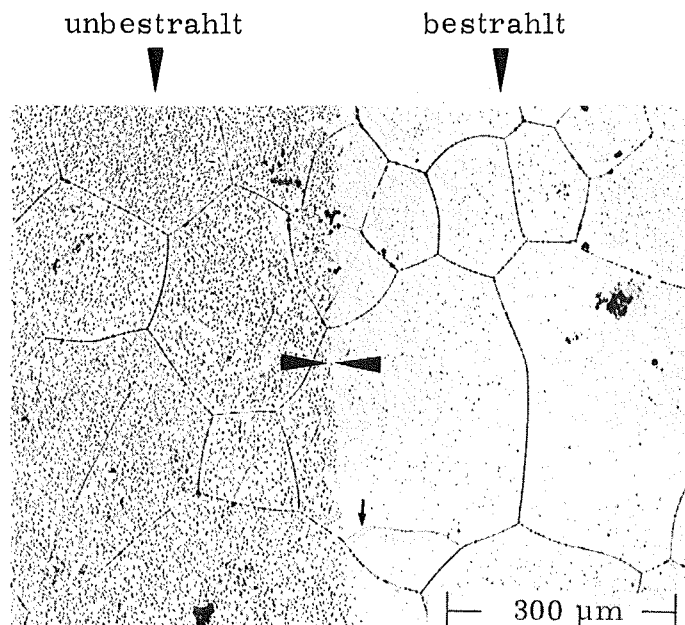
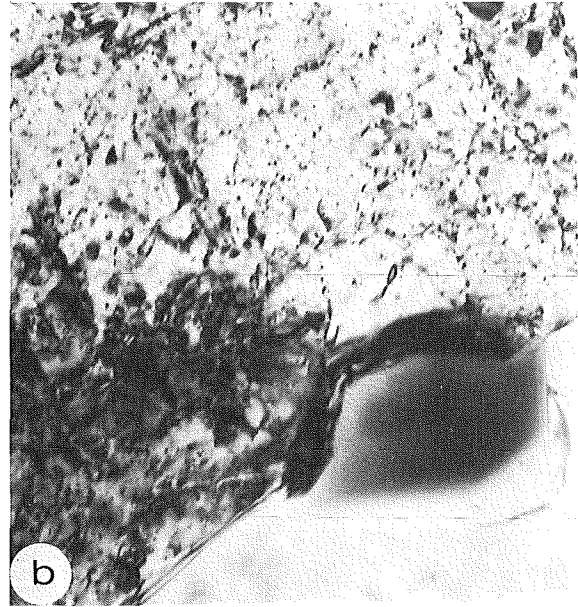


Abb. 15 :- Die strahlungsinduzierte $\beta' \rightarrow \beta$ -Umlösung in Al-Mg-Si-Legierung, vorausgelagert 300°C -0,5 h (Vakuu) und mit 250-keV- Al^+ bestrahlt. Dosis = 90 dpa, Temperatur = 50°C . Die Pfeilspitzen zeigen den Grenzverlauf und die mit Pfeil markierte Stelle zeigt die Korngrenzenbewegung.

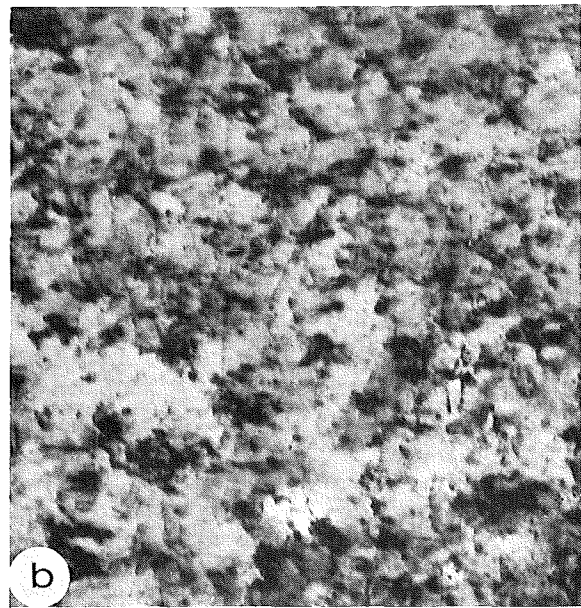
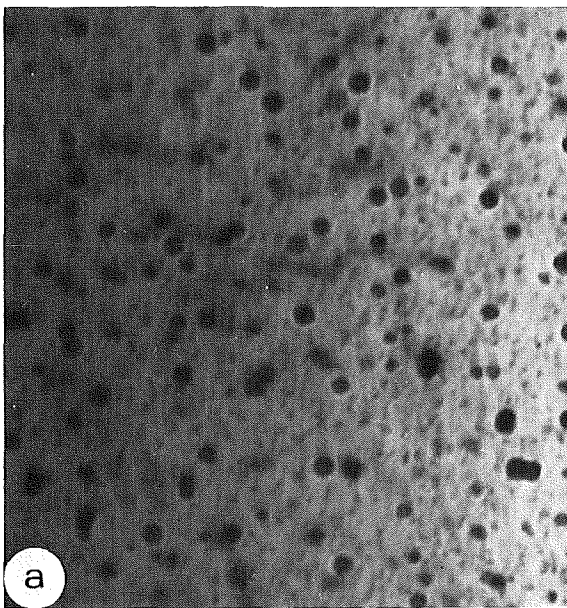


— 0,5 μm —

Abb. 16 :- Die Strahlenschädigung in der Umgebung der Korngrenze, Al-Mg-Si-Legierung, vorausgelagert 300°C -0,5 h (Salzbad) und mit 250-keV- Al^{+} bestrahlt, Temperatur = 50°C .

a) 4 dpa

b) 9 dpa

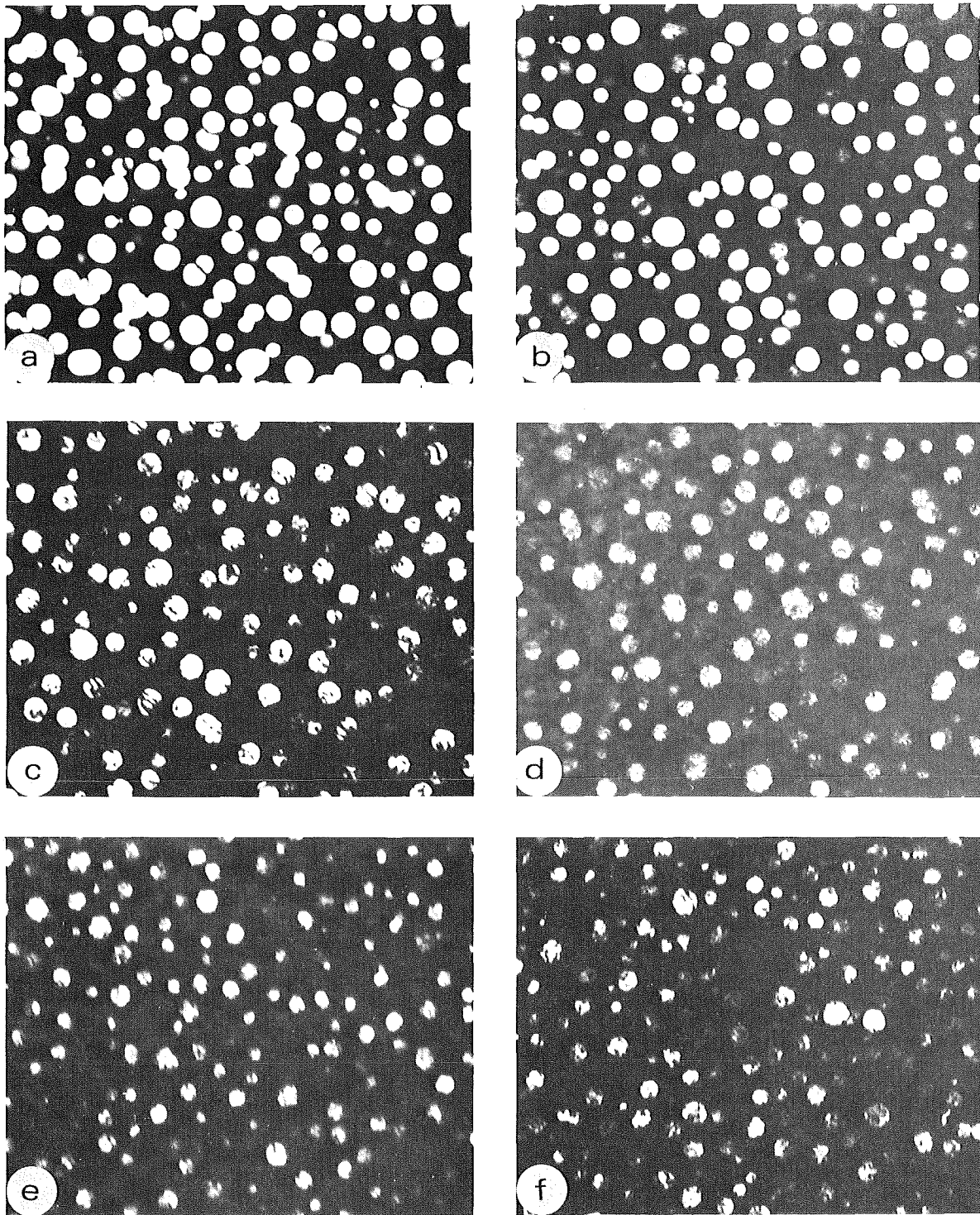


— 0,5 μm —

Abb. 17 :- Die strahlungsinduzierte Auflösung der inkohärenten Cu-Ausscheidungen, Fe-Cu-Legierung, vorausgelagert 600°C -10 h und mit 250-keV- Fe^{+} bestrahlt. Dosis = 66 dpa, Temperatur = 50°C .

a) unbestrahlt

b) bestrahlt



— 0,5 μm —

Abb. 18 :- Die scheinbaren Veränderungen in der Morphologie der γ' -Ausscheidungen unter Bestrahlung. Ni-Cr-Al-Legierung, vorausgelagert 700°C -864 h und mit 250-keV-Ni^{+} bestrahlt, Temperatur $=340^{\circ}\text{C}$.

a) vor der Bestrahlung

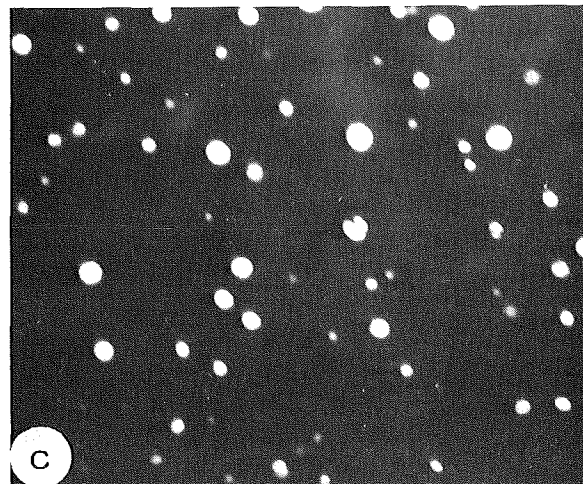
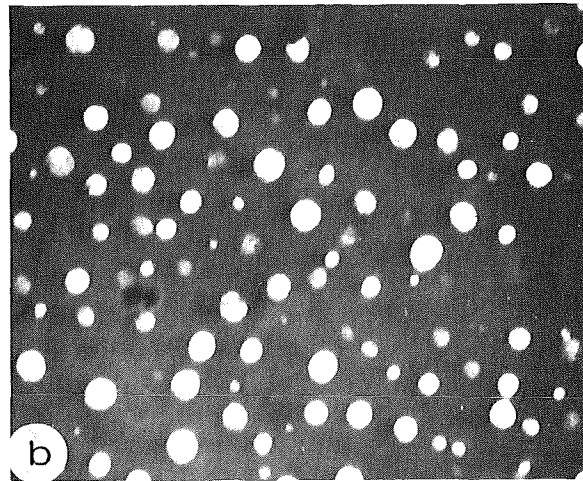
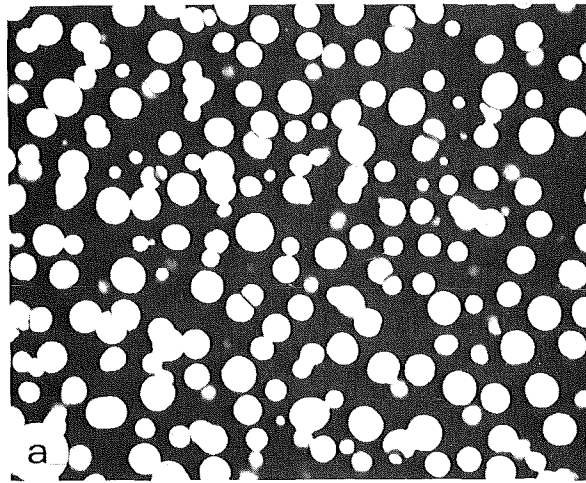
b) 0,2 dpa

c) 2 dpa

d) 40 dpa

e) 199 dpa

f) 398 dpa



— 0,5 μm —

Abb. 19 :- Morphologie der γ' -Ausscheidungen bei beginnender Auflösung unter Bestrahlung, Ni-Cr-Al-Legierung, vorausgelagert 700°C -864 h und mit 250-keV-Ni^+ bestrahlt, Temperatur = 725°C .

a) vor der Bestrahlung b) 2 dpa c) 20 dpa
(nach 40 dpa waren die Ausscheidungen vollständig aufgelöst)

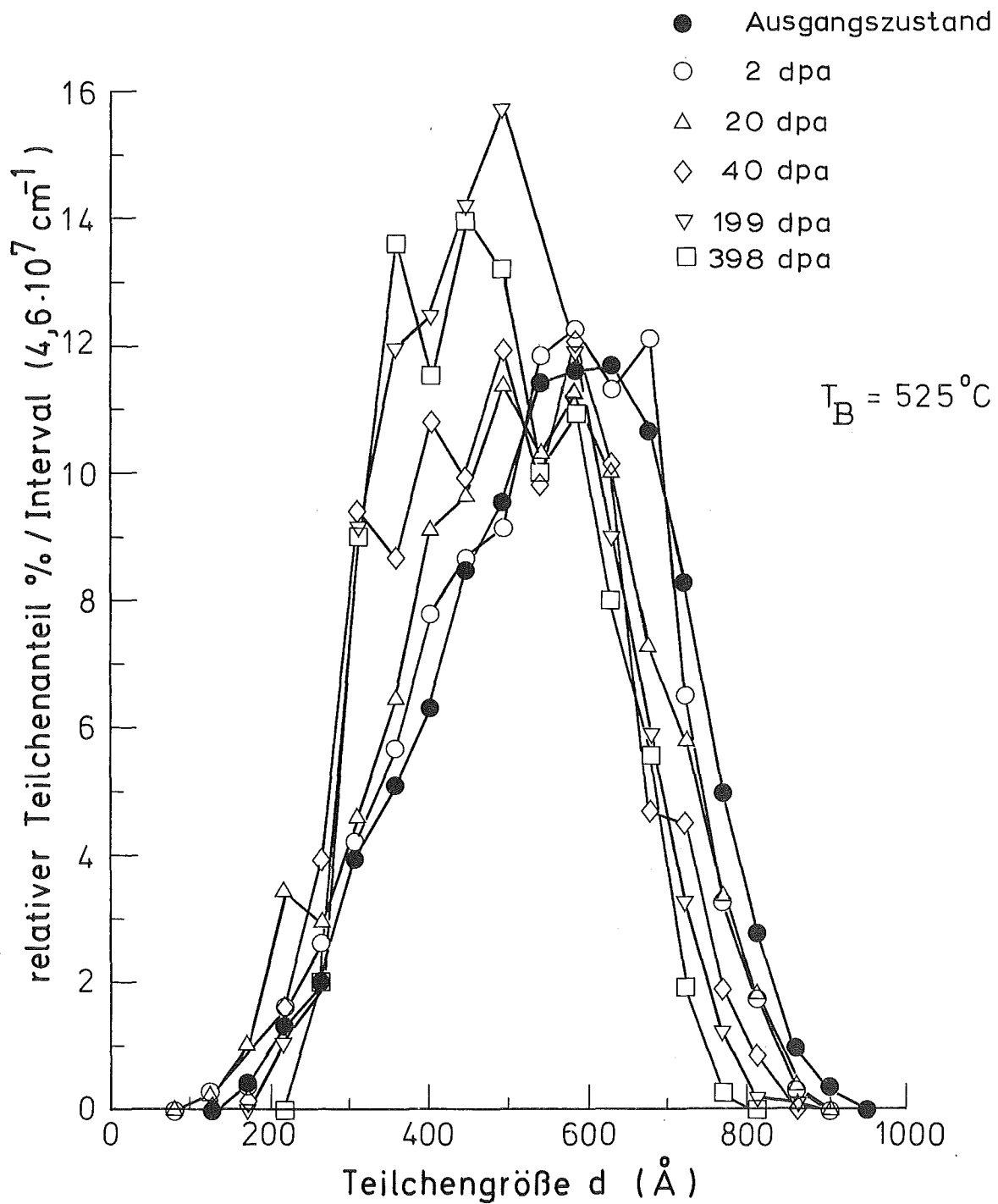


Abb. 20 :- Einfluß der Bestrahlung auf die Verteilung der γ' -Teilchen.
 Ni-Cr-Al-Legierung, vorausgelagert $700^\circ\text{C} - 864 \text{ h}$ und mit 250-keV-Ni^+
 bestrahlt, Temperatur = 525°C .

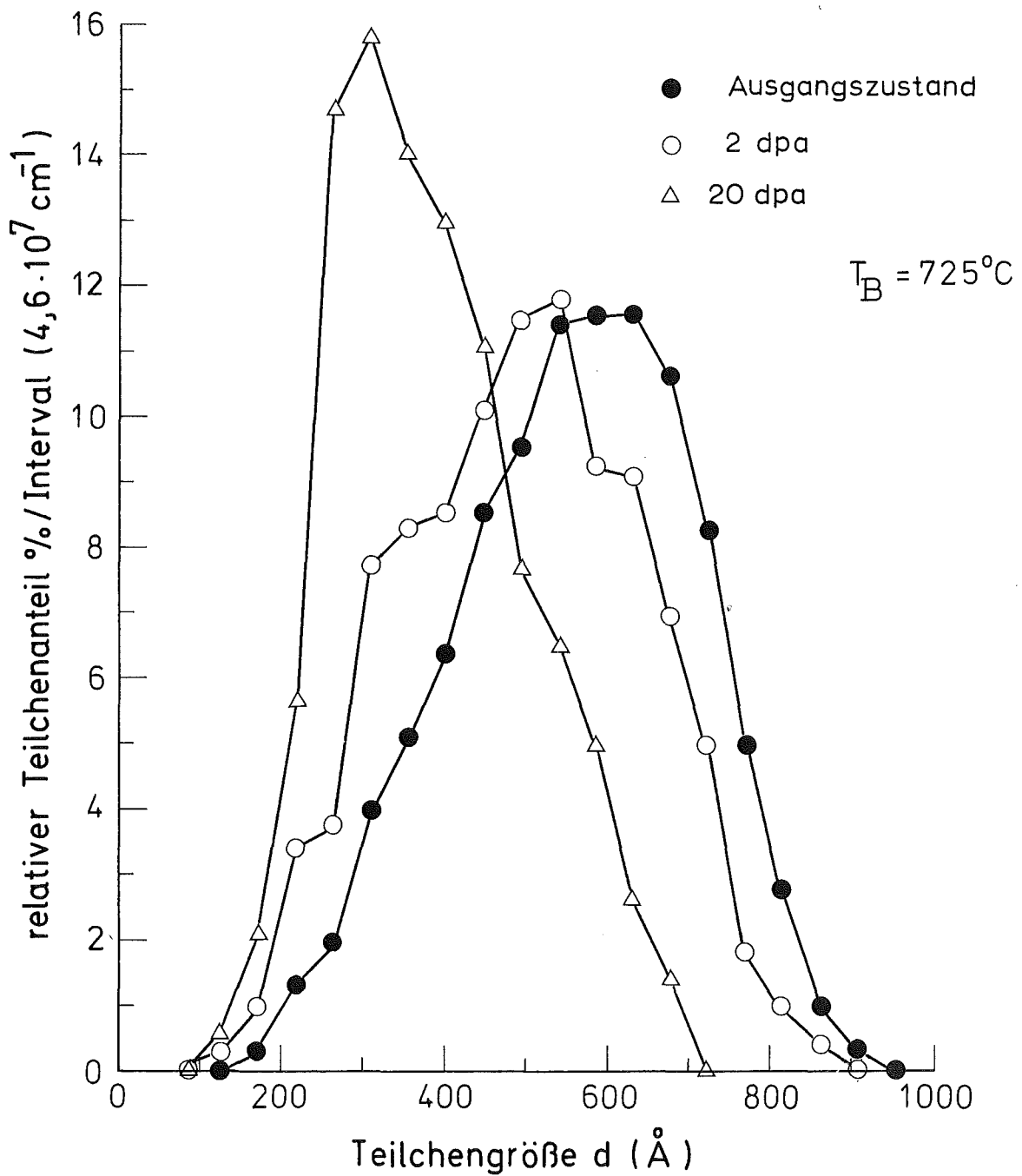


Abb. 21 :- Einfluß der Bestrahlung auf die Verteilung der γ' -Teilchen.
 Ni-Cr-Al-Legierung, vorausgelagert $700^\circ\text{C} - 864 \text{ h}$ und mit 250-keV-Ni^+
 bestrahlt, Temperatur = 725°C .

(nach 40 dpa waren keine Ausscheidungen mehr nachweisbar)

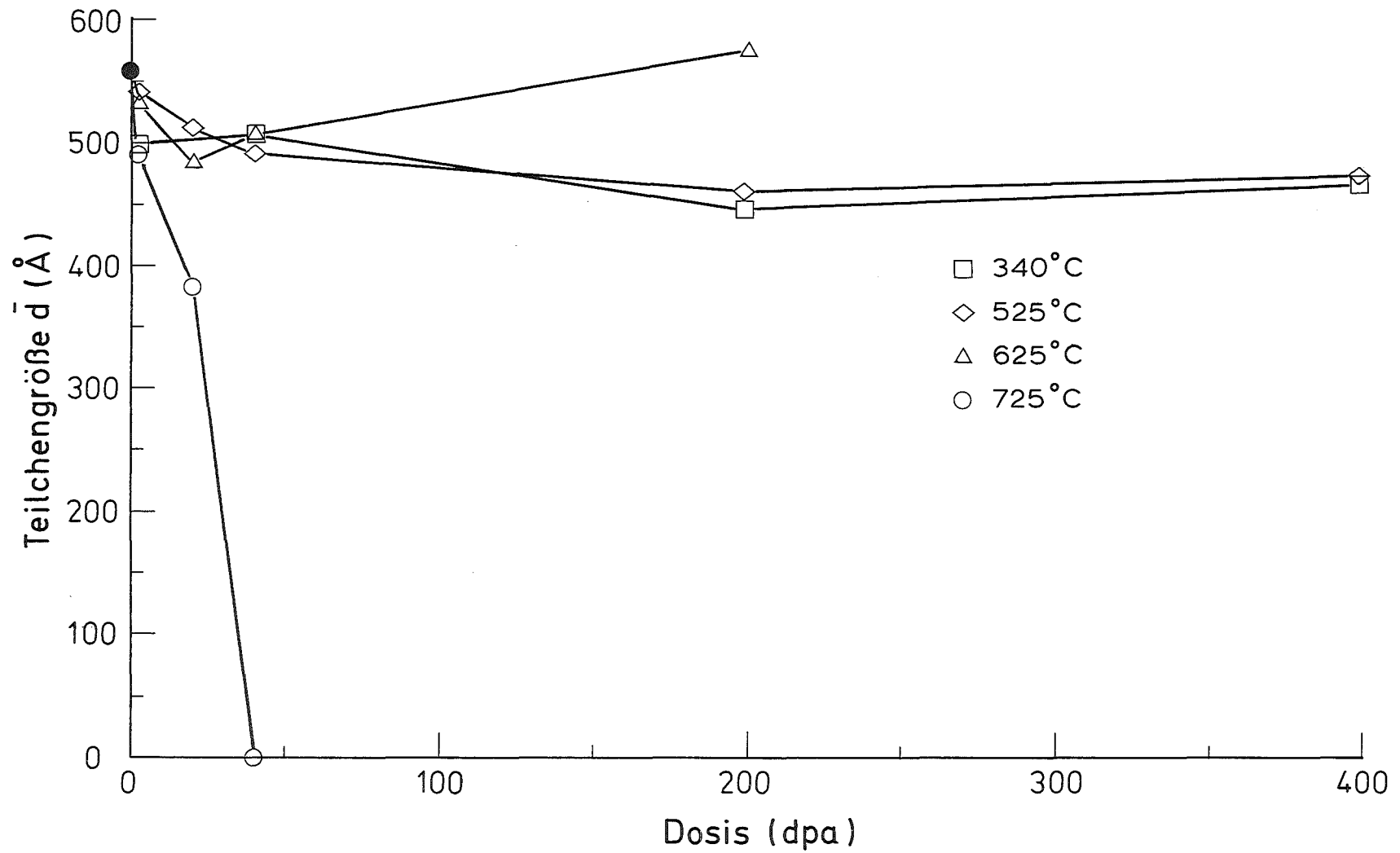


Abb. 22 :- Einfluß der Dosis auf die Größe der γ' -Teilchen unter 250-keV-Ni⁺-Bestrahlung Ni-Cr-Al-Legierung, vorausgelagert 700°C - 864 h und bestrahlt.

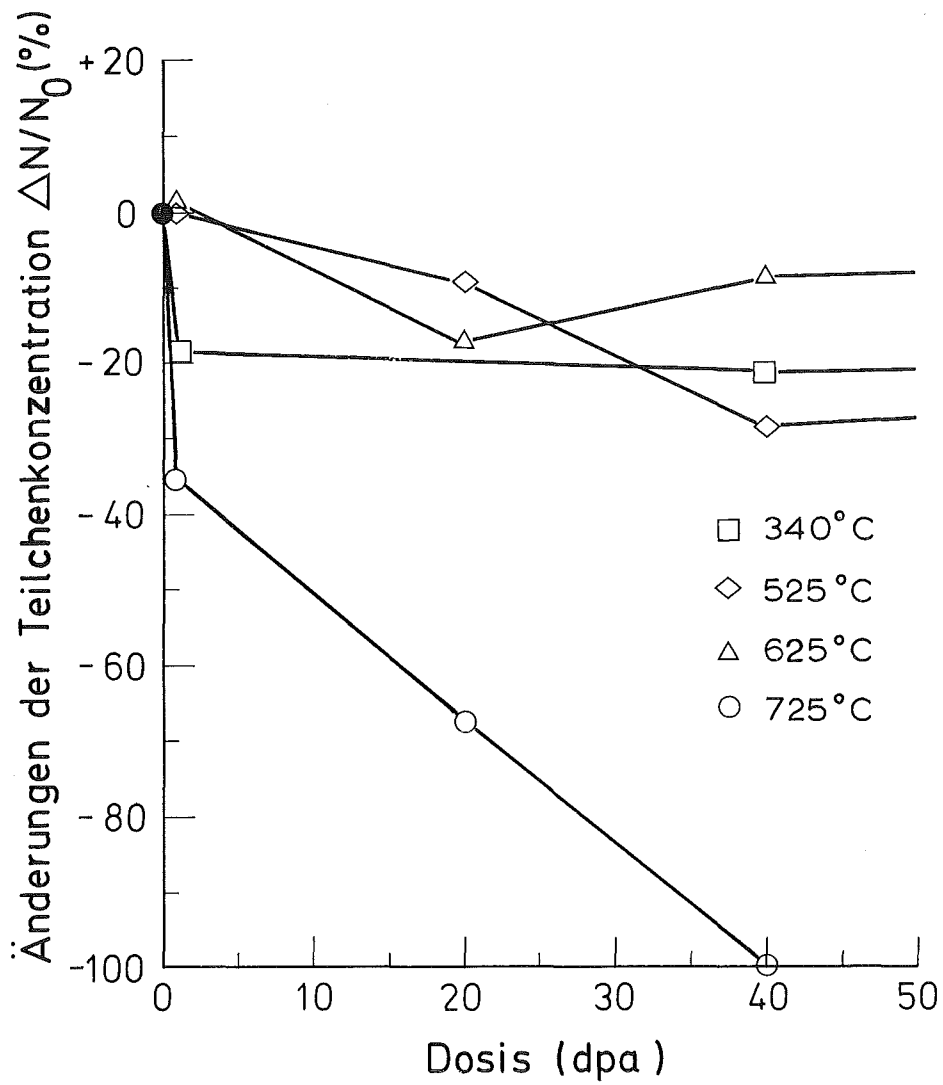


Abb. 23 :- Einfluß der 250-keV-Ni⁺-Beschluß auf die Konzentration der γ' -Ausscheidungen in Ni-Cr-Al-Legierung, vorausgelagert 700°C - 864 h und bestrahlt.

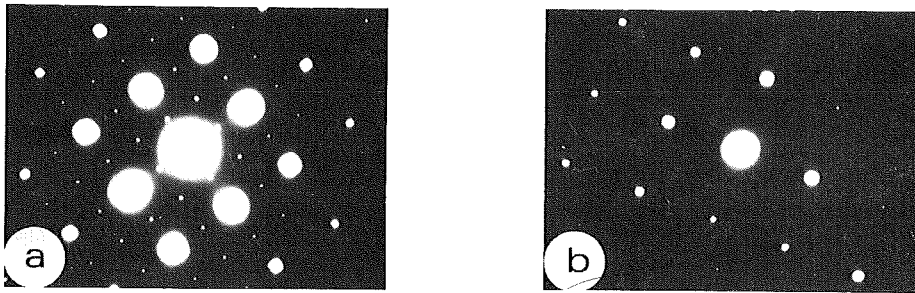
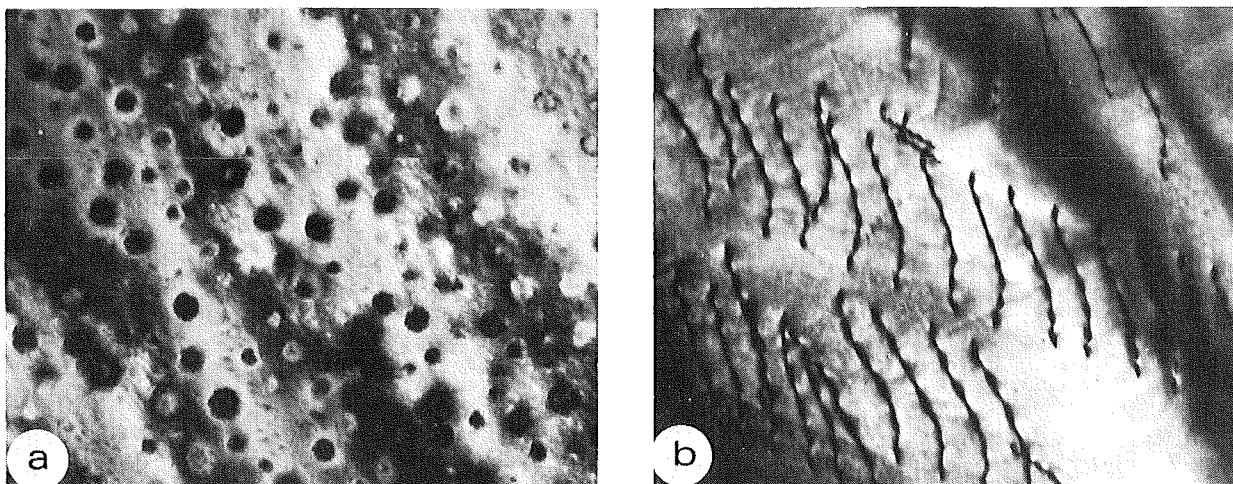


Abb. 24 :- Nachweis der Auflösung von γ' -Ausscheidungen durch die Elektronenbeugung, (100)-Orientierung, Ni-Cr-Al-Legierung, vorausgelagert 700°C -864 h und mit 250-keV-Ni^+ bestrahlt.

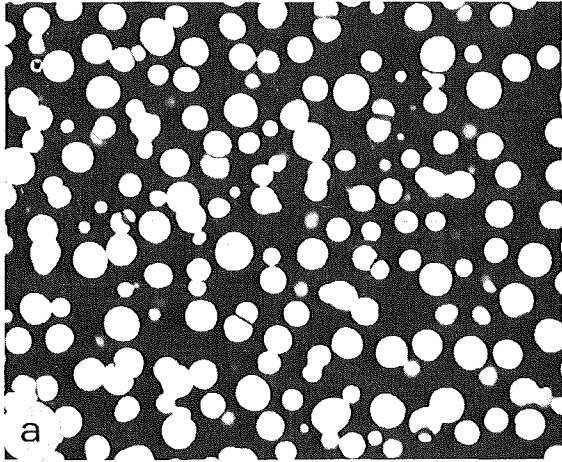
- a) vor der Bestrahlung b) bestrahlt, 40 dpa bei 725°C .



— 0,5 μm —

Abb. 25 :- Die Auflösung der γ' -Ausscheidung unter 250-keV-Ni^+ -Beschuß. Ni-Cr-Al-Legierung, vorausgelagert 700°C -864 h und zu 40 dpa bei 725°C bestrahlt.

- a) unbestrahlt - Die Sichtbarkeit der Ausscheidungen unter verschiedenen Bragg'schen Konturen im unbestrahlten Bereich (ca. 3 mm von b).
- b) bestrahlt - Im Vergleich zu a) sind in Konturen keine Ausscheidungen zu sehen. (Die Versetzungen sind durchs Stanzen der TEM-Probe entstanden).



|— 0,5 μm —|

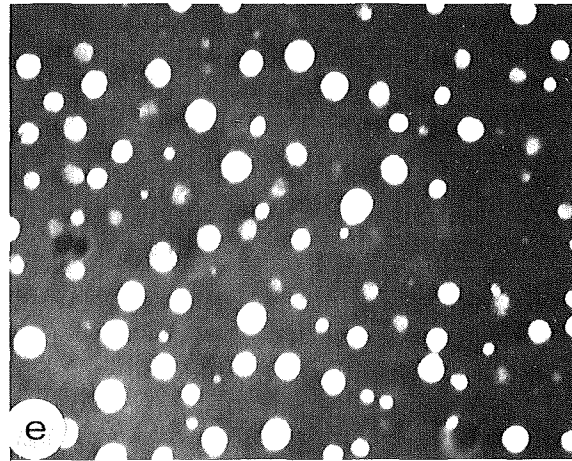
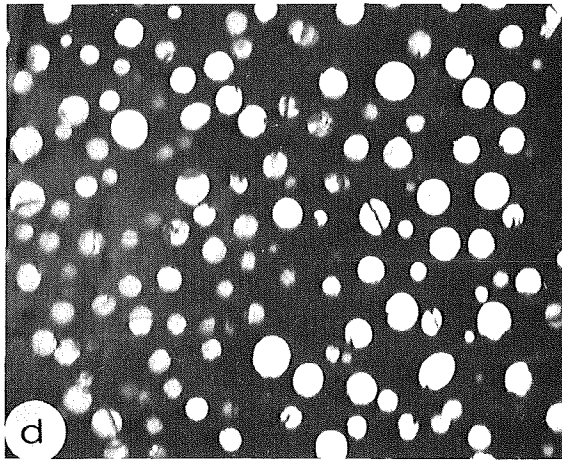
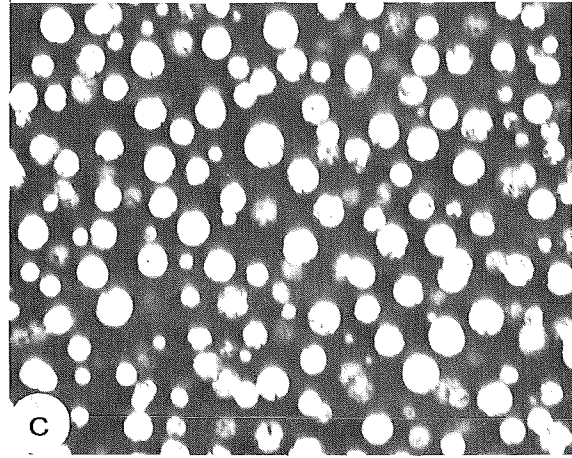
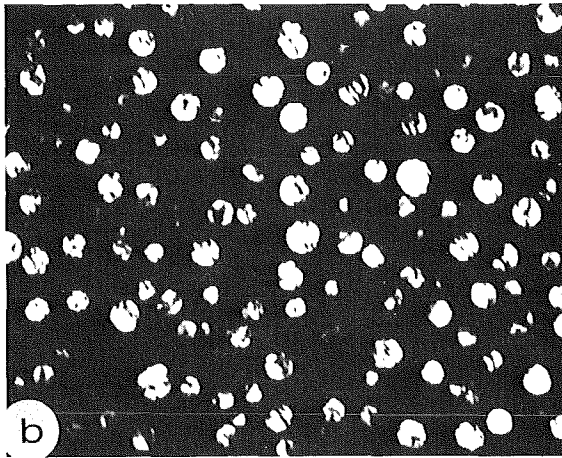


Abb. 26 :- Einfluß der Bestrahlungstemperatur auf die Stabilität der γ' -Ausscheidungen nach 250-keV- Ni^+ -Bestrahlung. Ni-Cr-Al-Legierung, vorausgelagert 700°C -864 h und zu 2 dpa bestrahlt.

a) vor der Bestrahlung

b) 340°C

c) 525°C

d) 625°C

e) 725°C

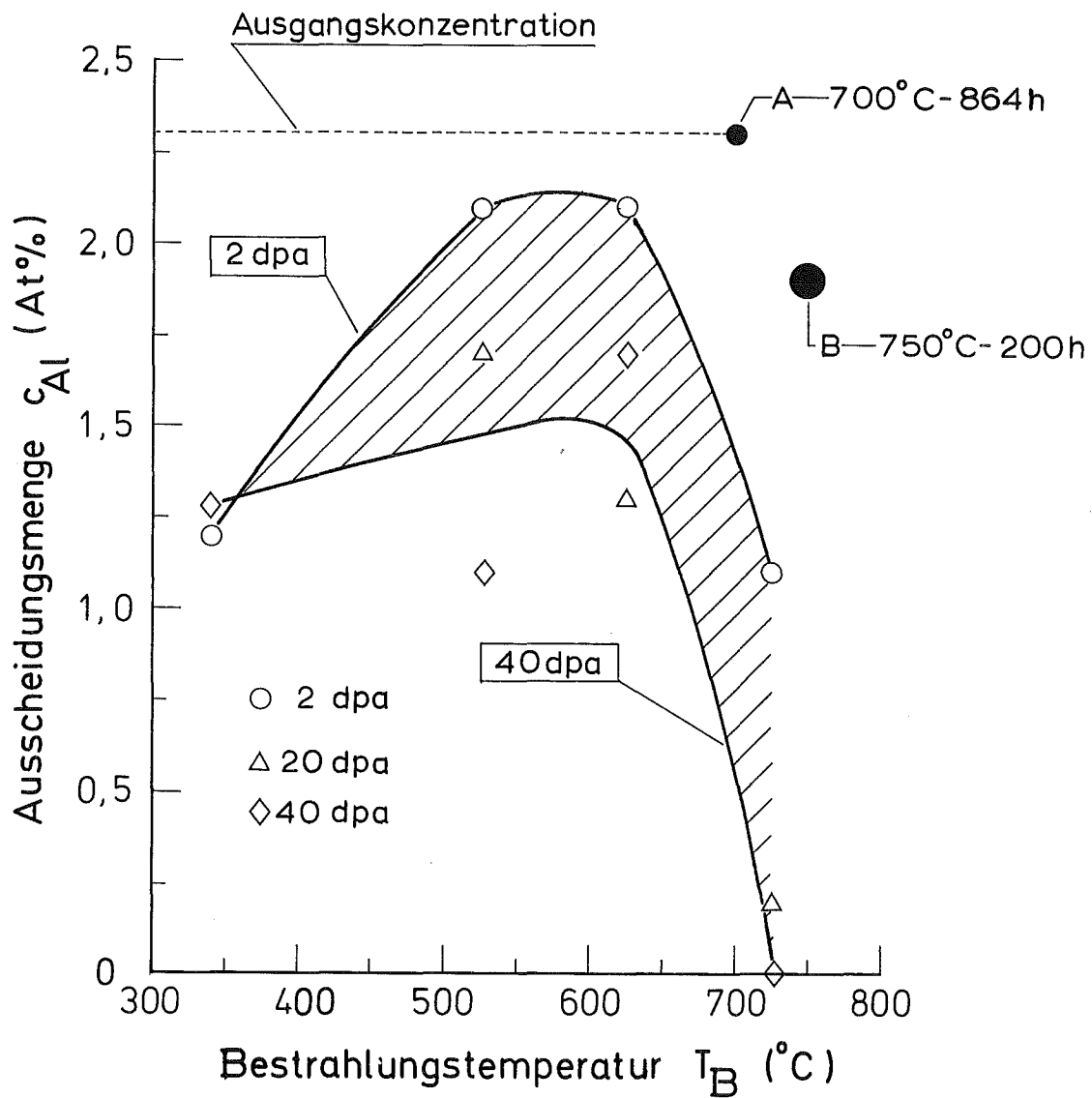
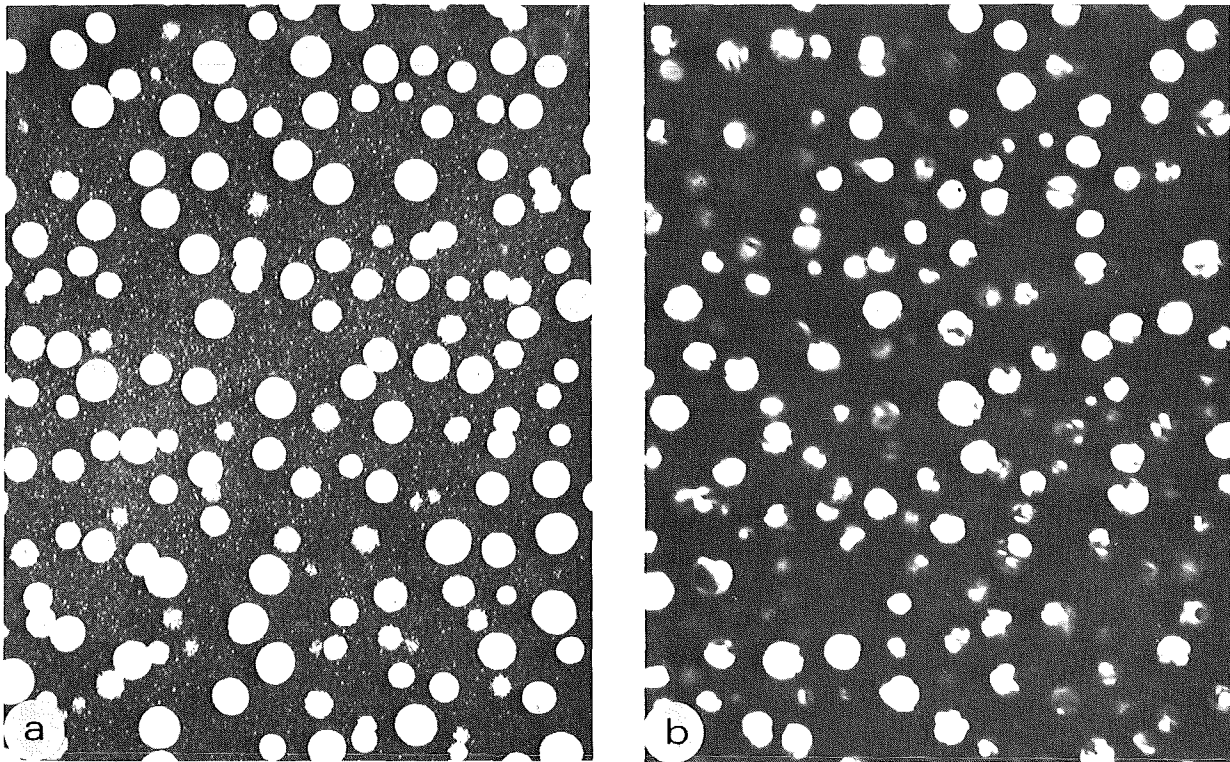


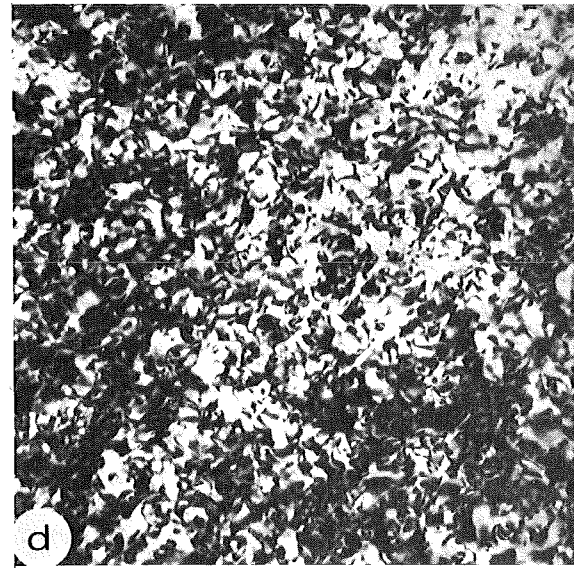
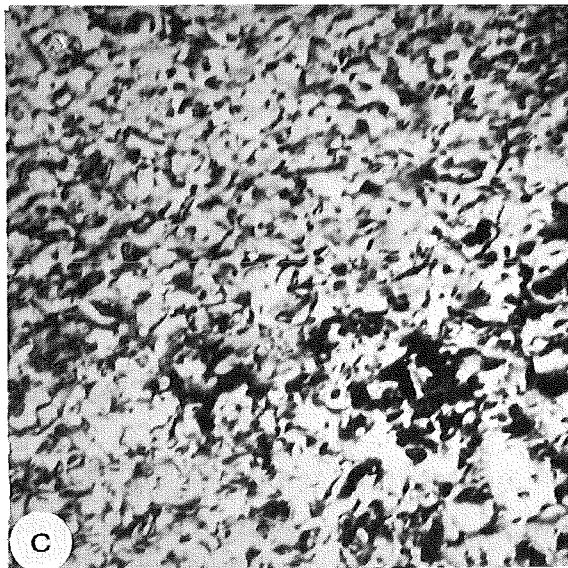
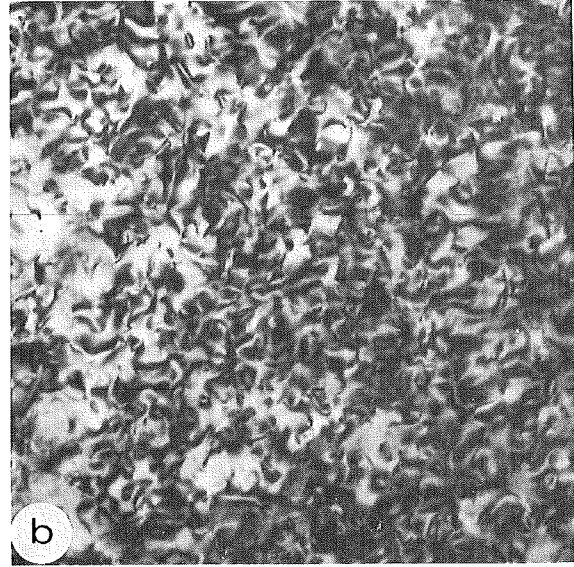
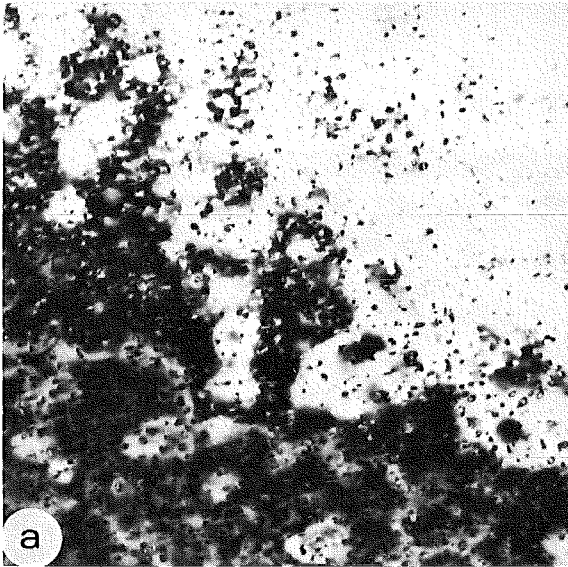
Abb. 27 :- Der anhand der Ausscheidungs­menge dargestellte Einfluß der Bestrahlungstemperatur auf die Teil­chenauf­lösung inner­halb des 2 - 40 dpa Dosisbereiches. Ni-Cr-Al-Legierung, vorausgelagert 700°C - 864 h und mit 250-keV-Ni⁺ bestrahlt. Die durch die Auslagerung bei 750°C - 200 h ausgeschiedene Ausscheidungs­menge ist auch ange­zeigt.



— 0,5 μm —

Abb. 28 :- Die Stabilität der großen γ' -Ausscheidungen unter 250-keV- Ni^+ -Beschluß. Ni-Cr-Al-Legierung, vorausgelagert 750°C -200 h und zu 40 dpa bei 600°C bestrahlt.

- a) unbestrahlt - Die großen Teilchen sind durch die vorgegebene Wärmebehandlung ausgeschieden und die feine Dispersion ist während der Bestrahlung aufgetreten (s. Kap. 4.4 für die Bestrahlungsprozedur). Die kleinen Teilchen haben sich bis zu den großen gebildet, ohne daß eine Verarmung dadurch entstanden ist.
- b) bestrahlt - bevorzugte Auflösung der kleinen Teilchen. Die Stelle a) liegt ca. 3mm von der Stelle b) entfernt.



— 0,5 μm —

Abb. 29 :- Die Dosisabhängigkeit der Strahlenschädigung in Ni-Cr-Al-Legierung bei der Bestrahlungstemperatur von 525°C , vorausgelagert 700°C -864 h und mit 250-keV-Ni^{+} bestrahlt.

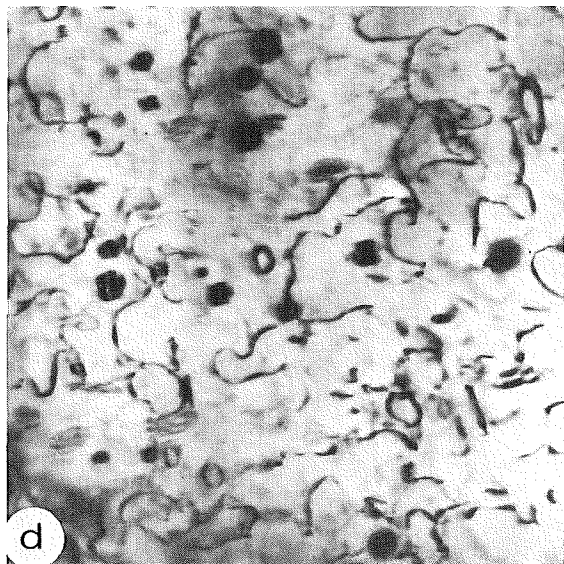
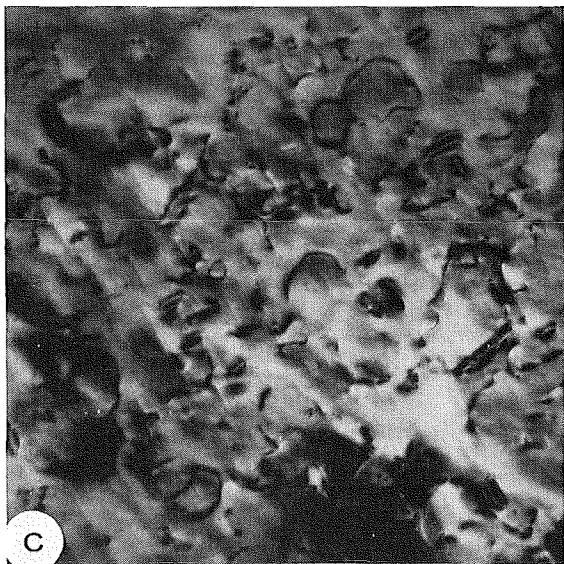
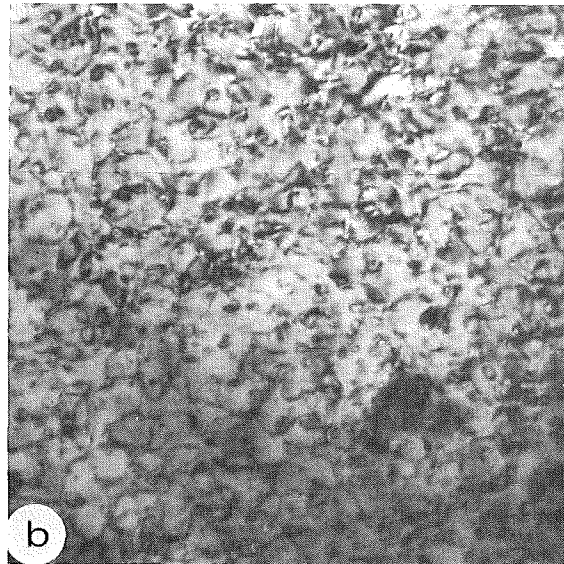
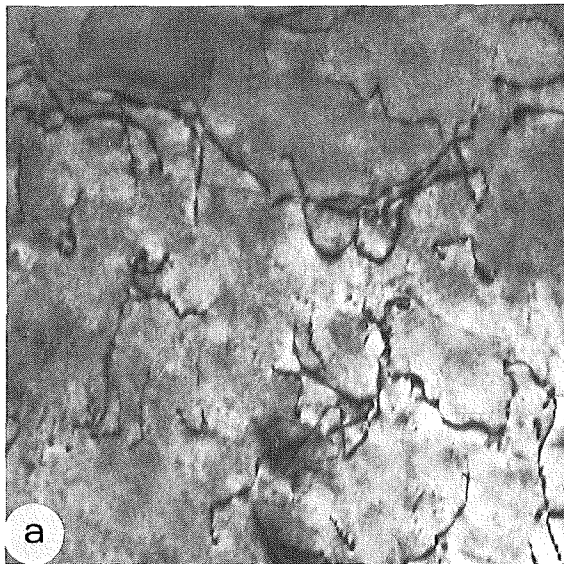
a) 2 dpa

b) 20 dpa

c) 40 dpa

d) 199 dpa

In a) und b) ist die Loopbildung und die dadurch resultierende Verspannung erkennbar.



— 0,5 μm —

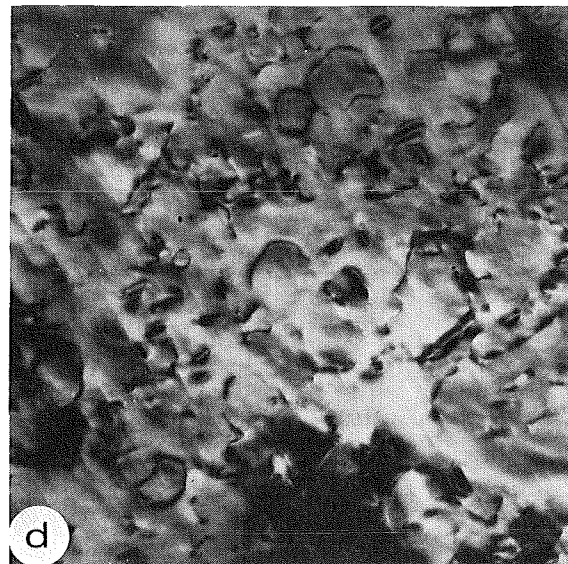
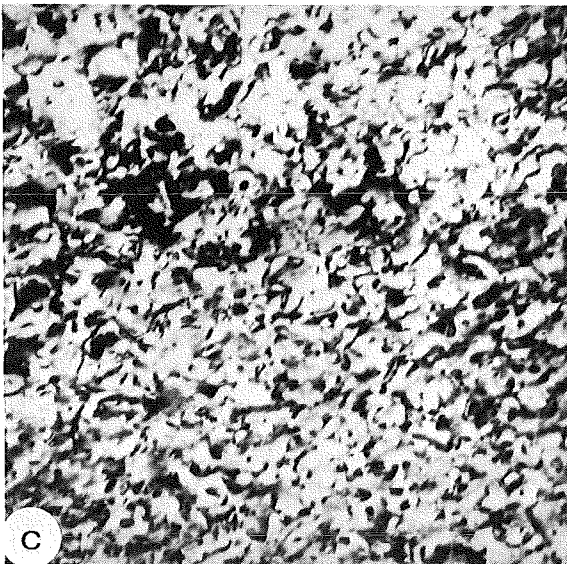
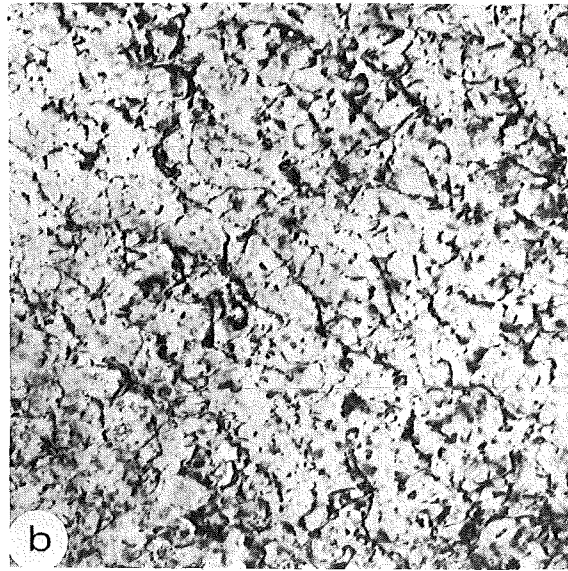
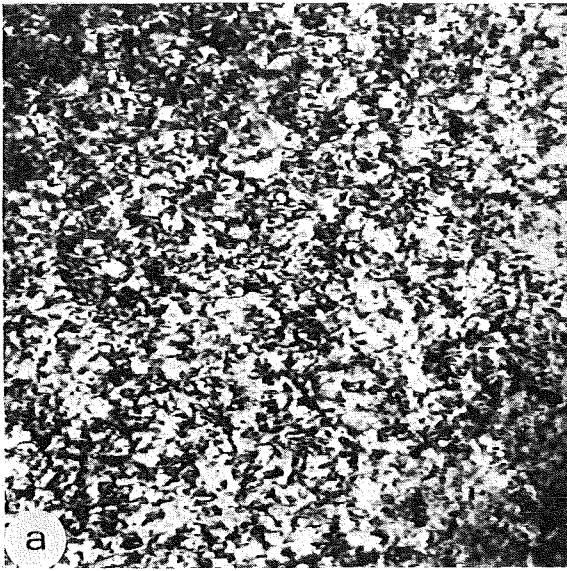
Abb. 30 :- Einfluß der Dosis auf die Versetzungsstruktur in Ni-Cr-Al-Legierung, vorausgelagert 700°C -864 h und mit 250-keV-Ni^{+} bestrahlt, Temperatur = 625°C .

a) 2 dpa

b) 20 dpa

c) 40 dpa

d) 199 dpa



— 0,5 μm —

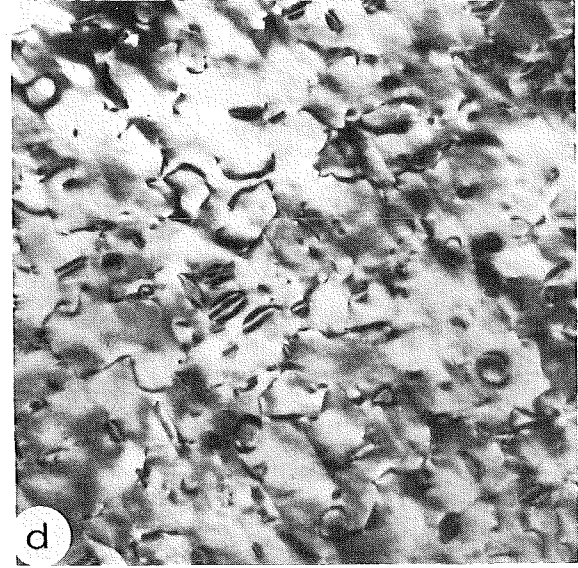
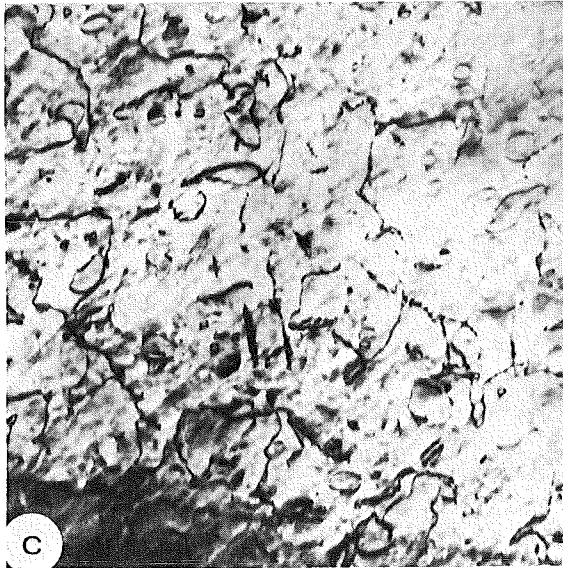
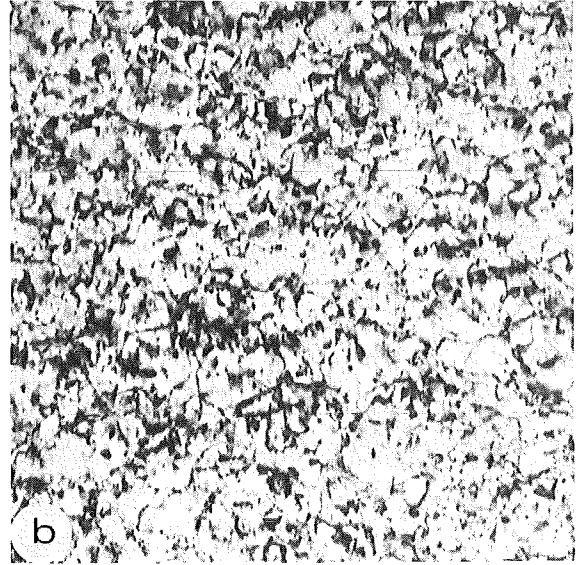
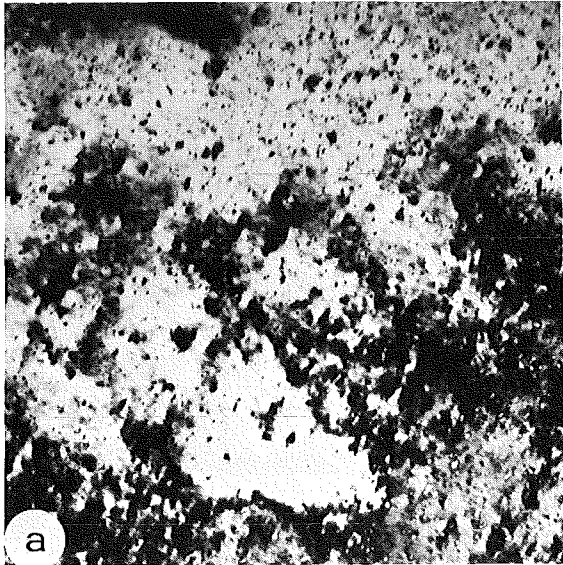
Abb. 31 :- Einfluß der Bestrahlungstemperatur auf die strahlungsinduzierte Versetzungsstruktur in Ni-Cr-Al-Legierung, vorausgelagert 700°C -864 h und mit 250-keV-Ni^+ bestrahlt, Dosis = 40 dpa.

a) 50°C

b) 340°C

c) 525°C

d) 625°C



— 0,5 μm —

Abb. 32 :- Einfluß des Materialzustandes und der Bestrahlungstemperatur auf die Strahlenschädigung in Ni-Cr-Al-Legierung nach 250-keV-Ni⁺-Bestrahlung, Dosis = 40 dpa.

a) und c) lösungsgeglüht (1300^oC-1 h/-5^oC) und bestrahlt

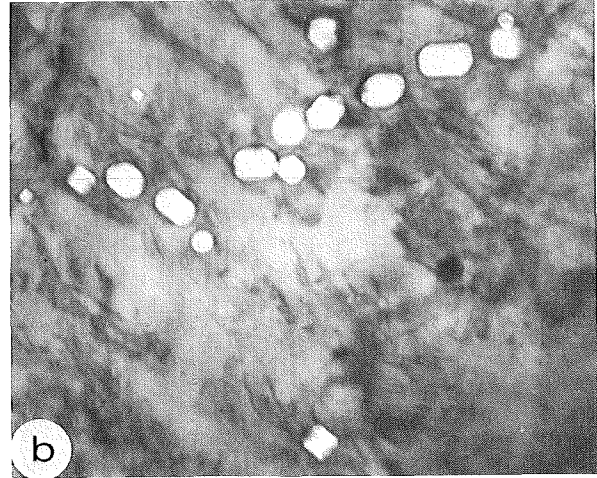
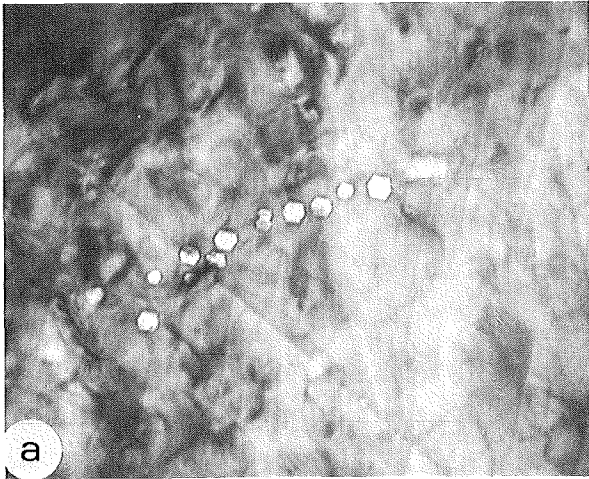
a) 50^oC

c) 625^oC

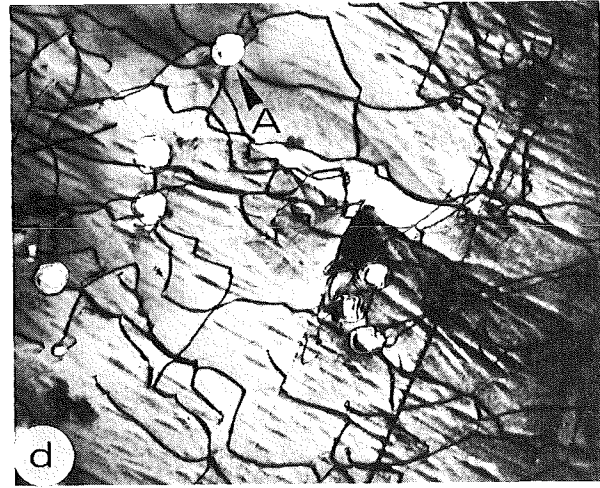
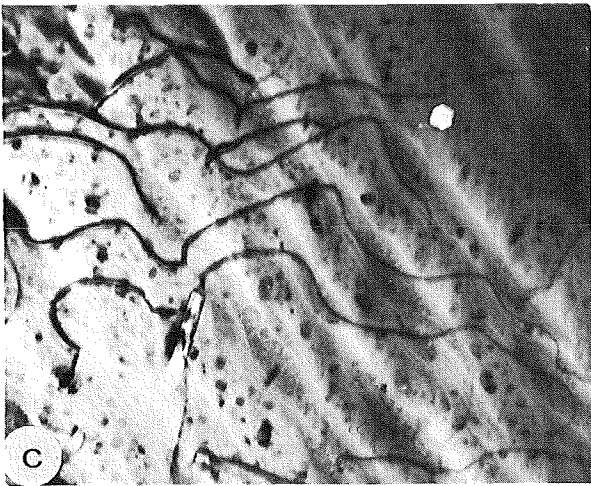
b) und d) ausgelagert (700^oC-864 h) und bestrahlt

b) 50^oC

d) 625^oC



— 0,5 μm —



— 1 μm —

Abb. 33 :- Die Porenbildung in Ni-Cr-Al-Legierung unter 250-keV-Ni⁺-Beschluß, vorausgelagert 700^oC-864 h und bestrahlt.

a) 199 dpa, 625^oC

b) 398 dpa, 625^oC

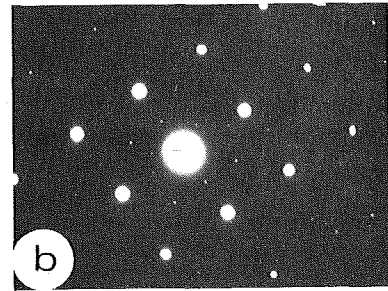
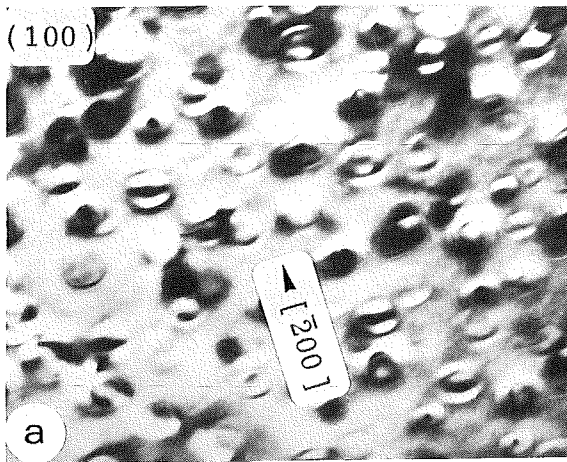
c) 199 dpa, 725^oC

d) 398 dpa, 725^oC

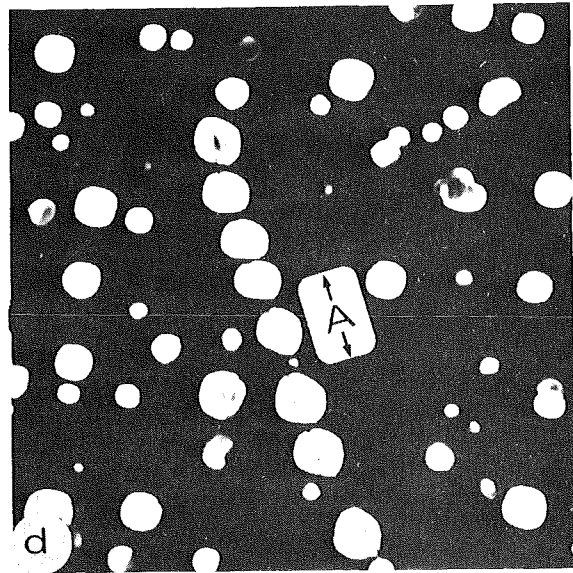
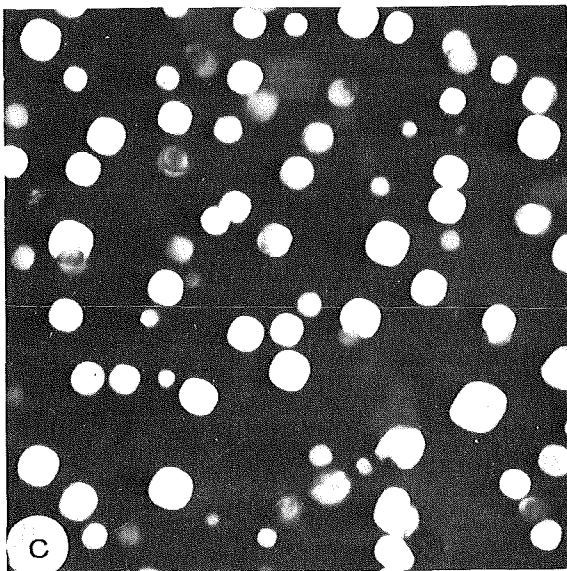
In a) γ' -Ausscheidungen vorhanden.

b) zusätzlich zu den γ' -Ausscheidungen scheidet sich eine neue Phase (oder Phasen) aus.

c) und d) nach Auflösung der γ' -Ausscheidungen bildet sich andere Phase (n), die in den Bildern im Hintergrund erscheint.



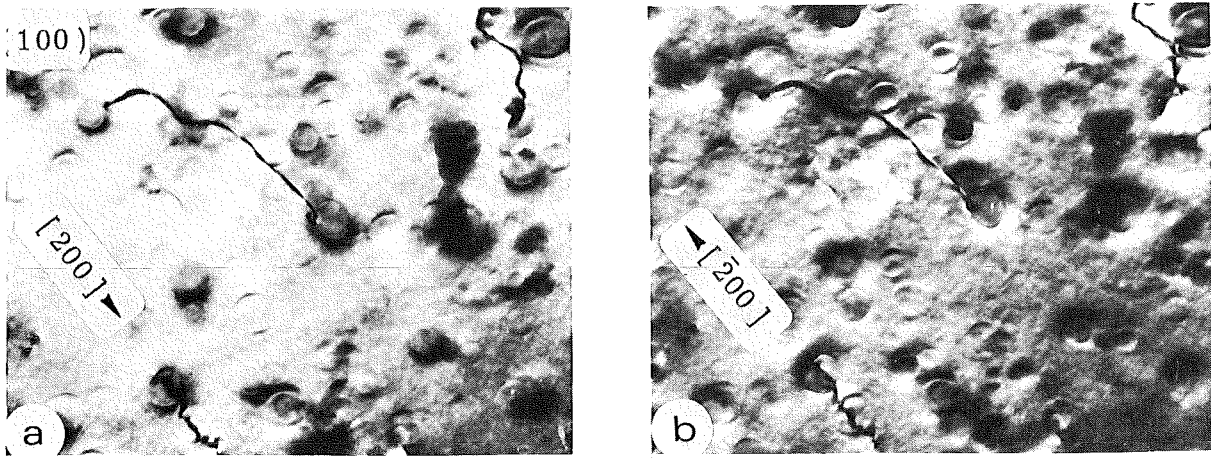
(100)_M



— 0,5 μm —

Abb. 34 :- Die γ' -Ausscheidungen in Ni-Si-Legierung vor der Bestrahlung, ausgelagert bei 775°C -0,5 h.

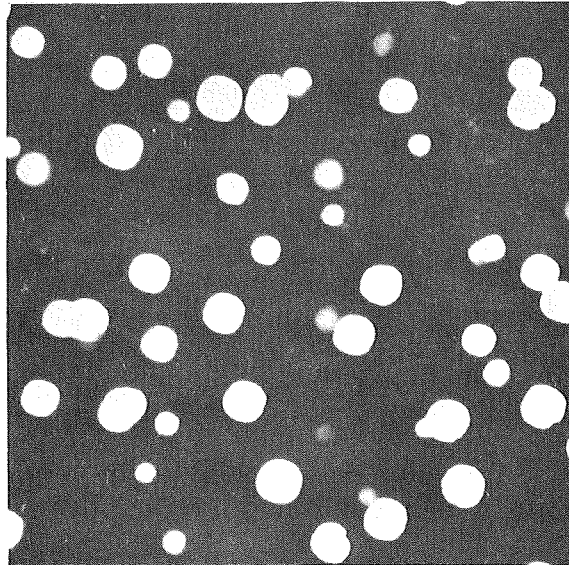
- a) Die Spannungsfelder um die Ausscheidungen (Dunkelfeld-Matrix)
- b) Orientierungsbeziehung der Ausscheidungen in der Elektronenbeugung
- c) und d) Morphologie der verspannten γ' -Ausscheidungen in der Dunkelfeld-Abbildung. Die mit A-markierte Stelle in d) ist eine Versetzung, die einen dunklen Schatten auf die Ausscheidungen wirft, die sich an der Versetzung gebildet haben. Solche Ausscheidungen sind größer als die, die sich in der defektfreien Matrix gebildet haben.



— 0,5 μm —

Abb. 35 :- Verlust der Spannungsfelder der γ' -Ausscheidungen in Ni-Si-Legierung unter Beschuß von 250-keV- Ni^+ , vorausgelagert 775°C -0,5 h und bei 725°C zu 2 dpa bestrahlt. Die Versetzung-Ausscheidung-Wechselwirkung ist sichtbar.

a) und b) Hellfeld-Dunkelfeld (Matrix)-Paar.



— 0,5 μm —

Abb. 36 :- Stabilität der großen γ' -Ausscheidungen in Ni-Si-Legierung unter Bestrahlung, vorausgelagert 775°C -0,5 h und mit 250-keV- Ni^+ bestrahlt, Dosis = 2 dpa, Temperatur = 725°C .

(Die im Hintergrund feinverteilten Ausscheidungen haben sich während der Abkühlung nach der Bestrahlung gebildet, dabei ist keine Verarmung an Ausscheidungen um die großen Teilchen entstanden).

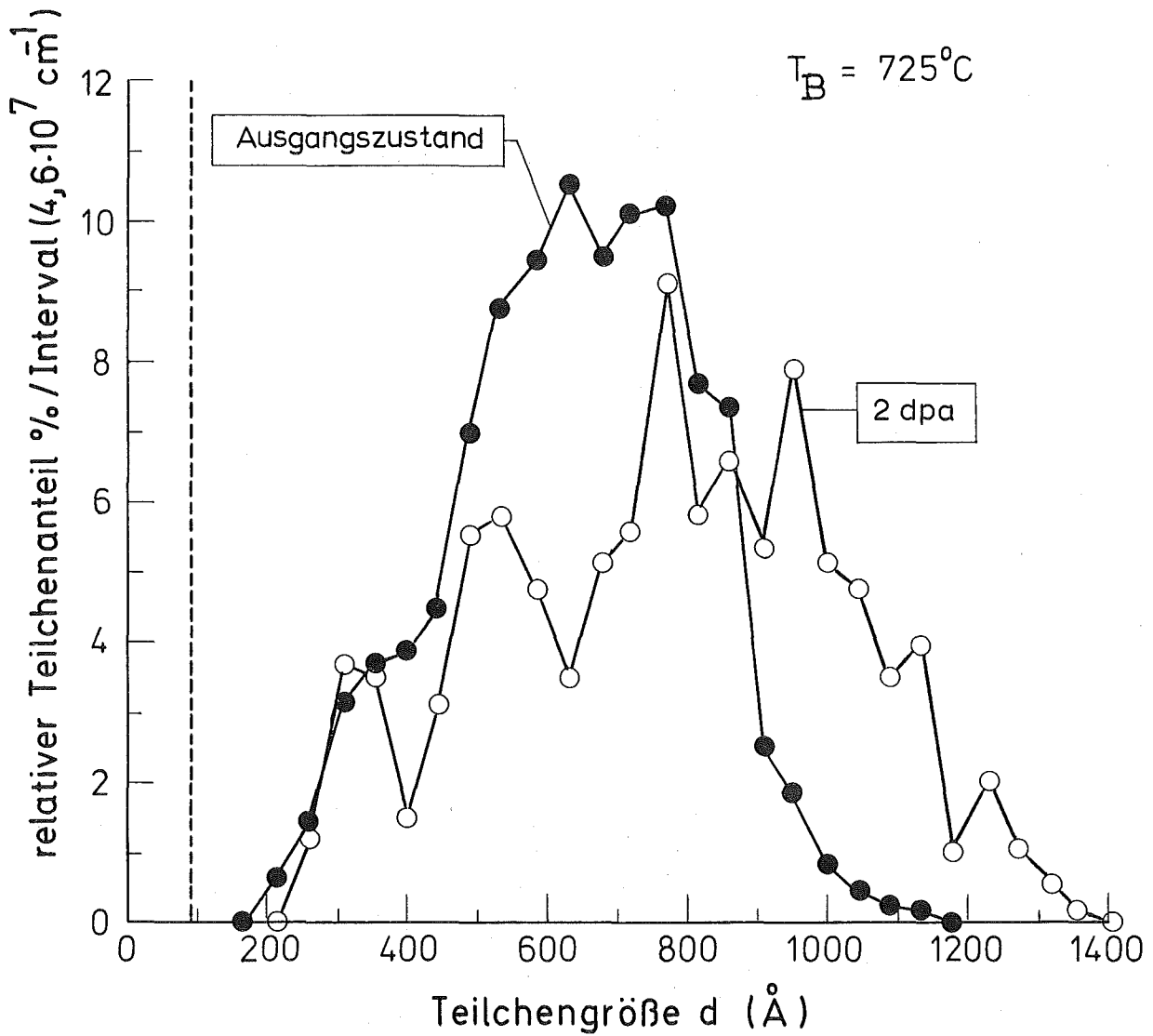
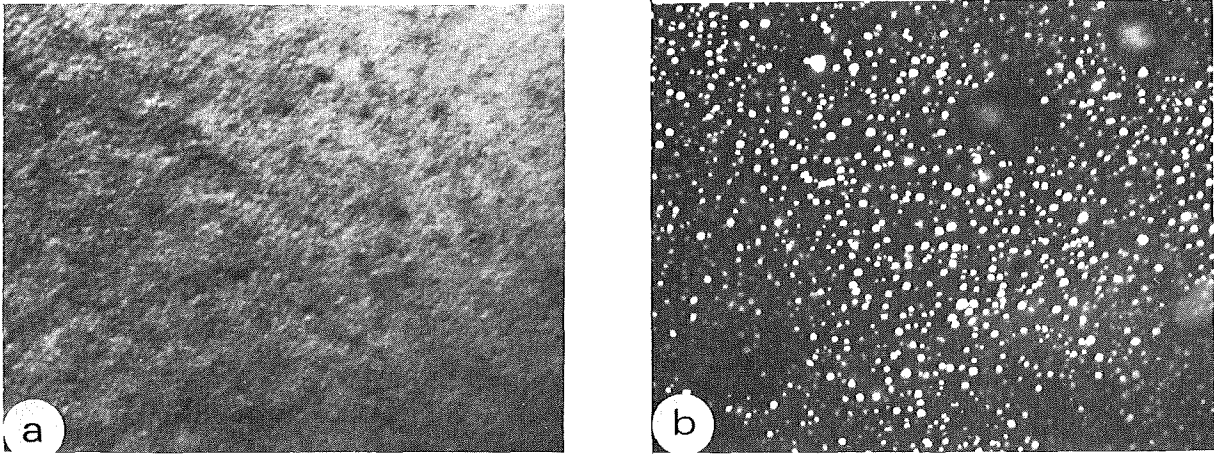


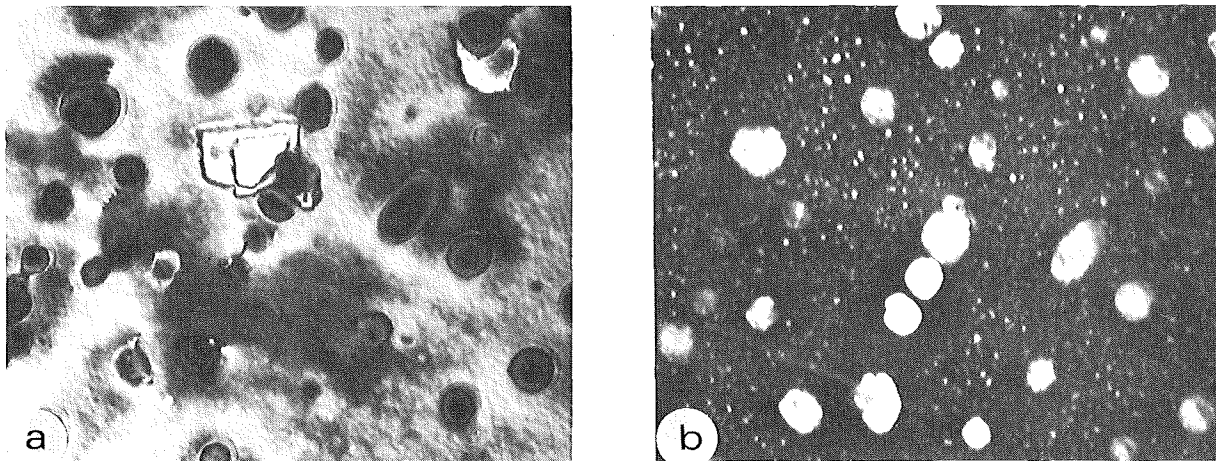
Abb. 37 :- Einfluß der 250-keV-Ni⁺ auf die Verteilung der γ' -Teilchen. Ni-Si-Legierung, vorausgelagert 775^oC - 0,5 h und bei 725^oC bestrahlt. (nach 38 dpa waren keine ursprünglichen Teilchen mehr vorhanden; mit der gestrichelten Linie sind die während der Abkühlung erneut gebildeten Ausscheidungen in diesen Proben angedeutet)



— 0,5 μm —

Abb. 38 :- Erneute Bildung der γ' -Ausscheidungen, Ni-Si-Legierung, vorausgelagert 775°C -0,5 h und mit 250-keV- Ni^+ bestrahlt, Dosis = 38 dpa, Temperatur = 725°C .

- a) Ausscheidungen in der Hellfeld-Abbildung
- b) Ausscheidungen in der Dunkelfeld-Abbildung

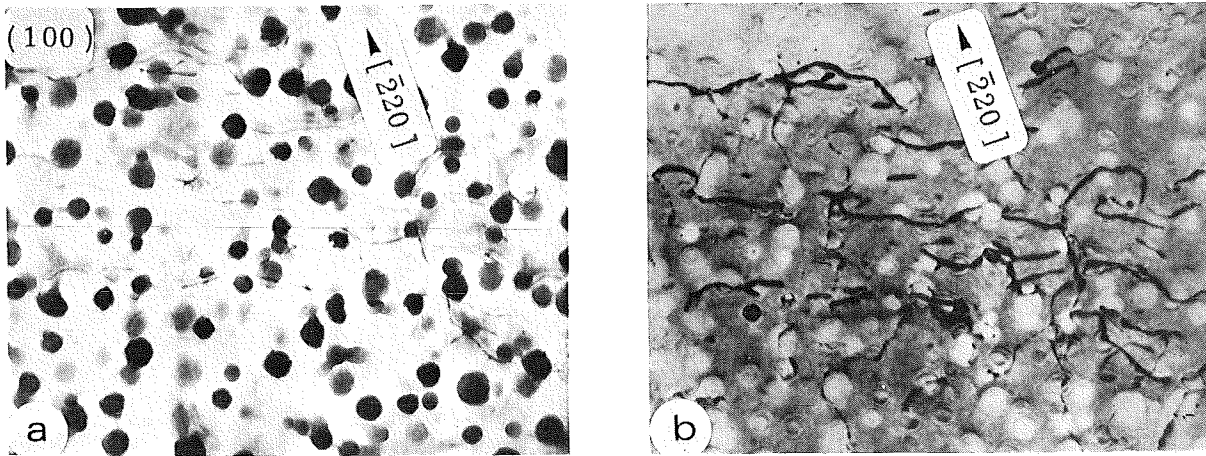


— 0,5 μm —

Abb. 39 :- Bildung der kleinen γ' -Ausscheidungen in Ni-Si-Legierung, vorausgelagert 775°C -0,5 h und mit 250-keV- Ni^+ bestrahlt, Dosis = 38 dpa, Temperatur = 725°C (Probendicke $>1800 \text{ \AA}$).

- a) und b) Hellfeld-Dunkelfeld-Paar.

(Die kleinen Ausscheidungen sind während der Abkühlung nach der Bestrahlung gebildet und erstrecken sich bis zu den Großen).



— 1 μm —

Abb. 40 :- Nachweis der Ausscheidung-Versetzung-Wechselwirkung, Ni-Si-Legierung, vorausgelagert 775°C -0,5 h und mit 250-keV-Ni^{+} bestrahlt. Dosis = 19 dpa, Temperatur = 725°C .

a) und b) Hellfeld-Dunkelfeld (Matrix)-Paar
 [in b) Negativ-Treu-Kontrast]

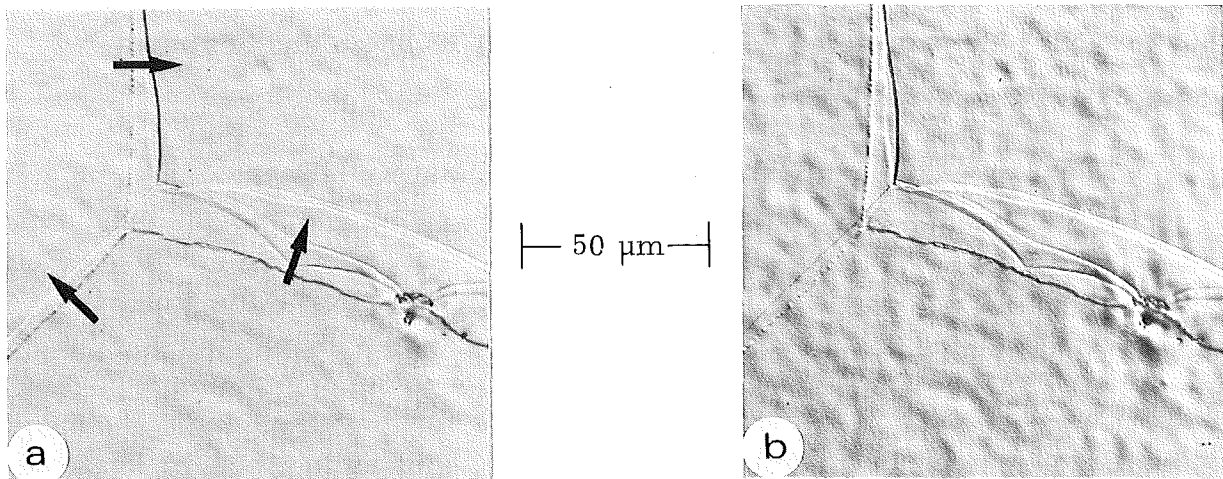
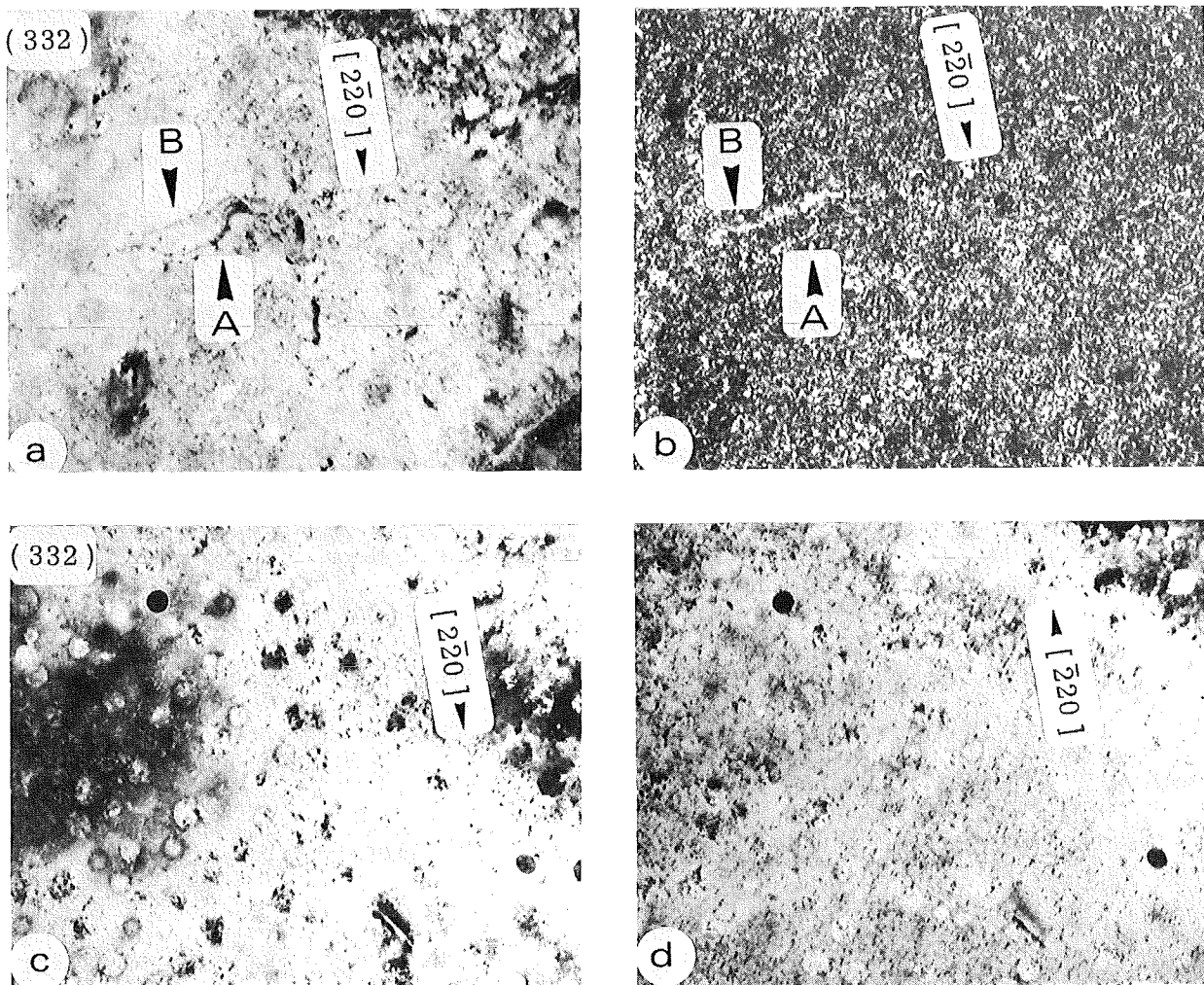


Abb. 41 :- Die strahlungsinduzierte Korngrenzen-Bewegung, Ni-Si-Legierung, vorausgelagert 775°C -0,5 h und mit 250-keV-Ni^{+} bestrahlt. Dosis = 38 dpa, Temperatur = 725°C .

a) normale Auflicht-Aufnahme b) die gleiche Stelle mit verbessertem Kontrast in Interferenz-Aufnahme



— 0,5 μm —

Abb. 42 :- Die Strahlenschädigung in Ni-Cr-Al-Legierung nach der 250-keV-Ni⁺-Bestrahlung, vorausgelagert 700°C-864 h und bestrahlt. Dosis = 0,02 dpa, Temperatur = 340°C.

- a) und b) Hellfeld-Dunkelfeld (Matrix)-Paar
- c) und d) Hellfeld-Dunkelfeld (Matrix)-Paar

Die Stelle A in Abb. a), die nahe zu der oberen Seite der Folie (nicht- bestrahlte Seite) liegt, zeigt stärkeren Kontrast als die Stelle B, die nahe zu der unteren Seite der Folie (bestrahlte Seite) liegt. Trotz dieses Unterschieds in ihrer Lage in der Folie, gibt es in Abb. b) keine sichtbaren Veränderungen in ihrer Helligkeit (weil sie mit "black dots" verziert sind). Anhand der Lage von der Stelle A und B läßt sich an- deuten, daß die "black dots" (Umkehr des Kontrasts in Abb. b) über die ganze Folie verteilt sind. Die schwarzen Löcher in Abb. b sind die Ausscheidungen, die unter diesen Kontrastbedingungen nicht abgebildet werden können. Abb. c und d zeigen sowohl die Ausscheidungen als auch die "black dots" von einer Nebenstelle wie a und b ohne Umkehr des Kontrasts.

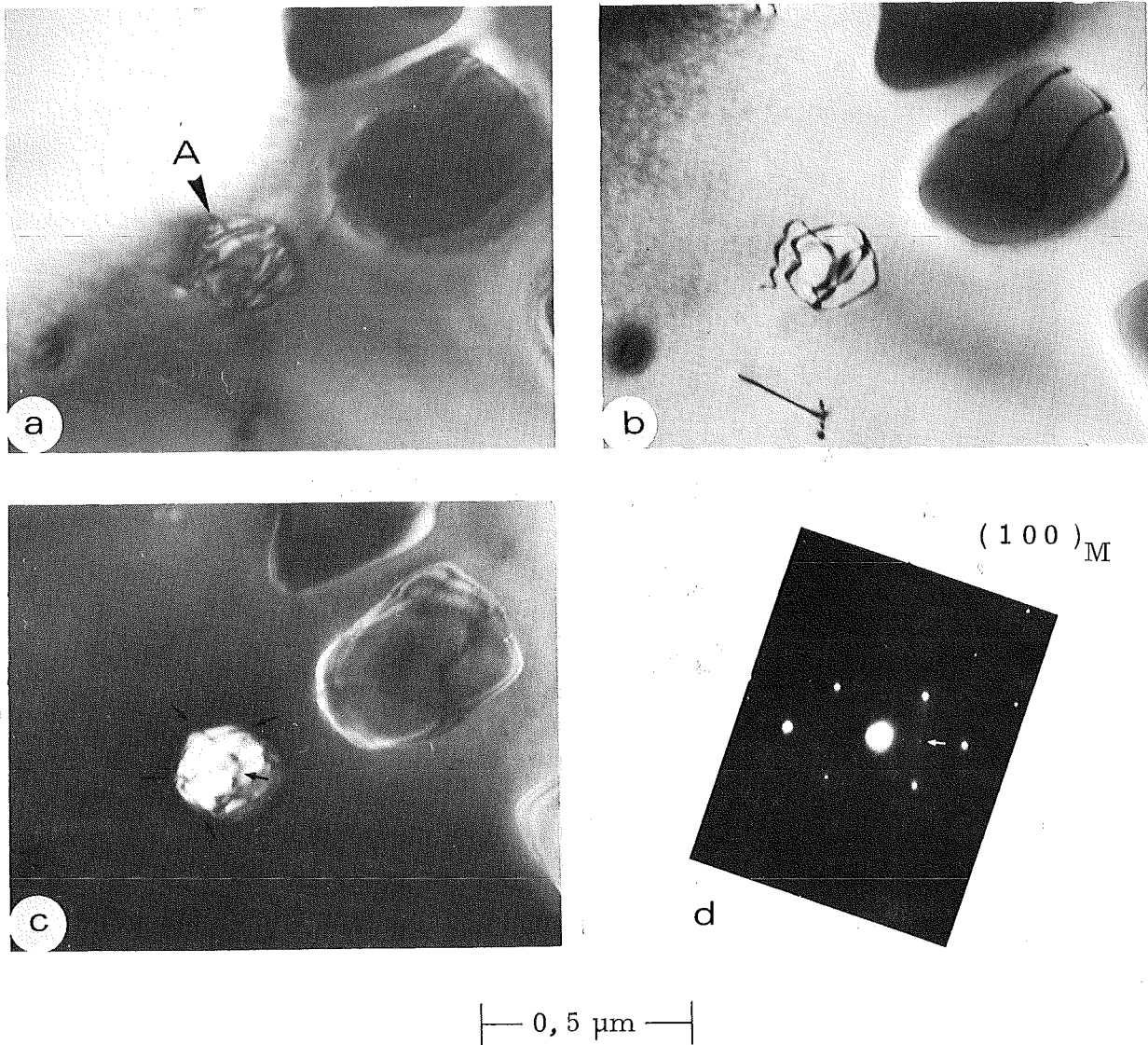


Abb. 43 :- Einfluß der Grenzflächenversetzungen auf die Dunkelfeld-Abbildung der Ausscheidung. Ni-Si-Legierung, ausgelagert bei 775°C -200 h.

a) und c) Hellfeld-Dunkelfeld-Paar, aufgenommen unter gleicher Kontrastbedingung, jedoch mit Maximal-Intensität in Dunkelfeld-Abbildung der Ausscheidung. Die Ausscheidung A erscheint genau an den Stellen "fragmentiert", an denen die Versetzungen in der Hellfeld-Abbildung zu erkennen sind.

b) Hellfeld-Matrix. Die Stelle a wurde um $1/2^{\circ}$ aus dem eigentlichen Dunkelfeld-Ausscheidungskontrast gekippt, um die Grenzflächenversetzungen im Kontrast zu bringen. Unter dieser Kontrastbedingung verlor die Ausscheidung ihre Intensität im Dunkelfeld, dabei veränderte sich der Kontrast in a.

d) Beugungsbedingung - gehört eher zu b -. Der Pfeil zeigt den in c verwendeten Überstrukturreflex, sowie die Strahlkipprichtung (s. Abb. 4).

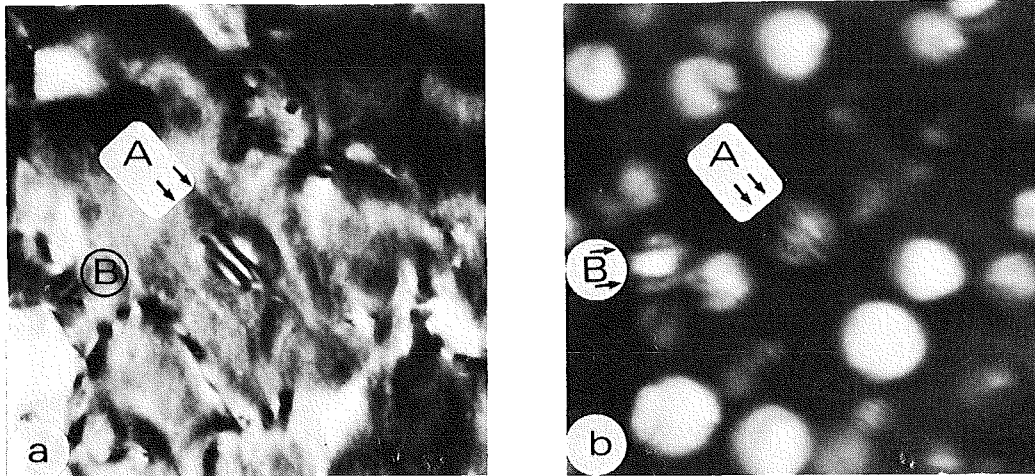


Abb. 44 :- Die wegen der Grenzflächenversetzungen entstandene fragmentierungsähnliche Abbildung der γ' -Ausscheidungen. Ni-Cr-Al-Legierung, vorausgelagert 700°C -864 h und mit 250-keV-Ni^+ bestrahlt. Dosis = 199 dpa, Temperatur = 625°C .

a) und b) Hellfeld-Dunkelfeld-Paar

Die mit A markierte Stelle zeigt ein Loop in Abb. a und genau an gleicher Stelle in Abb. b erscheint die Ausscheidung fragmentiert. Das Loop an Stelle B ist außer Kontrast, trotzdem erscheint die Ausscheidung fragmentiert und am "loop-freien" Bereich heller.

(Die Kontrastbedingungen wurden so eingestellt, daß das Loop im Hellfeld sichtbar war. Ansonsten sind entweder die Defekte in der Matrix oder die Ausscheidungen im Dunkelfeld im Kontrast zu erreichen. Der Verlust an Helligkeit durch die Versetzungen wird aus dem Vergleich zwischen der Stelle A und B deutlicher).

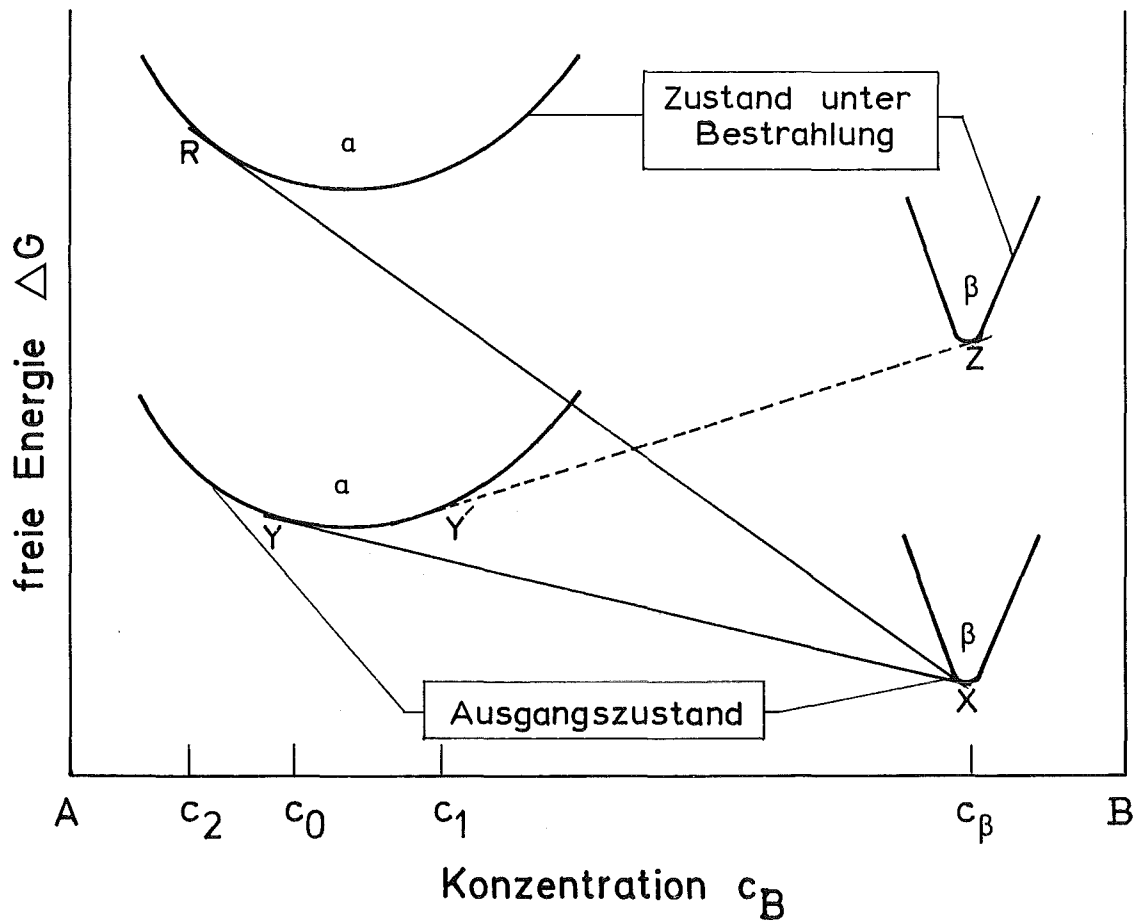


Abb. 45 :- Schematische Darstellung der Stabilität von Ausscheidungen einer geordneten β -Phase sowie der Stabilität der α -Matrix unter Bestrahlung (s. Kap. 6.2.2).

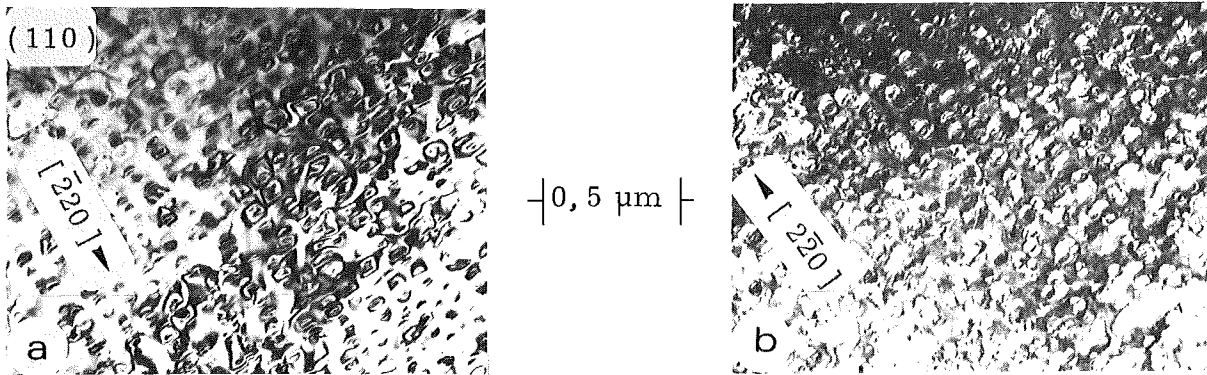
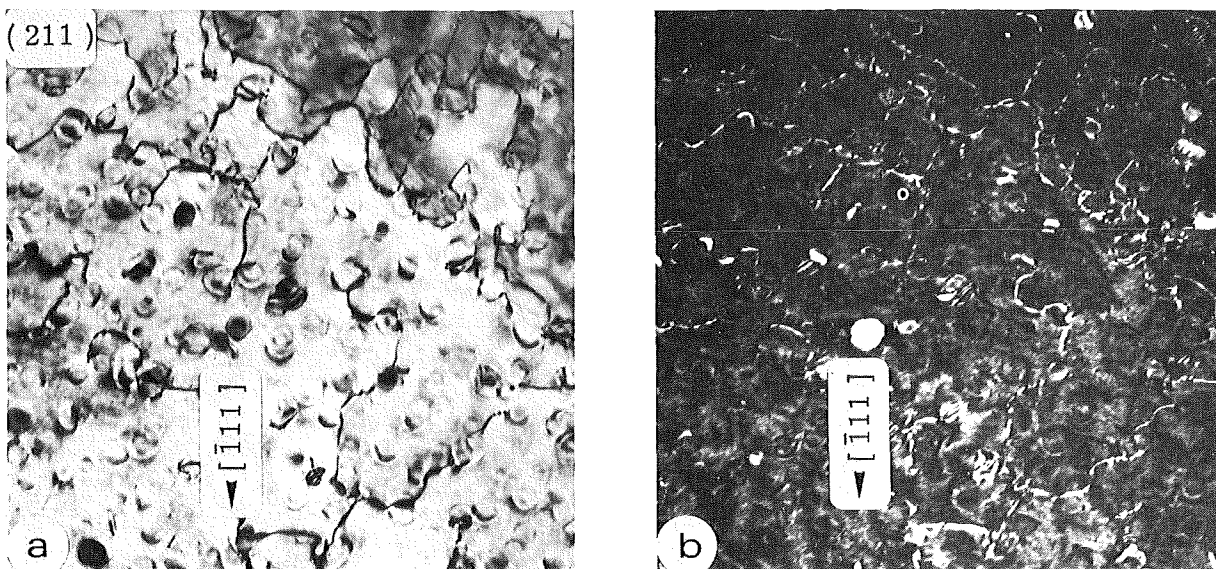


Abb. 46 :- Die Kohärenz-Verspannung um die γ' -Ni₃(Ti+Al)-Ausscheidungen in RGT-3-Legierung, ausgelagert bei 800°C-96 h.

a) und b) Hellfeld-Dunkelfeld(Matrix)-Paar



— 0,5 μm —

Abb. 47 :- Der Verlust der Spannungsfelder sowie der Übergang zur Inkohärenz der γ' -Ni₃(Ti+Al)-Ausscheidungen unter 250-keV-Ni⁺-Beschluß. RGT-3-Legierung, vorausgelagert 800°C-96 h und bestrahlt. Dosis = 40 dpa, Temperatur = 725°C.

a) und b) Hellfeld-Dunkelfeld(Matrix)-Paar

In a) ist die Versetzung-Ausscheidung-Wechselwirkung zu sehen, die in b) noch deutlicher wird.

[RGT-3, Trade Mark der Fa. Röchling, ist eine NiCr 20 TiAl-Legierung mit 2,40 % Ti und 1,40 % Al, vergleichbar mit Nimonic 80A-Legierung].

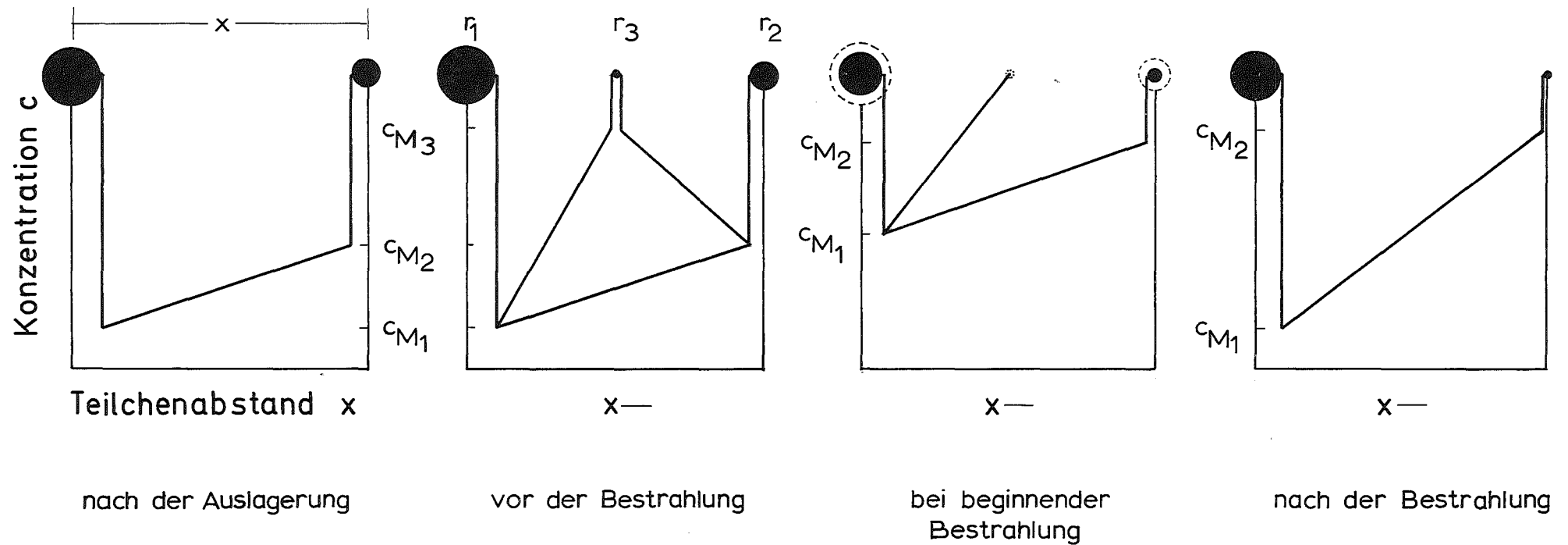


Abb. 48 :- Schematische Darstellung der Stabilität eines großen Teilchens und des Konzentrationsprofils bei einer Bestrahlungstemperatur T_B unterhalb der Löslichkeitstemperatur T_{solvus} , $T_B > 0,5 T_{\text{solvus}}$.

(c_{M_1} , c_{M_2} , c_{M_3} sind die Konzentrationen der gelösten Atome in der umgebenden Matrix der Teilchen mit Radius r_1 , r_2 und r_3 , $r_1 > r_2 > r_3$).

Tab. 1 :- Chemische Analyse der untersuchten Legierungen.

Gew. %	Inconel 625	Al-Mg-Si	Fe-Cu ⁺	Ni-Cr-Al ⁺	Ni-Si ^x
Ni	Rest	-	-	Rest	Rest
C	0,02	-	0,005	0,001	0,007
S	0,006	-	-	30 ppm	0,001
Si	0,22	0,61	-	0,02	6,32
Cu	-	0,001	1,23	-	-
Fe	2,65	0,01	Rest	0,047	0,05
Cr	21,16	0,001	-	17,83	0,05
Co	0,034	-	-	-	0,05
Mo	8,9	-	-	-	-
Al	-	Rest	-	2,85	0,06
Ti	0,05	-	-	-	0,01
Mg	-	0,9	-	-	0,01
Ta+Nb	3,4	-	-	-	-
N ₂	100 ppm	-	100 ppm	10 ppm	0,0005
O ₂	-	-	0,24	10 ppm	0,0015

(+ hergestellt bei der Fa. Röchling/Völklingen

x hergestellt bei der Fa. International Nickel, Birmingham/England)

Tab. 2 :- Zusammenstellung der verschiedenen Wärmebehandlungen.

Legierung	Wärmebehandlung							
	Lösungsglühung				Auslagerung			
	Temperatur (°C)	Zeit (h)	M ^{a)} (°C)	Ofenart	Temperatur (°C)	Zeit (h)	M ^{a)} (°C)	Ofenart
Inconel 625	1100	4	15	Muffel ^{b)}	675	166	15	Vakuum ^{d)}
						216		-''-
						306		-''-
Al-Mg-Si	550	2	-5	Vakuum ^{d)}	300	0,5	15	Vakuum ^{d)}
						0,5		Salzbad
Fe-Cu	840	75	15	Vakuum ^{d)}	600	10	15	Vakuum ^{d)}
Ni-Cr-Al	1100°C - 2 h		-5	Salzbad	700	864	15	Muffel ^{b)}
	1300	1						
Ni-Si	1100	2	0	Muffel ^{c)}	775	0,5	15	Vakuum ^{d)}

(M^{a)} - Temperatur des Abschreckmediums (Wasser)

b) - Proben in Quarzampullen

c) - Proben unter Schutzgas

d) - Aufheizzeit im Vakuumofen ca. 20 min)

Tab. 3 :- Bedingungen für elektrolytisches Polieren der Proben vor der Bestrahlung.

Zusammensetzung des Elektrolyts :

10 vol. % Perchlorsäure + 90 vol. % Äthanol

Legierung	Polierbedingungen		
	Spannung (V)	Stromdichte (A/cm ²)	Temperatur (°C)
Inconel 625	40 - 60	1 - 2	0
Al-Mg-Si	30 - 50	(0,4) ⁺	-25/-30
Ni-Cr-Al	40 - 60	0,8 - 1	-20/-30
Ni-Si	80 - 90	1 - 1,2	-20/-30

(+ Stromdichte fällt ab)

Tab. 4 :- Die berechneten Werte für die projektierte Reichweite R_P und die Standard-Abweichung σ in der Reichweitenverteilung der Ionen mit einer Energie von 250-keV sowie die dadurch erzeugte Zahl der Frenkelpaare n_d im geschädigten Volumen [nach Kaletta 1973].

Ion	Target	R_P (Å)	σ (Å)	n_d
Al ⁺	Al	3292	699	1144
Ni ⁺	Ni	558	184	2021
Fe ⁺	Fe	(558	184	2021) ^x

(x - angenommene Werte)

Tab. 5:- Polierbedingungen für die Herstellung der TEM-Proben nach dem Jet-Verfahren.

Legierung	Polierbedingungen			
	E ⁺	Spannung (V)	Strom (mA)	Temperatur (°C)
Inconel 625	A	15 - 20	3 - 5	+ 15
	B	10 - 15	3 - 4	-25/-30
Al-Mg-Si	B	10 - 11	3 - 4	-20/-30
Fe-Cu	C	40 - 60	4 - 6	-50/-60
Ni-Cr-Al	B	11 - 12,5	2 - 4	-25/-30
Ni-Si	B	10 - 12	3 - 4	-25/-30

(E⁺ : Zusammensetzung des Elektrolyts (vol. %))

A 10 % Perchlorsäure + 90 % Essigsäure

B 10 % Perchlorsäure + 20 % Äthylenglycol + 70 % Äthanol

C 4 % Perchlorsäure + 36 % Äthylenglycomonobutyläther
+ 60 % Methanol)

Tab. 6 :- Die Meßdaten aus der TEM-Auswertung der Ni-Cr-Al-Legierung, vorausgelagert 700°C - 864 h und mit 250-keV-Ni⁺ bestrahlt.

Probe	Dosis (dpa)	Zeit, t _B (s)	\bar{d}_0 (Å)	$\bar{V} \times 10^{-17}$ (cm ³)	$\bar{N} \times 10^{14}$ (cm ⁻³)	ΔN (%)	c _{Al} (At%)	\bar{V}_f (%)	ΔV_f (%)	n
P-0	(vor der Bestrahlung)		556	10,8	8,5	-	2,3	9,2	-	2455
T _B = 50°C										
P-1	2	150	----- schwacher γ'-Überstruktureflex -----							
P-2	20	666				- " -				
P-3	40	228				- " -				
P-4	199	1026	-	-	-	-	-	-	-	-
P-5	398	2735	-	-	-	-	-	-	-	-
T _B = 340°C										
P-6	0,2	(100)	511	8,3	7,5	-11,4	1,5	6,3	-31,9	1376
P-7	2	110	497	7,3	6,9	-18,5	1,2	9,1	-44,8	963
P-8	20	250	(x)	(x)	(x)	(x)	(x)	(x)	(x)	(x)
P-9	40	294	505	7,7	6,7	-21,1	1,3	5,2	-43,6	939
P-10	199	1281	448	5,1	6,8	-19,6	0,9	3,5	-61,7	539
P-11	398	2497	467	5,8	7,1	-17,1	1,0	4,1	-54,9	567

(Fortsetzung...)

(Fortsetzung der Tab. 6) -a-

Probe	Dosis (dpa)	Zeit, t_B (s)	\bar{d}_O (A)	$\bar{V} \times 10^{-17}$ (cm^3)	$\bar{N} \times 10^{14}$ (cm^{-3})	ΔN (%)	c_{Al} (At%)	\bar{V}_f (%)	ΔV_f (%)	n
P-0	(vor der Bestrahlung)		556	10,8	8,5	-	2,3	9,2	-	2455
$T_B = 525^\circ\text{C}$										
P-12	2	(90)	538	9,8	8,5	- 0,1	2,1	8,4	- 9,1	1280
P-13	20	204	512	8,8	7,7	- 9,3	1,7	6,8	-25,7	1156
P-14	40	650	491	7,6	6,1	-28,5	1,1	4,6	-49,4	683
P-15	199	1354	460	6,0	6,9	-18,7	1,0	4,1	-54,8	796
P-16	398	2940	475	6,6	5,6	-33,7	0,9	3,7	-59,3	441
$T_B = 625^\circ\text{C}$										
P-26	2	110	531	9,8	8,6	+ 1,2	2,1	8,5	- 7,8	1508
P-27	20	780	483	7,6	7,1	-17,2	1,3	5,4	-41,7	1092
P-28	40	420	507	8,8	7,8	- 8,9	1,7	6,8	-20,2	879
P-29	199	1463	575	12,1	9,0	+ 5,4	2,7	10,9	-18,1	1892
P-30	398	3375	*	*	*	*	*	*	*	*

(Fortsetzung...)

(Forsetzung der Tab. 6) -b-

Probe	Dosis (dpa)	Zeit, t_B (s)	\bar{d}_O (A)	$\bar{V} \times 10^{-17}$ (cm^3)	$\bar{N} \times 10^{14}$ (cm^{-3})	ΔN (%)	c_{Al} (At%)	\bar{V}_f (%)	ΔV_f (%)	n
P-0	(vor der Bestrahlung)		556	10,8	8,5	-	2,3	9,2	-	2455
$T_B = 725^\circ\text{C}$										
P-17	2	70	492	7,9	5,6	-34,4	1,1	4,4	-52,1	1408
P-18	20	190	382	3,8	2,8	-67,3	0,2	1,1	-88,5	571
P-19	40	433	0	0	0	-100	0	0	-100	0
P-20	199	1610	⊗	⊗	⊗	⊗	⊗	⊗	⊗	⊗
P-21	398	(4800)	⊗	⊗	⊗	⊗	⊗	⊗	⊗	⊗

(x Wegen des zu starken Elektropolierens vor der Bestrahlung wurde diese Probe für die quantitative Auswertung nicht verwendet.

* Zusätzlich zu den γ' -Ausscheidungen scheiden sich Ausscheidungen unbekannter Phase aus.

⊗ Statt γ' -Ausscheidungen bilden sich Ausscheidungen unbekannter Phase/n.)

Tab. 7 :- Die Meßdaten aus der TEM-Auswertung der Ni-Cr-Al-Legierung, vorausgelagert 750°C - 200 h und mit 250-keV-Ni⁺ bei 600°C bestrahlt.

Probe	Dosis (dpa)	Zeit, t _B (s)	\bar{d}_0 (Å)	$\bar{V} \times 10^{-16}$ (cm ³)	$\bar{N} \times 10^{14}$ (cm ⁻³)	ΔN (%)	c _{Al} (At%)	\bar{V}_f (%)	ΔV _f (%)	n
PX-NB	(vor der Bestrahlung)		663	1,8	4,3	-	1,9	7,9	-	1474
PX-B	40	(350)	675	1,9	3,7	-13,5	1,7	7,2	-27,3	763

Tab. 8 :- Die Meßdaten aus der TEM-Auswertung der Ni-Si-Legierung, vorausgelagert 775°C - 0,5 h und mit 250-keV-Ni⁺ bei 725°C bestrahlt.

Probe	Dosis (dpa)	Zeit, t _B (s)	\bar{d}_0 (Å)	$\bar{V} \times 10^{-16}$ (cm ³)	$\bar{N} \times 10^{14}$ (cm ⁻³)	ΔN (%)	c _{Si} (At%)	\bar{V}_f (%)	ΔV _f (%)	n
NSP-0	(vor der Bestrahlung)		634	1,6	4,9	-	1,9	7,9	-	1406
NSP-1 ⁺	2	145	770	3,1	2,1	-57,1	1,6	6,5	-17,1	486
NSP-2	19	152	(x)	(x)	(x)	(x)	(x)	(x)	(x)	(x)
NSP-3 ⁺	38	266	0	0	0	-100	0	0	-100	0

(+ Die Ausscheidungen, die sich nach der Bestrahlung während der Abkühlung gebildet haben, wurden für die quantitative Auswertung nicht berücksichtigt.

x Wegen des zu starken Elektropolierens vor der Bestrahlung wurde diese Probe für die quantitative Auswertung nicht verwendet.)

ANHANG

Dosis → dpa - Umrechnung

Um einen Vergleich mit anderen Arbeiten zu ermöglichen, in denen die Dosis in dpa angegeben wird, werden die Bestrahlungsdosen durch folgende Gleichung umgerechnet [Kaletta 1976] :

$$Kt = \phi t \times n_D \times \frac{1}{n_A \times X_D} \quad (A1)$$

ϕt = Dosis (Ionen/cm²)

n_D = Zahl der Frenkelpaare im geschädigten Volumen

n_A = Zahl der Atome/cm³

X_D = Schädigungsintervall (cm)

Den berechneten n_D -Werten für die 250-keV-Ionen liegt das NRT-Modell [Norgett et al. 1972] mit einer Verlagerungsenergie von 25 eV zugrunde und die n_A -Werte sind mit der aus der Literatur (s. unten "Das Ausscheidungsverhalten" der jeweiligen Legierung für die Literaturstellen) entnommenen Matrix-Gitter-Konstante a_M geschätzt :-

$$n_A = n_Z \times Z_A \quad (A2)$$

n_Z = Zellen/cm³

Z_A = Zahl der Atome pro Zelle.

Um die wahrscheinlich inhomogene Verteilung der Schädigung zu berücksichtigen, wird X_D als ein Intervall definiert, in dem sich 95% der eingeschossenen Teilchen befinden, d. h. :

$$X_D = 3,92 \sigma \quad \sigma = \text{Standard-Abweichung} \quad (A3)$$

Legierung	a_M (Å)	n_A ($10^{22}/\text{cm}^3$)	$n_D^{(+)}$	$X_D^{(+)}$ (Å)
Inconel 625	3,61	8,50	2021	721
Al-Mg-Si	4,04	8,55	1144	2740
Fe-Cu	2,86	8,55	2021	721
Ni-Cr-Al	3,55	8,94	2021	721
Ni-Si	3,50	9,32	2021	721

(+) Werte nach Kaletta [1973]

I Inconel 625 Legierung

Dosis (Ni^+/cm^2)	dpa
1×10^{15}	3
1×10^{16}	33
$1,2 \times 10^{16}$	40
2×10^{16}	66
$1,2 \times 10^{17}$	395

II Al-Mg-Si-Legierung

Dosis (Al^+/cm^2)	dpa
$6,36 \times 10^{15}$	4
$1,27 \times 10^{16}$	9
$2,6 \times 10^{16}$	18
$6,36 \times 10^{16}$	44
$1,3 \times 10^{17}$	90

III Fe-Cu-Legierung

Dosis (Fe^+/cm^2)	dpa
1×10^{15}	3
2×10^{16}	66

IV Ni-Cr-Al-Legierung

Dosis (Ni^+/cm^2)	dpa
$6,36 \times 10^{13}$	0,2
$6,36 \times 10^{14}$	2
$6,36 \times 10^{15}$	20
$1,27 \times 10^{16}$	40
$6,36 \times 10^{16}$	199
$1,27 \times 10^{17}$	398

V Ni-Si-Legierung

Dosis (Ni^+/cm^2)	dpa
$6,36 \times 10^{14}$	2
$6,36 \times 10^{15}$	19
$1,27 \times 10^{16}$	38