

KfK 2896
Dezember 1979

Untersuchung der Pinningkräfte in einem deuteronenbestrahlten A 15-Supraleiter

P. Maier
Institut für Technische Physik

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Institut für Technische Physik

KfK 2896

Untersuchung der Pinningkräfte in einem deutronen-
bestrahlten A15-Supraleiter⁺⁾

P. Maier

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

⁺⁾ von der Fakultät für Physik der Universität Karlsruhe
genehmigte Dissertation

Als Manuskript vervielfältigt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
ISSN 0303-4003

Zusammenfassung

Es wird an Nb₃Sn-Einkernleitern mit variierenden Schichtdicken und Reaktionstemperaturen gezeigt, daß die bei Bestrahlung mit 50 MeV-Deuteronen bei tiefen Temperaturen auftretenden Änderungen der Stromtragfähigkeit j_c aufgrund von Pinningzentrendichte einerseits und kritischem Feld B_{c2} und Übergangstemperatur T_c andererseits separiert werden können. Der Zuwachs an Volumenpinningkraft $j_c \cdot B$ ist etwa proportional zum Bestrahlungsfluß ($\Phi t \lesssim 5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-2}$) und zum Wert T_c vor Bestrahlung. Im Bereich hoher Dosis ($> 10^{18} \text{ cm}^{-2}$) überwiegt die Schädigung von T_c und B_{c2} ; die Absenkung von j_c kann allein als Folge hiervon verstanden werden. Beim Vergleich der effektiven Einzelhaftkräfte je Korngrenze und Strahlenpinningzentrum zeigt sich, daß beide von der gleichen Größenordnung sind und die gleiche Abhängigkeit von der Strahlenschädigung aufweisen, was einen ähnlichen Wechselwirkungsmechanismus zwischen Flußlinien und Pinningzentren nahelegt.

Abstract:

Pinning forces in Deuteron-Irradiated A15-Superconductors

It is shown, that in monofilament samples of varying Nb₃Sn-layer thickness and different reaction temperatures irradiated by 50 MeV-deuterons at low temperatures the observed changes in critical current density, j_c , may be separated as caused by density of pinning centers as well as by the upper critical field, B_{c2} , and transition temperature, T_c . At low fluences ($\Phi t \lesssim 5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-2}$) the enhancement in volume pinning force $j_c \cdot B$ as function of dose is just less than linear and dependent on the T_c -value before irradiation. At high fluences ($> 10^{18} \text{ cm}^{-2}$), the degradation of T_c and B_{c2} is dominant and the decrease in j_c may be understood as a consequence. Comparing specific pinning forces per grain boundary and irradiation pinning center one finds both to be comparable in magnitude and showing the same response to radiation damage, which may be caused by similar flux pinning interactions.

Inhaltsverzeichnis

	Seite
Zusammenfassung	
Einleitung	1
1. Wirkung der Deuteronenbestrahlung im Supraleiter	4
1.1 Erzeugung und Verteilung der Strahlendefekte	4
1.2 Störung der Ordnung und Ausheilung der Defekte	5
1.3 Erzeugung von Pinningzentren	6
2. Probenherstellung und Charakterisierung des Ausgangszustands	9
2.1 Herstellung der Diffusionsschichten	9
2.2 Untersuchungen zur Korngrößenverteilung	13
2.3 Abhängigkeit des kritischen Stromes vom Schichtaufbau	16
2.4 Aussagen der T_c -Messungen zum Zustand der Schicht	19
3. Bestrahlungsexperimente und Meßergebnisse	23
3.1 Bestrahlungseinrichtung	23
3.2 Probenaufbau und Meßmethoden	23
3.3 Bestimmung der Bestrahlungsdosis	26
3.4 Überblick über die T_c -Meßergebnisse	27
3.5 Die kritische Stromdichte bei Bestrahlung für variierende Reaktionsparameter	30
4. Auswirkungen der Strahlenschädigung der A15-Struktur	35
4.1 Gleichwertigkeit der unterschiedlich erzeugten Ordnungsstörungen	35
4.2 Schädigung von B_{c2} und Volumenpinningkraft	38
4.3 Diskussion der Hochdosisreduktionen	40
5. Diskussion der Pinningmechanismen im bestrahlten Supraleiter	44
5.1 Abtrennung des Bestrahlungsanteils der Pinningkräfte	44
5.2 Effektivität der einzelnen Pinningzentren	47
5.3 Diskussion der Feldabhängigkeit und des Defektspektrums	48
5.4 Vergleich von Korngrenzen- und Bestrahlungspinningkräften	51
Schluß	53
Anhang	
I Probenspezifikationen und Meßwerte	55
II Abschätzungen der Meßfehler	59
III Abschätzungen von B_{c2} aus Messungen bis 13 T	61
IV Ergänzungen zur Dosisbestimmung	65
V Liste der verwendeten Symbole	69
Literaturhinweise	72

Einleitung

Die A15-Supraleiter werden neben den schon weitgehend optimierten und in Großanlagen bewährten NbTi-Verbundleitern in wachsendem Umfang zur Erzeugung starker Magnetfelder eingesetzt. Dabei ist vor allem an Nb_3Sn , V_3Ga und Nb_3Al in Form von Multifilamentleitern gedacht, die bei Feldern über $B \approx 8$ T mit geringerem Kühlaufwand als NbTi betrieben werden können. Wegen ihrer Sprödigkeit sind diese Stoffe zwar empfindlich gegenüber mechanischen Belastungen, z. B. bei der Verarbeitung und durch magnetische Kräfte, jedoch scheinen diese Probleme durch geeignete Leitersysteme lösbar¹⁾. Da experimentell gezeigt werden konnte²⁾, daß die Schädigung durch Nuklearbestrahlung bei geeigneter Abschirmung in erträglichen Grenzen bleibt, ist der Einsatz von Nb_3Sn auch in Fusionsreaktormagneten vorgesehen.

Die genaue Vorhersage der Strahlenschädigung bei geplanten Leitertypen erfordert allerdings für die technische und wirtschaftliche Konzeptierung experimentelle Untersuchungen.³⁾ Denn obwohl die bei Bestrahlung auftretenden Effekte dank zahlreicher Arbeiten überschaubar sind⁴⁾, ist die quantitative Behandlung schwierig. Der Grund liegt darin, daß die Wechselwirkungen zwischen magnetischen Flußschläuchen und Kristalldefekten (Pinningzentren), die zu den hohen Stromtragfähigkeiten führen, in den A15-Supraleitern noch Gegenstand der Forschung sind, und man von einem gesicherten Verständnis dieser Pinningmechanismen nicht sprechen kann⁵⁾

Für die Deutung der experimentellen Ergebnisse sind häufig nicht nur die im Prinzip zwar berechenbaren Strahlenschäden, sondern auch der metallurgische Ausgangszustand der jeweiligen Proben nur näherungsweise bekannt. Vor allem bei einem Vergleich der Meßergebnisse verschiedener Autoren ist zu beachten, ob unterschiedliche Leitergeometrien und Mikrostrukturen der Supraleiterschicht vorliegen. So kann die Erhöhung der Stromtragfähigkeit aufgrund der durch Bestrahlung erzeugten Pinningzentren von null oder wenigen Prozent bis zum mehrfachen des Wertes vor Bestrahlung betragen⁶⁾. Auch liegt die für technische Anwendung wichtige Reduktion unter eine Sicherheitsschwelle im Bereich hoher Strahlen-

dosis je nach Ausgangsmaterial unterschiedlich innerhalb einer Zehnerpotenz bei etwa $5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-2}$ (50 MeV Deuteronen) entsprechend ⁴⁾ 10^{19} cm^{-2} (Neutronen $E_n > 1 \text{ MeV}$).

In der vorliegenden Arbeit wird nun an einem Probenatz mit variierendem Ausgangszustand der Supraleiterschicht der Zusammenhang der Strahlenpinning- und Strahlenschädigungseffekte mit spezifischen Probenparametern untersucht. Die Ziele dabei sind:

- die *Vorhersage der Stromtragfähigkeit nach Bestrahlung* bei Kenntnis der Probenparameter,
- die *Klärung einiger Eigenschaften der Pinningzentren* in Nb_3Sn durch Vergleich der Meßwerte mit theoretischen Berechnungen.

Als *Probenmaterial* wurde ein Einkernleiterdraht gewählt, der die Vorstufe eines technischen Leiters darstellt. Dadurch werden einerseits die Untersuchungen der Supraleiterschicht erleichtert, andererseits ist eine Übertragung der Methoden und Ergebnisse auf die üblichen Multifilamentleiter möglich. Dies wurde an einem Beispiel durchgeführt.

Für die *Bestrahlung* wurden 50 MeV-Deuteronen benutzt. Deren freie Weglänge beträgt in Metallen einige Millimeter, so daß eine homogene Bestrahlung über den Probenquerschnitt gewährleistet ist. Auch besteht eine gewisse Ähnlichkeit mit einer 14 MeV-Neutronenbestrahlung (Fusionsneutronen) bezüglich der erzeugten Strahlenschäden im Bereich der pinningaktiven größeren Defektcluster.

Die Arbeit ist folgendermaßen gegliedert:

Eingangs werden im ersten Kapitel die zu erwartenden Effekte bei der gewählten Bestrahlungsart kurz beschrieben und dann im zweiten Kapitel der Ausgangszustand der Proben untersucht. Die Supraleiterschichten wurden durch Diffusionsglühung im Bronzeverfahren bei fünf Temperaturen zwischen 650 und 850 °C mit jeweils etwa vier unterschiedlichen Schichtdicken hergestellt. Dabei zeigt sich, daß trotz des gewählten einfachen Probenaufbaus (Einkernleiter) die

Schichtdicke und insbesondere die Korngröße in der Schicht nur unter Schwierigkeiten bestimmt werden können und zudem nicht unabhängig voneinander variierbar sind.

Im dritten Kapitel werden die Bestrahlungsexperimente beschrieben und auf die Bestimmung der Bestrahlungsdosis eingegangen. Die Änderungen der Meßgrößen Übergangstemperatur T_c und kritische Stromdichte j_c ($T = 4.2 \text{ K}$, $B \leq 7 \text{ T}$) mit dem integrierten Deuteronenfluß Φt werden in ihrer Abhängigkeit von den variierenden Probenparametern dargestellt.

Die Diskussion in den beiden letzten Kapiteln zeigt, wie die Strahlenschädigung und die Erzeugung von Pinningzentren durch Bestrahlung aus den Meßwerten abgetrennt werden und jeweils durch einfache Formeln mit ausreichender Genauigkeit beschrieben werden können. Das vierte Kapitel beschäftigt sich dabei mit der Abhängigkeit der Pinningkräfte von den intrinsischen Parametern T_c , B_{c2} und κ sowie deren Strahlenschädigung. Nach Korrektur für diesen Einfluß können im fünften Kapitel die durch Bestrahlung erzeugten Pinningkräfte diskutiert werden. Es werden Vergleiche mit Modellrechnungen und mit dem Korngrenzenpinning jeweils für die effektiven Einzelpinningkräfte⁸⁾ durchgeführt. Eine quantitative Prüfung theoretischer Pinningmodelle^{7,8)} war hier wegen der Unsicherheit bei der Bestimmung der Pinningzentrendichte allerdings nicht möglich.

Im Anhang findet sich neben einer Symbolliste und den Probenspezifikationen eine Tabelle mit Einzelergebnissen. Dort sind auch die Meßwerte an Mehrkernleitern mit aufgeführt, auf die natürlich die Ergebnisse dieser Arbeit anwendbar sind. Auf die Abschätzung der Meßfehler folgen schließlich noch zwei Ergänzungen zum experimentellen Teil, wobei der Abschnitt über die Bestimmung von B_{c2} auch einen Vergleich mit dem theoretischen Zusammenhang von B_{c2} und T_c enthält, der in Abschnitt 4 verwendet wird.

1. Wirkungen der Deuteronenbestrahlung im Supraleiter

1.1 Erzeugung und Verteilung der Strahlendefekte

Bei der Bestrahlung von Metallen mit 50 MeV-Deuteronen entstehen Frenkelpaare und Kaskaden von energiereicheren Verlagerungsstößen, die in stark gestörten Zonen (Defektcluster) enden. Bei schweren Metallen ist die Ausdehnung der Kaskaden eng begrenzt; lediglich durch fokussierte Stöße können Energien $E_f < 100$ eV aus der stark geschädigten Zone übertragen werden⁹⁾. Im betrachteten Energiebereich reicht ein Modell statistisch verteilter Atome mit einfachem Coulombpotential zur Beschreibung des Primärstoßes aus. Mit einer mittleren Verlagerungsenergie E_d , die gerade zur Erzeugung eines *stabilen* Frenkelpaares ausreicht, dem gemittelten Atomgewicht M_2 und der Kernladung Z_2 für Nb₃Sn ist der Verlagerungsquerschnitt für den Primärstoß (Index 1 für Deuteron):

$$\sigma = \frac{M_1 Z_1^2 Z_2^2 e^4 \pi}{M_2 \cdot E_1} \int_{E_d}^{E_m} \frac{dE_2}{E_2^2}, \quad \text{mit } E_m = \frac{4M_1 M_2 E_1}{(M_1 + M_2)^2}. \quad (1-1)$$

Die mittlere übertragene Energie ist dabei

$$\bar{E} = \int \frac{d\sigma}{\sigma} E_2 = E_d \ln(E_m/E_d) \quad (1-2)$$

und die mittlere Gesamtzahl der Verlagerungen in einer Kaskade nach einer Harte-Kugel-Näherung (Kaskadenfaktor):

$$\nu(E_2) = k' \frac{E_2}{2E_d}, \quad k' \approx 0,8 \dots 1. \quad (1-3)$$

Bessere Potentialnäherungen liefern oft nur leicht geänderte Vorfaktoren k' bei ebenfalls linearer Energieabhängigkeit.

Im vorliegenden Fall ergeben sich mit einer angenommenen¹⁰⁾ mittleren Verlagerungsenergie $E_d \approx 36$ eV folgende Zahlenwerte:

$$E_m = 3,9 \text{ MeV}, \quad \sigma = 1,3 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2, \quad \bar{E} = 417 \text{ eV}, \quad \bar{\nu} \approx 5,$$

so daß eine Verlagerung pro Atom nach einem Fluß von

$\phi t = 1,5 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-2}$ erreicht wird. Es sei noch erwähnt, daß Kernreaktionen nicht berücksichtigt werden, weil die Wirkungsquerschnitte etwa 1000mal kleiner sind als für den Primärstoß mit Atomverlagerung (siehe auch Anhang IV).

1.2 Störung der Ordnung und Aushheilung der Defekte

Bisher wurde nur die Gesamtzahl der bei tiefen Temperaturen *stabilen* Paare von Leerstellen und Zwischengitteratomen betrachtet. Da jedoch die reversiblen Eigenschaften von Nb_3Sn , z. B. T_c , von der langreichweitigen Ordnung S der A15-Struktur im einzelnen Korn bestimmt werden, ist auch die Wahrscheinlichkeit für eine Mischung der Atomarten beim Zerfall der *instabilen* Frenkel-paare zu berücksichtigen. Als Schwellenenergie für einen solchen Ersetzungsstoß wird $E_r \approx 2,5 \text{ eV} < E_d$ angenommen¹⁰⁾. Der neue Kaskadenfaktor ist¹¹⁾:

$$\nu' = 0.5\nu(E_2) \left[1 + \frac{\ln E_d/E_r}{\ln 4/3} \right], \quad (1-4)$$

gemittelt über die Sekundärenergie E_2 ergibt sich $\bar{\nu}' \approx 30$. Diese wesentlich größere Schädigung der A15-Supraleiter gegenüber einfachen Legierungen wie z. B. NbTi ist bekannt¹²⁾, ebenso wie die nur geringe Ausheilung dieser Schädigung bei Erwärmung, solange nicht die zur Rekristallisation nötigen Diffusionstemperaturen ($\geq 600 \text{ }^\circ\text{C}$) erreicht werden¹³⁾. So sind in elektronenmikroskopischen Untersuchungen der geordneten Legierung Cu_3Au nach Bestrahlung und Aufwärmen bei Abbildung mit Überstruktureflexen wesentlich mehr Defekte zu finden als mit der normalen Abbildung; man benutzt solche geordneten Legierungen deshalb zur Untersuchung der primären Defektconfiguration¹⁴⁾. Auch in neutronenbestrahltem Nb_3Sn sind mit dieser Technik oft mehr Defekte zu erkennen, wie in einer neuen Arbeit¹⁵⁾ gezeigt wird.

Trotz der geringen Ausheilung der Fehlordnung, im Gegensatz zu Frenkel-paaren, kann die Bestrahlungstemperatur wegen der komplizierten Defektkinetik¹⁶⁾ (Stabilität der verschiedenen Defektarten) das Gesamtergebnis beeinflussen. Bei der hier vorliegenden Bestrahlungstemperatur von etwa 18 K bleibt die primäre Defekt-

konzentration noch weitgehend erhalten. Dadurch werden Ausheildefekte bei j_c -Messungen vermieden, die einen großen Teil der in einer Bestrahlungsstufe erreichten Änderung betragen können¹³⁾, selbst wenn diese Ausheilung, verglichen mit dem Ausgangswert, nur gering ist.

Für die Beschreibung der Fehlordnung in den A15-Supraleitern benutzt man als Parameter die Konzentration c_D der fehlbesetzten Übergangsmetall-Gitterplätze (hier Nb) oder den Bragg-Williams-Fernordnungsparameter S . Dieser nimmt die Werte 0 bei statistischer und 1 bei völlig geordneter Besetzung der Gitterplätze an und kann näherungsweise berechnet werden¹⁷⁾:

$$S = S_0 \exp(-\bar{v}_0 \phi t) = 1 - 4c_D; \quad (1-5)$$

$S_0 < 1$ ist der Ordnungsgrad vor Bestrahlung. Dabei wird eine *homogene Verteilung* der Defekte angenommen, was bei Bestrahlung mit leichten Ionen wegen der Bevorzugung kleiner Energieüberträge noch besser als bei Neutronenbestrahlung erfüllt ist. Selbst wenn die Defekte in kleinen fehlgeordneten Zonen konzentriert sind, ist die Wirkung für die reversiblen Parameter des Supraleiters bei niedriger Konzentration ähnlich wie im Fall homogener Verteilung¹⁸⁾. Denn der Fehler, der sich bei rein geometrischer Abschätzung der Kettenlänge ergibt und der proportional zum Radius der gestörten Zone anwächst, wird teilweise durch den Proximity-Effekt kompensiert, der eine Verteilung der Wirkung der Fehlordnung auf einen größeren Bereich bewirkt.

1.3 Erzeugung von Pinningzentren

Als Pinningzentren im Typ II-Supraleiter bezeichnet man Gebiete mit abweichenden Supraleitereigenschaften in einer homogenen Matrix, die die Bewegung der Flußschläuche entsprechend dem im Mischzustand vorliegenden Flußgradienten verhindern und so die hohen Stromtragfähigkeiten ermöglichen. Die Abmessungen dieser Gebiete oder der umgebenden Spannungsfelder des Kristallgitters müssen vergleichbar mit der Kohärenzlänge ($\xi \sim 35 \text{ \AA}$) sein, wofür bei Bestrahlung die Defektcluster oder Abweichungen der Frenkelpaardichte in der Nähe von Korngrenzen in Frage kommen.

Qualitativ kann man einen Defektcluster folgendermaßen beschreiben: Bei den vorliegenden mittleren Atomgewichten ist die Defekterzeugung konzentriert auf ein Gebiet in der Größenordnung der Reichweite des primär gestoßenen Atoms, wobei die Verteilung der Leerstellen etwa kugelsymmetrisch ist und die Zwischengitteratome sich auf einer Kugelschale befinden¹⁹⁾. Außerdem breiten sich entlang der dicht gepackten Richtungen einige Prozent der Clusterenergie aus und führen in einer Entfernung von bis zu 30 Gitterabständen zu einer Frenkelpaarwolke, wobei die Entfernung auch von der Defektkonzentration in diesem Gebiet und der Bestrahlungstemperatur abhängt.

Die Größenverteilung sollte numerisch berechnet werden, da für die Mehrzahl der Defektcluster nur kleine Energien zur Verfügung stehen und die Richtungsabhängigkeit der Verlagerungsenergie im realen Festkörper vom bisher verwendeten isotropen Modell abweicht. Mit dieser Einschränkung werden in Abb. 1 verschiedene einfache Abschätzungen für die Größenverteilung der Cluster angegeben, einmal abgeschätzt nach σ und v' (Gl. (1-1) und (1-4)) mit und ohne Anteil von fokussierten Stößen⁹⁾; sowie nach der mittleren Reichweite des primär gestoßenen Atoms. Man sieht deutlich das Überwiegen der kleinen Clusterdurchmesser, für deren Anzahl die gewählte Verlagerungsenergie ($E_d = 36$ eV) ausschlaggebend ist. Die Kurve (a) wird in Abschnitt 5.3 zur Abschätzung der Volumendichte von Strahlenpinningzentren benutzt.

In diesem Kapitel wurden die Wirkungen der Deuteronenbestrahlung im Supraleiter beschrieben und dazu zwei Modelle nebeneinander benutzt. Die Annahme einer homogenen Verteilung aller Verlagerungen wird für die Beschreibung der intrinsischen Supraleitungsgrößen verwendet, da diese räumlich nicht stärker als über eine Kohärenzlänge variieren. Für das Flußlinienpinning werden diese gemittelten Eigenschaften als Hintergrund angesehen, in dem Gebiete mit stark abweichenden Supraleitungseigenschaften, d. h. Korngrenzen und Defektcluster, als Pinningzentren wirken. Abgesehen von solchen größeren Defektclustern, die stark verdünnte Zonen enthalten, wirkt sich natürlich auch hier die Mittelung über die Kohärenzlänge (Proximity-Effekt) aus, allerdings im Sinne einer Abschwä-

chung des Pinningzentrums (und einer Verstärkung der Schädigung des Hintergrunds).

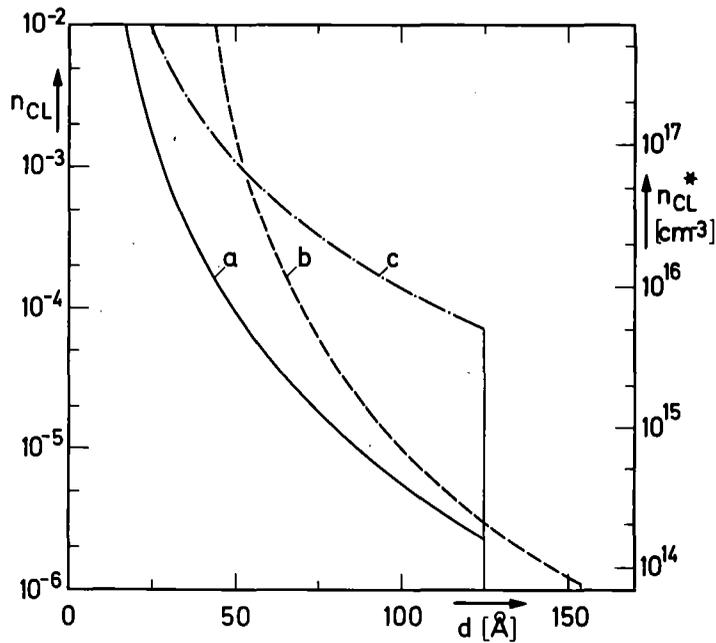


Abb. 1: Größenverteilung von Defektclustern in Nb₃Sn, berechnet nach einem Harte-Kugel-Modell a) ohne und b) mit fokussierten Stößen sowie c) nach der mittleren Reichweite des primär gestoßenen Atoms. Die linke Skala ist normiert auf die Gesamtzahl von Frenkelpaaren, auf der rechten Seite ist die Volumendichte für $\phi t = 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ aufgetragen, jeweils für ein Durchmesserintervall von 10 \AA .

2. Probenherstellung und Charakterisierung des Ausgangszustands

Die Auswahl des Probenmaterials erfolgte so, daß eine systematische Variation von Schichtdicken und Korngrößen bei gleicher Probengeometrie möglich war. Dabei sollte die Messung der Größen j_c und T_c einfach durchzuführen sein und trotzdem ein Vergleich zu technisch angewandten Supraleitern sinnvoll erscheinen. Aus früheren Bestrahlungsmessungen war bekannt²⁰⁾, daß die Reproduzierbarkeit der Meßwerte bei Einkernleitern besonders gut ist und auch der Querschnitt der Supraleiterschicht sich relativ leicht bestimmen läßt. Ein weiterer Vorteil gegenüber den gängigen Multifilamentleitern ist die größere Freiheit in der Wahl der Schichtdicke, wobei der Herstellungsprozeß in gewissen Grenzen derselbe sein kann. Eine Verarmung der Bronzematrix an Zinn ist selbst bei größeren Schichtdicken wegen des geringen Anteils des Supraleiters am Gesamtquerschnitt nicht zu erwarten.

2.1 Herstellung der Diffusionsschichten

Das Probenmaterial wurde von der Firma Vacuumschmelze, Hanau, in ungeglühter Form zur Verfügung gestellt, sowie einige in Argonatmosphäre bereits fertig reagierte Ein- und Mehrkernleiter (24h 700 °C, 24h 750 °C). Die Diffusionsglühung der übrigen Proben erfolgte im Vakuum, wobei Stücke von je 72 mm Länge einzeln in Tantalschiffchen gelagert und in einem Glührohr aus Edelstahl so in den Ofen eingefahren wurden, daß der Druck am Ort der Proben nicht über $5 \cdot 10^{-3}$ Torr anstieg. Beim Erreichen von 600 °C war das Vakuum besser als $5 \cdot 10^{-4}$ Torr, nach 1 h etwa $5 \cdot 10^{-5}$ Torr. Der Druck am äußeren Ende des Glührohres wurde ständig registriert und mit dem experimentell bestimmten Druckabfall bis zum Probenort korrigiert. Diese Prozedur lieferte saubere, hochglänzende Proben ohne sichtbare Oxidhaut. Bei den 5 Reaktionstemperaturen von 650 bis 850 °C wurden die Proben zwischen 12 min und 400 h, je nach gewünschter Schichtdicke, geglüht und anschließend das Glührohr ausgefahren. Die Temperatur fiel in ca. 1 min unter 600 °C und in weiteren 5 min unter 300 °C. Bei 350 - 380 °C wurde mit Argon geflutet. Die Temperatur am Probenort wurde mit Thermoelement und

Platinwiderstand gemessen und wich im Mittel um ± 2 °C vom Sollwert ab. Die periodischen Schwankungen durch die Ofenregelung betragen ± 3 °C, der Meßfehler wurde zu ± 2 °C geschätzt.

Zur Bestimmung der Schichtdicken wurden Querschliffe angefertigt und nach Ätzung oder anodischer Oxidation lichtmikroskopisch fotografiert (je 2 bis 4 Proben). Die Bilder (Vergrößerung 600-fach) wurden auf einem elektronischen Planimeter (Kontron MOP 3) vermessen. Die mittleren Schichtdicken und Querschnittsflächen wurden später noch auf den jeweiligen Neigungswinkel des Schliffes korrigiert. Die mittlere Dicke der näherungsweise kreisringförmigen Schicht wurde bei dünnen Schichten aus der Schichtfläche und dem mittleren Umfang bzw. dem Umfang des Nb-Kerns bei dicken Schichten berechnet. Bei dünnen Schichten sowie vor der Reaktion betrug der Formfaktor (Abweichung von der Kreisform) des Nb-Kerns $f_o = \frac{4\pi F}{U^2} \approx 0,71$ für das Material NS 38, und für das später ersatzweise bezogene Material NS 41 war $f_o \approx 0,86$. Bei Schichtdicken $d_s > 5 \mu\text{m}$ verbesserte sich f_o auf 0,85 bzw. 0,95; die Schichtgrenze zur CuSn-Matrix war jedoch unregelmäßiger, $f_o \approx 0,6$ bzw. 0,8 (siehe Abschnitt 2.2).

Die so bestimmten Schichtdicken genügten näherungsweise einem parabolischen Zeitgesetz (Reaktionszeit t_R , s. Abb. 2):

$$d_s^{n'} = t_R K(T_R), \quad n' = 2, \text{ Reaktionstemperatur } T_R = \text{const.} \quad (2-1)$$

Aus der in Abb. 3 eingetragenen Fitgeraden erhält man nach

$$K = K_o \exp - (Q/RT_R), \quad R = \text{Gaskonst.}, \quad (2-2)$$

eine Aktivierungsenergie von $Q = 275 \text{ kJ/mol}$ (2,8 eV/Atom) und für K_o den Wert $1,63 \cdot 10^{-2} \text{ m}^2/\text{sec}$. In Abb. 3 sind auch die in Argonatmosphäre geglühten Einkernleiter und ein Literaturwert ($n' = 2,9$, $Q = 149 \text{ kJ/mol}$) eingetragen²¹⁾. Es sei noch bemerkt, daß bei 800 °C die CuSn-Matrix zu schmelzen beginnt und bei 850 °C ca. 35 At % flüssig sind (Sn-Gehalt ca. 13 At %), was sich experimentell durch Ankleben an den Berührungspunkten mit dem Ta-Träger äußerte.

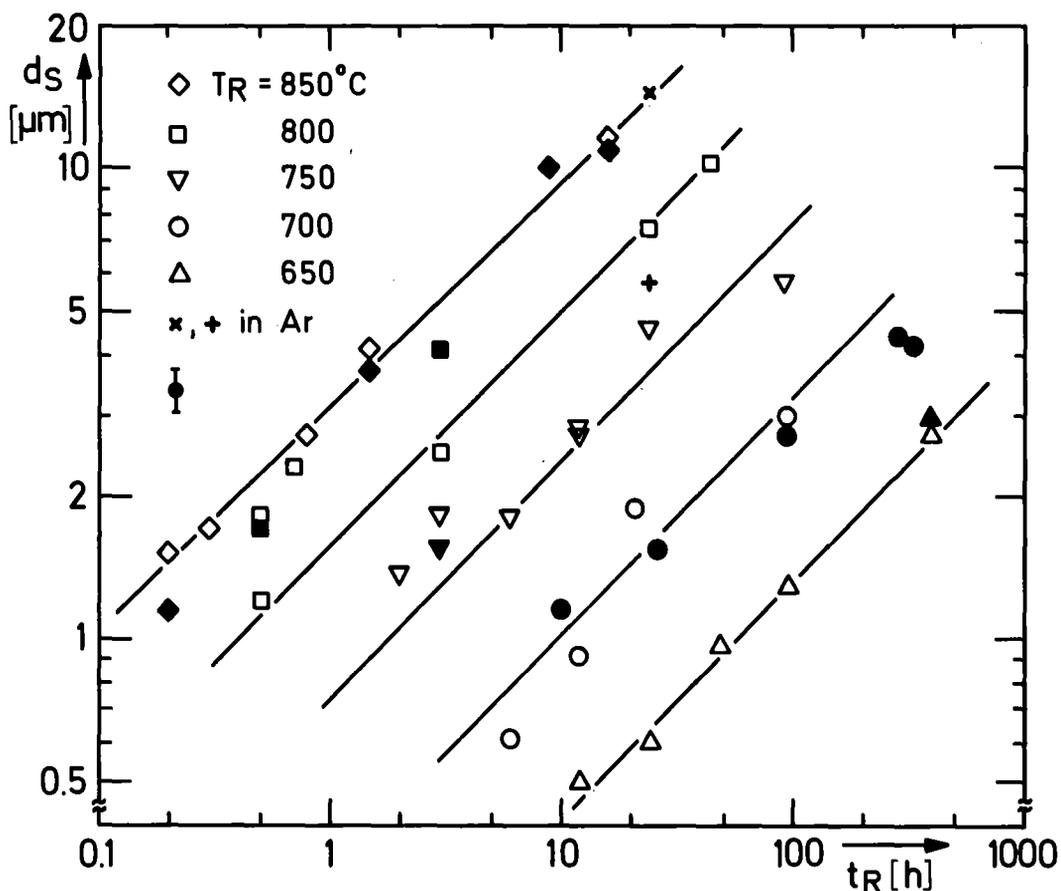


Abb. 2: Zusammenhang zwischen Schichtdicke und Reaktionszeit für 5 Reaktionstemperaturen. Neben den beiden im Vakuum geglühten Drahtchargen NS 38 und NS 41 (leere bzw. volle Symbole) sind auch die in Argon bei 700°C (+) und 750°C (x) reagierten Proben mit eingetragen. Die Geraden entsprechen Gl. (2-1) und (2-2) mit der Aktivierungsenergie nach Abb. 3.

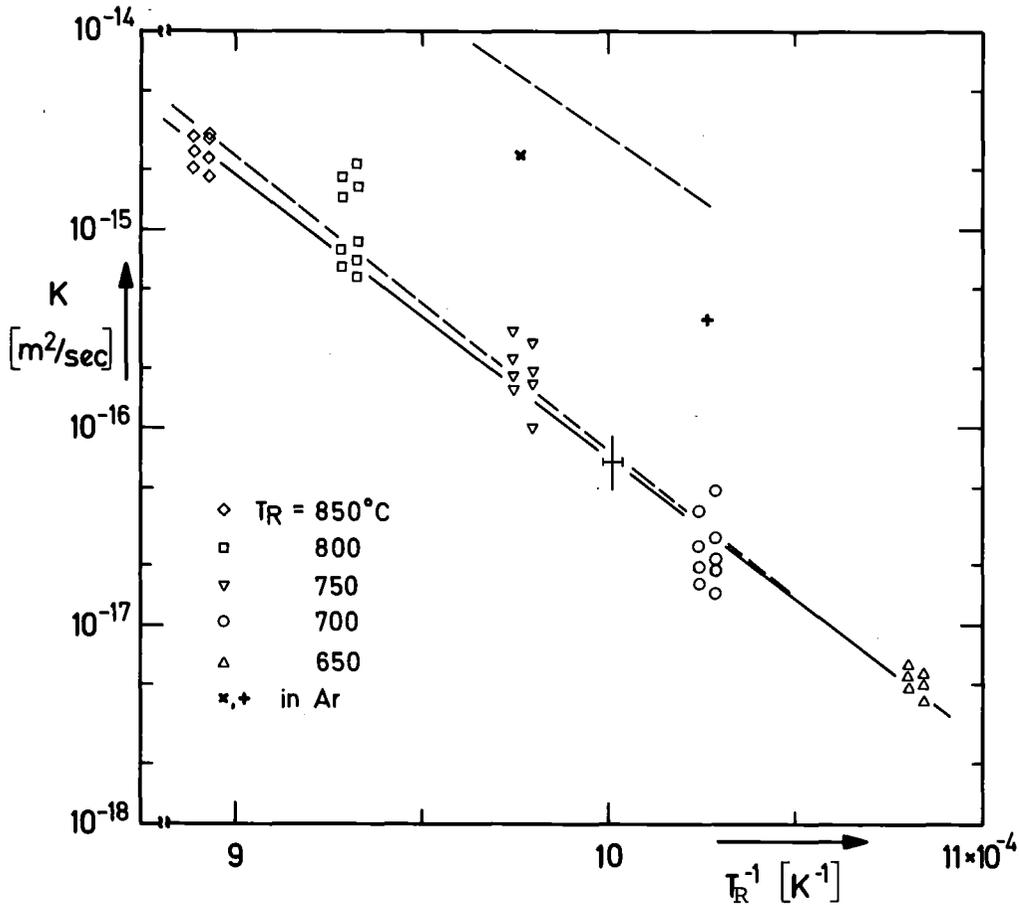


Abb. 3: Diffusionskoeffizienten für Reaktionsglühung im Vakuum (leere Symbole) und Argonatmosphäre (Kreuze) im Arrheniusdiagramm. Die Gerade entspricht einer Aktivierungsenergie von 275 KJ/mol, wobei 4 Punkte bei 800 °C bei niedriger Schichtdicke weggelassen wurden (gestrichelt für alle Punkte $Q \sim 250$ KJ/mol). Das obere Geradenstück entspricht dem im Text aufgeführten Literaturwert²¹⁾, die Meßpunkte bei jeder Reaktionstemperatur wurden der Übersichtlichkeit halber in zwei Gruppen innerhalb der Fehlergrenze aufgespalten.

2.2 Untersuchungen zur Korngrößenverteilung

Die Auflösung des Rasterelektronenmikroskops (SEM) reicht zwar nicht aus, eine vollständige Korngrößenbestimmung durchzuführen. Die größeren Körner ab etwa 400 \AA sind jedoch erkennbar, und es lassen sich mit Hilfe der Röntgenfluoreszenzanalyse Fragen der Schichthomogenität klären⁺. Hierzu wurde an den metallografischen Schliffproben nach Abätzen der CuSn-Matrix eine elektrolytische Politur der Nb₃Sn-Schicht und des Nb-Kerns durchgeführt. Die besten Ergebnisse wurden mit einer 0,05 molaren Mg(ClO₄)₂-Lösung in Methanol und Propanol bei 7 V und $2-3 \cdot 10^3 \text{ A/m}^2$ erzielt. Nach Ablösen der Matrixabdeckung konnte auch die sehr kontrastreiche Grenzfläche der Nb₃Sn-Schicht zur Matrix untersucht werden, wodurch die Deutung der in der polierten Querschnittsfläche sichtbaren Strukturen unterstützt wird. An der Schichtgrenze zur Matrix wurden bei allen Glühtemperaturen mit der Schichtdicke wachsende, übergroße Körner gefunden, die für $d_s > 3 \text{ \mu m}$ auch innerhalb der Schicht auftreten (Abb. 4a und 4b). Mit der Röntgenanalyse konnte kein Unterschied des Nb- oder Sn-Gehaltes zu den feinkörnigen Bereichen festgestellt werden, was die Ergebnisse von Livingston²²⁾ bestätigt.

Die Korngrößenverteilung wurde an einigen Beispielen bestimmt durch Auszählen der Schnittpunkte der Korngrenzen mit einer Geraden. Die Verteilung innerhalb der Schicht scheint, abgesehen vom Matrixrand, homogen zu sein. Es überwiegen gleichachsige Körner; nur in einzelnen Fällen (750 und 800 °C, $d_s > 4 \text{ \mu m}$) wurden am Nb-Rand lange, radial ausgerichtete Körner mit einem Achsenverhältnis bis 1:5 gefunden, bei denen es sich möglicherweise um am Rand geschnittene große Körner handelt.

In Abb. 5 sind für jeweils zwei Schichtdicken die Korngrößenverteilungen bei zwei verschiedenen Reaktionstemperaturen dargestellt. Den Diagrammen liegt eine geometrische Klasseneinteilung nach

⁺) Diese Untersuchungen wurden am Laboratorium für Elektronenmikroskopie der Universität Karlsruhe, Leitung Dr. Albert, zusammen mit Herrn Dipl. Phys. Pfundstein am Stereoscan 180 (Cambridge) durchgeführt.

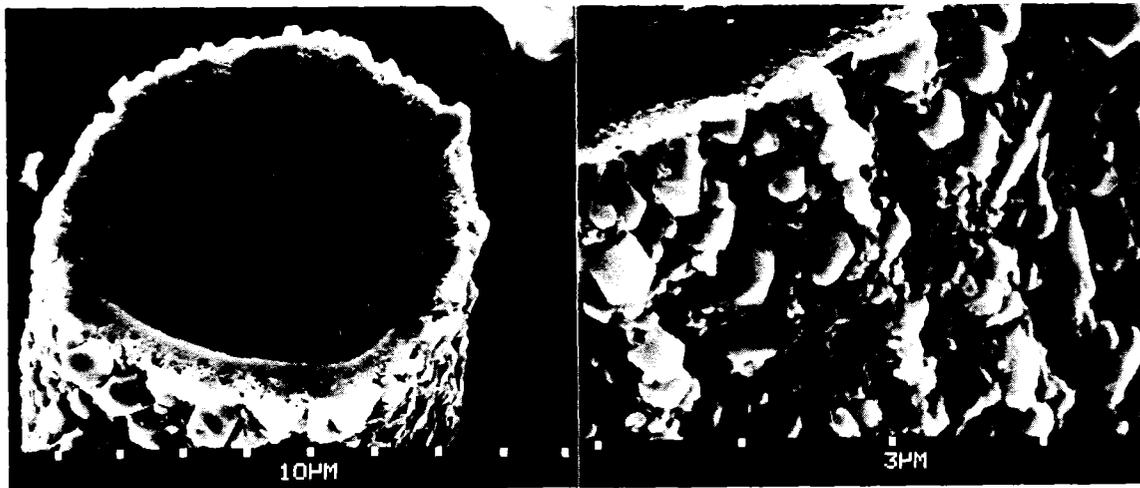


Abb. 4a und 4b: Rasterelektronenmikroskopische Abbildung von Nb-Kern mit Filamentschicht (Oberfläche elektrolitisch poliert, CuSn-Matrix abgeätzt). Links (~800fach) nach Reaktionsglühung 16 h bei 850 °C, rechts 340 h bei 700 °C (~6700fach). Auffallend sind die großen Körner am Rand zur CuSn-Matrix, die sich bei diesen relativ großen Schichtdicken auch im Innern der Schicht finden. Es ist ein Längenmaßstab eingeblendet, wobei der Abstand zweier Punkte 10 bzw. 3 μm beträgt.

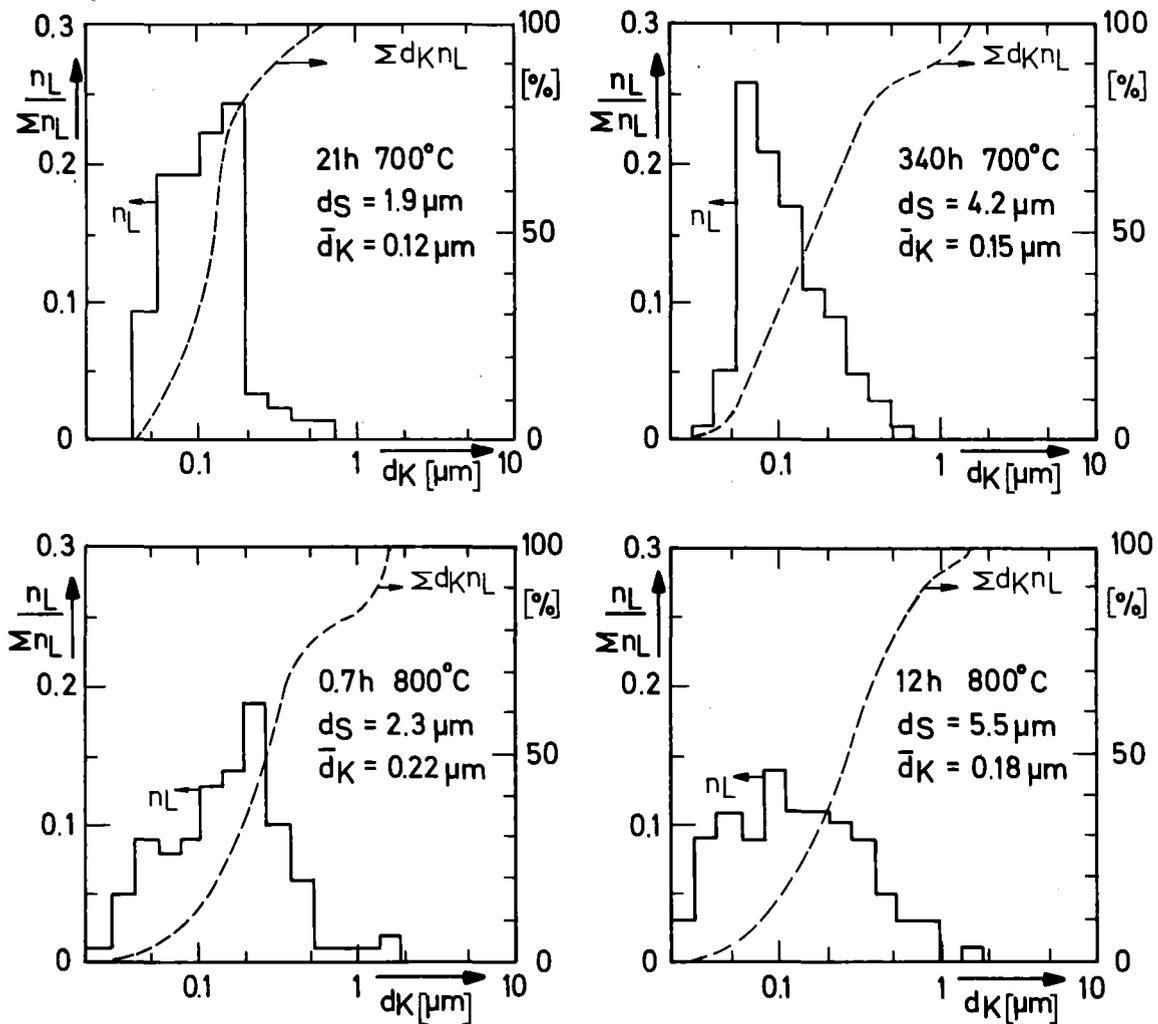


Abb. 5: Normierte Liniendichte von Korngrenzen $n_L/\Sigma n_L$ und Körnergrößenverteilung $\Sigma d_K n_L$ (gestrichelte Linien) mit 7 Größenklassen pro Dekade ($\Sigma n_L > 100$). Es sind die Diagramme für $T_R = 700$ und 800°C bei zwei ähnlichen Schichtdicken $d_S \approx 2$ und $4 - 6 \mu\text{m}$ dargestellt, die sich ergebende mittlere Korngröße \bar{d}_K ist ebenfalls mit angegeben.

Korndurchmessern (je 1/7 Dekade) zugrunde. Dabei wurde eine Wichtung der Flächendichten der Körner in den Bereichen innere Schicht (feinkörnig, homogen) und Schichtrand zur Matrix (große Körner, inhomogen) nach den jeweiligen Anteilen am Gesamtquerschnitt durchgeführt. Für $d_K < 500 \text{ \AA}$ wird die Auflösung zu gering²³⁾; bei den hier hauptsächlich verwendeten Feldern $B \leq 7 \text{ T}$ liefern jedoch kleinere Körner nur einen geringen Beitrag zum Pinning. Denn oberhalb von $B \approx 4 \text{ T}$ nimmt die Volumepinningkraft aufgrund der Eigenschaften des Flußliniengitters bereits wieder ab, und für kleinere Feldstärken ist der Flußlinienabstand $a_0 > 260 \text{ \AA}$, d. h. es liegt eine relativ hohe Konzentration an Pinningzentren vor.

2.3 Abhängigkeit des kritischen Stromes vom Schichtaufbau

Die kritische Stromdichte wird bei Magnetfeldern, die gegenüber B_{c2} klein sind, von der Dichte und Wirksamkeit der Pinningzentren bestimmt. In Nb_3Sn wirken hauptsächlich die Korngrenzen als Pinningzentren für das Flußliniengitter, wobei die zur Lorentzkraft normale Korngrenzenfläche, die der Korngröße umgekehrt proportional ist, die Dichte der Pinningzentren näherungsweise angibt. Bei niedrigen Feldern wird wegen der geringen Flußschlauchdichte nur ein Bruchteil davon wirksam. Eine Abschätzung für die Pinningzentrendichte, bis zu der eine einfache Summation der zugeordneten Einzelhaftkräfte sinnvoll ist, muß die elastischen Eigenschaften des Flußliniengitters und die Größe der Einzelhaftkräfte berücksichtigen. Wenn die Einzelhaftkraft bei unabhängigen Pinningzentren gleich ist, erwartet man Proportionalität zur Pinningzentrendichte²⁴⁾. Dieser Fall ist bei strahleninduzierten Pinningzentren vergleichsweise gut erfüllt (siehe Kap. 5). Beim Korngrenzenpinning ändert sich jedoch mit der Pinningzentrendichte gleichzeitig die Größe des einzelnen Pinningzentrums und damit die Einzelpinningkraft. Man findet daher mit zunehmender reziproker Korngröße anfangs einen linearen Zusammenhang mit der Volumepinningkraft $P_V = j_c \cdot B$ und einen Übergang in die Sättigung, wenn $d_K \approx 40 \text{ nm}$ wird^{23, 25)}. Für einige der untersuchten Leiter zeigt Abb. 6 eine solche Darstellung. Die starke Streuung erklärt sich u. a. daraus, daß die mittlere Korngröße nicht die typischen Merk-

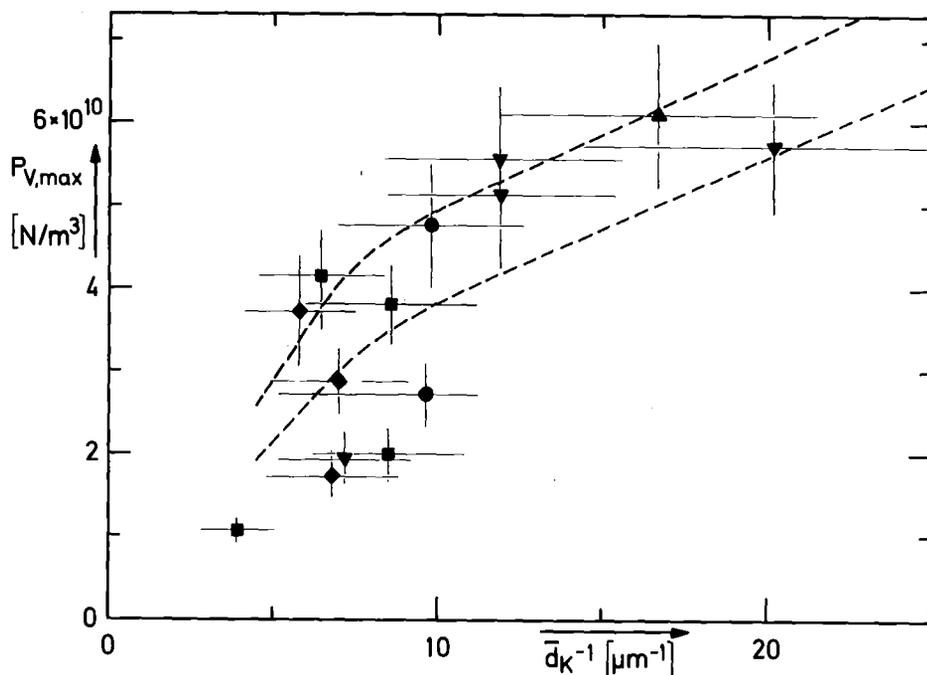


Abb. 6: Maximum der Volumenpinningkraft, aufgetragen über der reziproken mittleren Korngröße. Der gestrichelt angedeutete Bereich gibt die Fehlergrenzen aus den TEM-Messungen von Schelb²³⁾ an Multifilamentleitern wieder. Die nach unten abweichenden Punkte entsprechen jeweils den größten Schichtdicken von 4 - 12 μm . Es wurde eine Korrektur für die übergroßen Körner durchgeführt (siehe Text).

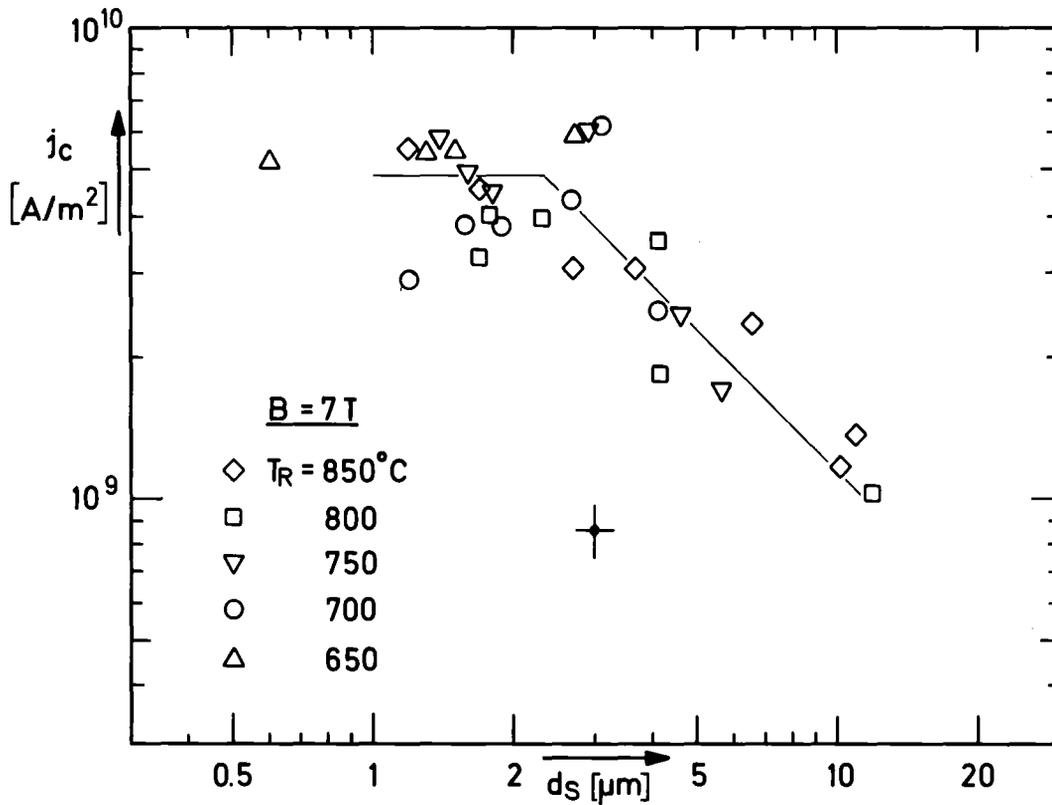


Abb. 7: Abnahme der kritischen Stromdichte j_c für Schichtdicken d_s größer als 2 - 3 μm . Die Gerade entspricht einem linearen Zusammenhang; für kleine Schichtdicken deutet sich Sättigung an. Für das Maximum der Volumenpinningkraft ergibt sich nahezu derselbe Verlauf.

male der Korngrößenverteilung in Abb. 5 beschreibt, sondern die damit verknüpfte Stromdichteverteilung vernachlässigt wird. Die Volumenpinningkraft wurde deswegen in dieser Darstellung nur auf den feinkörnigen Teil der Schicht bezogen (90 % der Anteile $\Sigma n_1 d_k$). Bezogen auf die gesamte Schichtfläche überwiegt ein Absinken von j_c etwa proportional zur Schichtdicke²²⁾ (s. Abb. 7), wahrscheinlich aufgrund des Querschnittsflächenanteils der übergroßen Körner.

2.4 Aussagen der T_c -Messungen zum Zustand der Schicht

Die Übergangstemperatur T_c ist von der langreichweitigen Ordnung S der A15-Struktur empfindlich abhängig. Der aus dem linearen Kettenmodell hergeleitete theoretische Zusammenhang (Index o hier: Maximalwerte):

$$\ln T_c/T_{c0} = q (1-S/S_0) \quad (2-3)$$

hat mehrfache experimentelle Bestätigung gefunden (siehe Abschnitt 4.1). In den vorliegenden Reaktionsschichten begrenzen zunächst die Korngrenzen die Kettenlänge. Daher ist für die gesamte Schicht ein mittleres T_c aus der mittleren Korngröße ableitbar; für die mit der resistiven Methode gemessenen T_c -Werte sind jedoch zusammenhängende schmale Strompfade über die größeren Körner maßgebend. Die entsprechende Konzentration von fehlbesetzten Nb-Plätzen ist $C_D = \frac{a_G}{2} n_L$, mit der mittleren Liniendichte n_L von Korngrenzen in der Grenzfläche zur CuSn-Matrix, da hier die größeren Körner vorkommen. Man sieht in Abb. 8, daß T_c bei einem Korndurchmesser von 1000 Å schon etwa 5 % absinkt (berechnet nach (2-3) mit $q = 5,35$, s. Kap. 4.1).

Eine weitere Absenkung von T_c entsteht wegen der Kompression der SL-Schicht durch die CuSn-Matrix bei Abkühlung des Leiters auf tiefe Temperaturen. Dieser Effekt wurde von verschiedenen Autoren im Hinblick auf seine Auswirkungen auf das obere kritische Feld B_{c2} und die Stromtragfähigkeit untersucht²⁶⁻²⁸⁾. Aus diesen Arbeiten läßt sich eine Absenkung von 1,0 K bei Schichtdicken über 2 µm gegenüber dem Wert bei abgeätzter Matrix erwarten. In Abb. 9

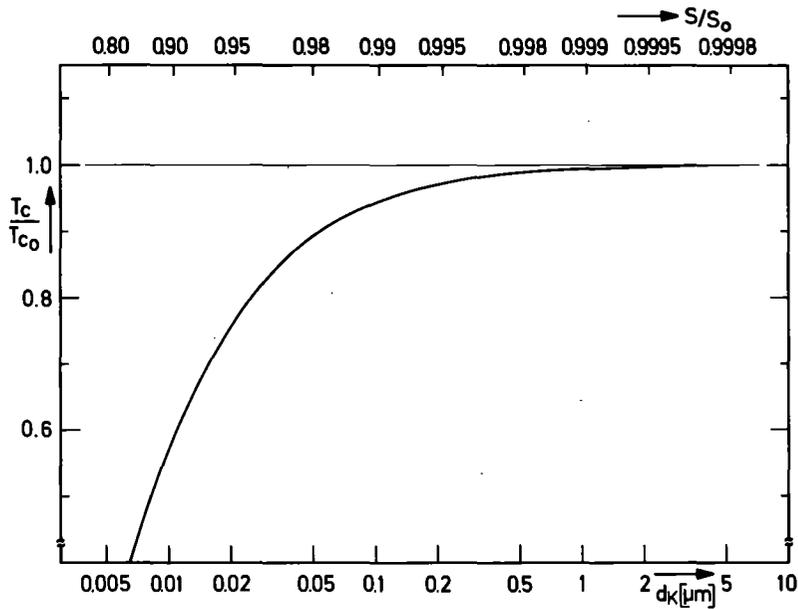


Abb. 8: Berechnete Absenkung der Ordnung S der A15-Struktur durch Unterbrechung der linearen Ketten an den Korngrenzen. Aufgetragen ist die Reduktion von T_c über der Korngröße d_K für den Wert $q = 5,35$ nach Gl. (2-3).

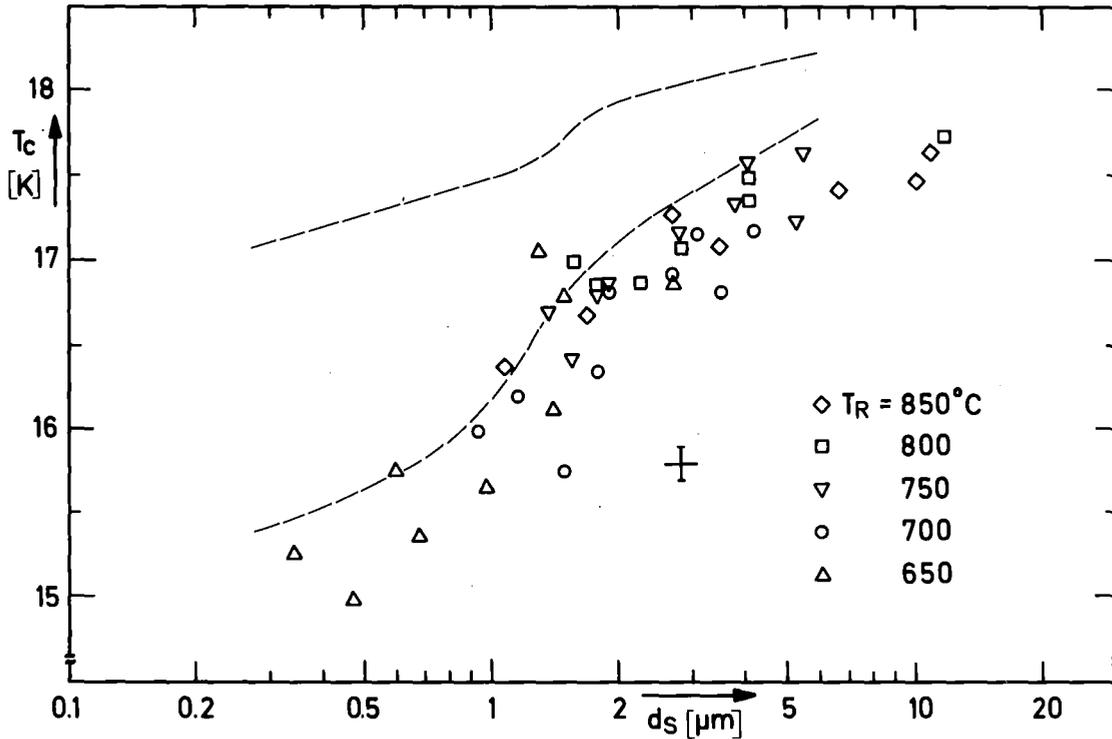


Abb. 9: Die resistiv bestimmte Übergangstemperatur als Funktion der Schichtdicke für 5 Reaktionstemperaturen. Zum Vergleich die Zitat 28) entnommenen gestrichelten Kurven, unten induktiv gemessene Werte (onset) mit Matrix, oben nach Absätzen der Matrix für $T_R = 700^\circ\text{C}$. Die Probengeometrie ist vergleichbar, und es wurde eine leichte Korrektur der gestrichelten Kurven für den abweichenden Drahtdurchmesser vorgenommen.

sind die gemessenen T_c -Werte für die untersuchten Leiter in Abhängigkeit von der Schichtdicke aufgetragen. Der Einfluß der Thermokompression bei $T_R = 700^\circ\text{C}$ ist strichliert angedeutet (nach 28), während der Einfluß der Reaktionstemperatur und der unterschiedlichen Korngröße geringer ist. Dies läßt darauf schließen, daß die ungestörte Kettenlänge durch andere Effekte, wie Unterstöchiometrie und Leerstellenkonzentration (als typisch gilt $C_D \approx 0,01 \hat{=} S = 0,96$) verkürzt ist, da die Absenkung durch hydrostatischen Druck maximal 0,3 K betragen sollte.

Aus diesen Darstellungen kann man entnehmen, daß die hier verwendeten Leiter typische Eigenschaften aufweisen, wie sie auch andere Autoren finden (21-23, 25-28). Dabei hat auch hier die spezielle Probengeometrie und Mikrostruktur einen wesentlichen Einfluß auf das Verhalten des Supraleiters. Im weiteren wird nun untersucht, wie sich diese unterschiedlichen Eigenschaften bei Bestrahlung verändern und wie diese Änderungen beschrieben und verstanden werden können.

3. Bestrahlungsexperimente und Meßergebnisse

3.1 Bestrahlungseinrichtung

An der Heliumbad-Bestrahlungsanlage²⁹⁾ am Karlsruher Zyklotron wurde an jeweils 6 Proben nach Erreichen der gewünschten Dosis von 50 MeV-Deuteronen der kritische Strom im gleichen Kryostaten ausgemessen und anschließend weiter bestrahlt. Die Bestrahlungstemperatur $T_B \approx 18$ K wurde durch Beobachtung des T_C -Übergangs über den Strahlstrom eingestellt. Der Teilchenfluß betrug dabei etwa $\Phi = 1,3 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ und wurde nach Integration zur Festlegung der Dosisschritte benutzt. Die Gesamtdosis wurde nachträglich korrigiert (Abschnitt 3.3), wenn die durch sorgfältige Fokussierung und Ausblendung eines Strahlflecks von 6,5 mm \varnothing erzielte Homogenität der Bestrahlung es erforderte. Bei diesem Verfahren betrug die Transmission 40 - 50 %, und die Aufnahmekapazität der He-Gas-Rückgewinnung von 90 m³/h wurde voll ausgenützt. Der Vorteil der kontinuierlichen Bestrahlung gegenüber einem zeilenweisen Beschreiben mit schärfer fokussiertem Strahl liegt in einer Vereinfachung der bei diesen hohen Energien nicht unproblematischen Kontrolle von Strahlführung und Fokussierung. Dadurch wird eine starke örtliche Temperaturerhöhung sicher vermieden, und man erreicht günstige Kühlbedingungen im Heliumbad.

3.2 Probenaufbau und Meßmethoden

Um eine ausreichende Zahl von Proben zu erhalten, wurde der für Ströme bis 1000 A bewährte Probenaufbau³⁰⁾ so abgewandelt, daß gleichzeitig 6 kontaktierte I_C -Proben und weitere 16 unkontaktierte, an Zugdrähten aus dem Strahlbereich ausfahrbare Proben je Bestrahlungsexperiment zur Verfügung standen. Während die unkontaktierten Proben bei Raumtemperatur bis zur weiteren Ausmessung (T_C , Aktivierung) gelagert wurden, konnten die kontaktierten Proben nach jedem Bestrahlungsschritt ohne Aufwärmen in dem unterhalb der Strahlfenster montierten 7,5 T Magnet ausgemessen werden. Die freie Probenlänge betrug 4,5 ... 6,5 mm, der Abstand der Spannungsabgriffe 2 mm (1 $\mu\text{V/cm}$ I_C -Kriterium) und die Lötlänge zur Stromeinspeisung ≈ 10 mm (Indium). Der Abstand der parallel in

der Strahlfleckebene angeordneten Proben betrug ca. 0,8 mm. Die Ströme blieben unter 50 A und die maximalen Kräfte lagen bei 0,05 N/mm. Die Proben waren durch einen Stromshunt geschützt, der einen Teilstrom von anfangs 2 % und nach Bestrahlung bis zu 50 % des kritischen Stromes verursachte. Dieser Einfluß wurde durch Messung der Shuntspannung jeweils korrigiert. Der erhöhte Einspeisungswiderstand entsteht bei einem Anstieg von j_c , da dann der gesamte Strom auf dem etwa 0,8 mm langen bestrahlten Teil des Stromanschlusses eintritt. Ebenfalls kann eine zu schlechte Homogenität des Strahlflecks einen Nebenstrom bewirken. Messungen an mehreren verteilten Spannungsabgriffen zeigten jedoch, daß dieser Effekt nicht zu einer Verfälschung der I_c -Werte führt. Der Probeneinsatz ist in Abb. 10a von der Strahleintrittsseite gezeigt und wird relativ zu der im Probenträger befindlichen Cu-Blende justiert (Abb. 10b).

Den für T_c -Messungen benutzten Probenaufbau zeigt Abb. 11. Die nach der Bestrahlung mit je 8 Spannungsabgriffen von 1 mm Abstand versehenen 6 Proben werden in einem Verdampferkryostat gleichzeitig ausgemessen (resistiv, Meßstrom 100 mA). Die angegebenen T_c -Werte entsprechen einem Anstieg auf 50 % des Restwiderstands R_N bei 19 K. Die Breite der Übergangskurven (zwischen 10 % und 90 % R_N) betrug vor Bestrahlung 0,4 ... 0,7 K ($T_c > 16$ K) und war nach Bestrahlung nur bei inhomogener Dosisverteilung vergrößert (siehe Abschn. 3.4). Der Fehler, der durch Ausheilung bei Raumtemperatur bzw. Einlöten der Proben entsteht, wird aus früheren Experimenten²⁰⁾, in denen die Ausheilung von T_c im Bestrahlungskryostaten ausgemessen wurde, auf $\lesssim 0,4$ K geschätzt.

Bei den kritischen Strommessungen dagegen ist die Ausheilung nicht vernachlässigbar¹³⁾ und wurde an einigen Proben bei LN_2 - und Raumtemperatur, jeweils 1h, ausgemessen. Die Ausheilung führt immer zu einer Erhöhung (1 - 3 % von j_{c0}) des nach Bestrahlung erreichten j_c -wertes und ist gegenüber dem Bestrahlungseffekt sehr gering. Auch bei den nachträglich in einem 13-T-Magnet durchgeführten I_c -Messungen zur B_{c2} -Extrapolation (Anhang III) liegt diese Ausheilung vor.

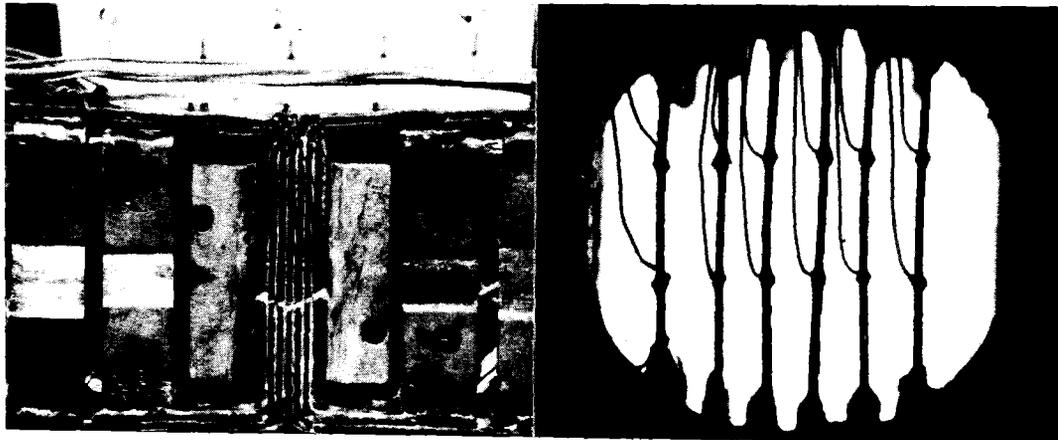


Abb. 10a und 10b: Probenhalter für Bestrahlung und I_C -Messung an 6 Proben. Links sind die Stromkontaktierung und Schutzwiderstände zu erkennen (ca. 1,25fach), rechts gesehen durch die Cu-Blende in Strahlrichtung (ca. 17fach) nach dem Zusammenbau.

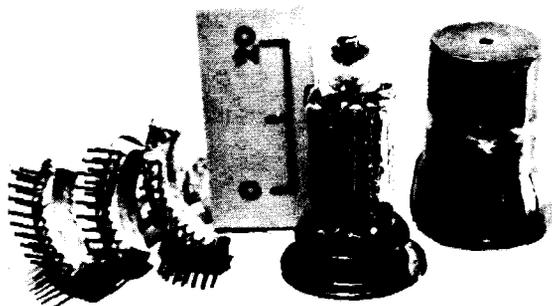


Abb. 11: Probenträger für T_C -Messungen im Verdampferkryostat zur gleichzeitigen Aufnahme der $R(T)$ -Kurven an 6 Proben mit je 8 Spannungsabgriffen.

3.3 Bestimmung der Bestrahlungsdosis

Die Ergebnisse der T_c -Messungen (siehe Abschn. 3.4) zeigten, daß eine genauere Bestimmung der Bestrahlungsdosis notwendig wurde. Hierzu wurden Autoradiografien³¹⁾ der Probendrättchen angefertigt und zur Eichung der Schwärzungskurve an einer Probe je Probensatz die Gesamtaktivierung durch Bestimmung der γ -Aktivität des Isotops Zn 65 durchgeführt⁺), das nach



in der Cu-Sn-Matrix entsteht und durch Elektroneneinfang mit einer Halbwertszeit von 244 d zerfällt.

Die Radiografien wurden selbst angefertigt, wobei der Abstand der Proben zum Film (ca. 90 μm) durch Zwischenlage einer Kaptonfolie in einer starren Halterung eingestellt wurde und gleiche Entwicklungsbedingungen durch gemeinsame Verarbeitung sichergestellt wurden. Nach mehreren Verbesserungen der Radiografiebedingungen konnten die Koeffizienten der die Aktivierung A und Schwärzung D (logarithmische optische Dichte) verknüpfenden Gleichung ermittelt werden:

$$D = \eta A t_B^{\kappa}; \quad \kappa(D) = \frac{\ln D - \beta'}{\ln t_B + \alpha'} \quad (3-1)$$

wobei der Exponent κ von der Schwärzung abhängig ist. Die Konstanten α' und β' wurden aus 32 Proben bei je 4 Belichtungszeiten t_B bestimmt. Der Koeffizient η ist abhängig von der Abklingzeit, und es wurde der für jedes Experiment aus der γ -Aktivitätsmessung bestimmte Koeffizient benutzt. Es zeigte sich, daß η mit einer Halbwertszeit von $T_{1/2} = 100$ d abklingt. Dieser Wert entspricht gerade dem Verhältnis der Isotope Zn 65 und Co 58 ($T_{1/2}$ (Zn 65/Co 58) = 99,7 d), die nach einigen 100 Tagen die stärksten Aktivitäten sind. Weitere Angaben sind in Anhang IV zu finden.

⁺) Die γ -Aktivitätsmessung wurde von der Analytischen Gruppe des Instituts für Radiochemie, Kernforschungszentrum Karlsruhe, durchgeführt.

Dort wird auch gezeigt, daß eine dritte Komponente, vermutlich Zr 88, zur Schwärzung beiträgt. Die Effektivität der β - und γ -Strahlung der aktivierten Proben für die Schwärzung der Fotoemulsion ist also vom Isotopengemisch abhängig, welches sich jedoch mit der Abklingzeit ändert. Unter solch schwierigen Radiografiebedingungen ist ein unabhängiger Test der Ergebnisse erforderlich. Dieser wird durch die T_c -Messungen in 1 mm-Intervallen mit der Bestätigung des Zusammenhangs (2-3) geliefert (siehe Abschn. 3.4 und 4.1, Meßwerte in Abb. 17). Der Schwärzungsverlauf wurde schließlich mit einem Mikrophotometer über die bestrahlte Probenlänge ausgemessen und zur Bestimmung von Maximaldosis und Homogenität verwendet. Die Integration über den Strahlfleck ermöglicht den Vergleich mit dem experimentell bestimmten Gesamtfluß. In Anhang IV finden sich noch einige Angaben hierzu.

3.4 Überblick über die T_c -Meßergebnisse

Trägt man die Meßwerte normiert auf den Wert vor Bestrahlung auf in Abhängigkeit vom Fluß Φt , so erhält man einen Überblick über den Bestrahlungseffekt.

Für die normierten T_c -Meßwerte ergibt sich eine gemeinsame Abhängigkeit von der Dosis; ein Einfluß der Probenparameter ist innerhalb der Meßgenauigkeit nicht feststellbar (siehe Abb. 12). Dieses Ergebnis wurde auch von anderen Autoren sogar für verschiedene A15-Supraleiter³²⁾ und verschiedene Teilchenbestrahlungen³³⁾ gefunden, wenn die Dosis als Energieübertrag pro Atom angegeben wird¹⁰⁾. Damit stellen die T_c -Messungen eine wichtige Stütze für die durchgeführten Korrekturen des Bestrahlungsflusses dar. So sind in Abb. 12 neben den T_c -Werten zur maximalen Dosis je Probe auch einige Punkte mit örtlich variierender Dosis eingetragen (volle Symbole), die sich ergänzend zwanglos einfügen.

Weiter wurde eine gute Übereinstimmung der nach Gl. (2-3) und 1-5) aus dem Bestrahlungsfluß nach Radiografiemessungen berechneten T_c/T_{c0} -Werte mit den Meßwerten in 1 mm Intervallen

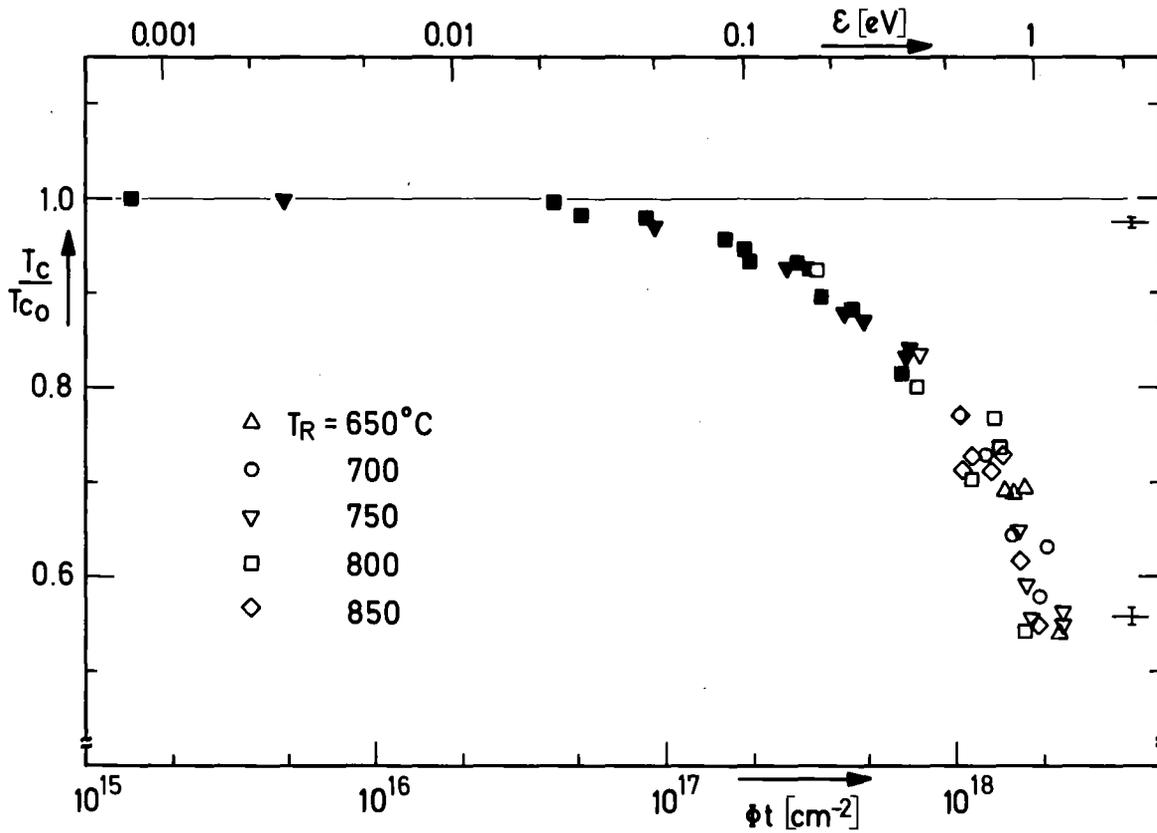


Abb. 12: Bestrahlungseffekt für T_c , normiert auf den Wert vor Bestrahlung, für 5 Reaktionstemperaturen und unterschiedliche Schichtdicken (jeweils nach maximaler Dosis, leere Symbole) sowie an 3 Proben bei örtlich variierender Dosis (volle Symbole). Innerhalb des Meßfehlers ist der Effekt für alle Proben gleich; die obere Skala gibt den Energieübertrag durch Verlagerungsstöße in eV pro Gitteratom an.

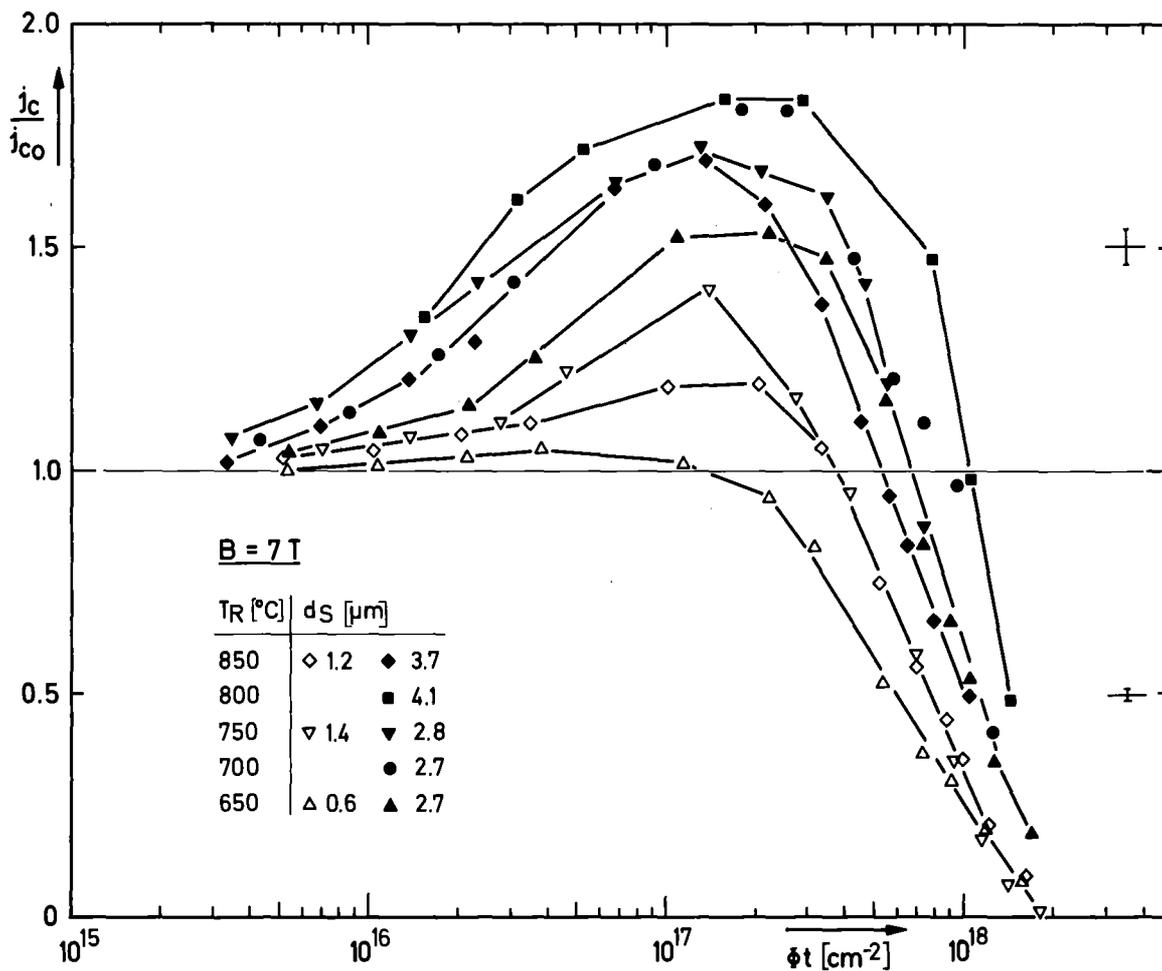


Abb. 13: Bestrahlungseffekt für j_c , normiert auf den Wert vor Bestrahlung, für 5 Reaktionstemperaturen bei mittleren bis kleinen Schichtdicken (volle bzw. leere Symbole). Die Verbindungslinien sollen den Verlauf verdeutlichen.

über die bestrahlte Drahtlänge gefunden. Dabei wurde q als Anpassungsparameter aufgefaßt (Fitwerte für die jeweilige Probe siehe Anhang I Tab. 2) und $S_o = 1$ gesetzt. (Index o bedeutet hier: unbestrahlt, siehe auch Abb. 17 in 4.1.)

Die Breite der T_c -Übergangskurven (siehe Abschn. 3.2) nach Bestrahlung ist im Plateaubereich der Dosiskurven (siehe Abb. A3) wenig verbreitert³²⁾, z. B. ΔT (10 % - 90 % R_N) = 0,8 K bei $T_c = 10$ K. Dagegen finden sich im Randbereich des Strahlflecks Übergangsbreiten von etwa 2 K und mehr, weil die Bestrahlungsdosis innerhalb des 1 mm Intervalls variiert.

3.5 Die kritische Stromdichte bei Bestrahlung für variierende Reaktionsparameter

Im Gegensatz zur Übergangstemperatur findet man für die kritische Stromdichte j_c eine starke systematische Abhängigkeit des Bestrahlungsverlaufs von den Probenparametern. Die auf den Wert vor Bestrahlung, j_{c0} , normierten Stromdichten sind in Abb. 13 über dem Bestrahlungsfluß aufgetragen für mittlere und geringe Schichtdicken (volle und leere Symbole). Dabei ist die Variation mit der Schichtdicke stärker als mit der Reaktionstemperatur ausgeprägt, bei der geringsten Schichtdicke beträgt die maximale Erhöhung etwa 5 %, während bei mittleren Schichtdicken 50 - 80 % von j_{c0} erreicht werden. Bei noch größeren Schichtdicken wird ein Faktor 6,5 bei $B = 7$ T erreicht, in Abb. 14 sind dafür drei Beispiele gezeigt. Bei der hier gewählten logarithmischen Auftragung von j_c sieht man auch deutlich, daß die starken Erhöhungen von j_c durch Bestrahlung nur bei Proben mit niedrigem Ausgangswert auftreten und die Kurven für unterschiedliche Reaktionsparameter vor allem in der Nähe des Maximums und im abfallenden Teil sehr ähnlich sind.

Abweichungen vom allgemeinen Kurvenverlauf treten nur bei großen Schichtdicken vor Erreichen des Maximums auf, die vermutlich auf dem einsetzenden Beitrag der übergroßen Körner beruhen. Der gleiche Effekt ist in Abb. 16 (s. u.), dort als Funktion der Schichtdicke, zu sehen. Nach dieser Interpretation hätte man für

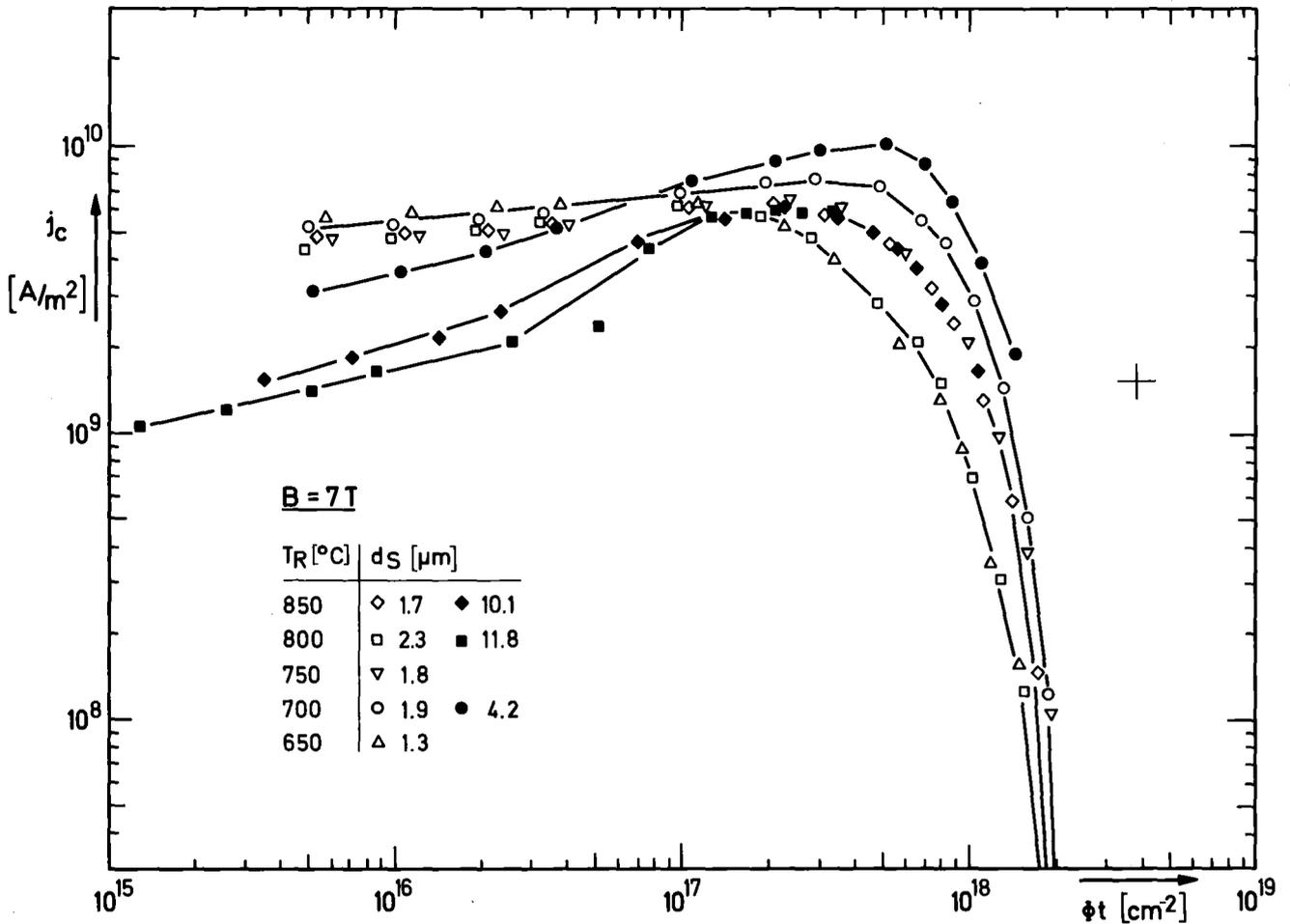


Abb. 14: Kritische Stromdichte j_c als Funktion der Bestrahlung. Bei den kleineren Schichtdicken (leere Symbole) treten Unterschiede zwischen den Reaktionstemperaturen nur an der Schwelle zur Schädigung hervor, dagegen weicht bei den größeren Schichtdicken vor allem der Niederdosisebereich ab.

$\Phi t \lesssim 3 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-2}$ die Querschnittsfläche der großen Körner von der Schichtfläche abzuziehen, um das Verhalten einer homogen aufgebauten Probe näherungsweise darzustellen. Die Stromdichte im feinkörnigen Teil der Supraleiterschicht wäre etwa um den Betrag der Stufenhöhe größer.

In Abb. 15 und 16 ist die maximale durch Bestrahlung erreichte kritische Stromdichte, einmal absolut und zum anderen normiert, bei zwei Feldern $B = 2$ und 7 T in Abhängigkeit von der Schichtdicke aufgetragen. Da der jeweils maximale Wert der Stromdichte innerhalb eines Streubereichs für alle Proben gleich ist (Abb. 15), bedeutet der funktionelle Anstieg für die normierte Stromdichte (Abb. 16), daß es für ein bestimmtes Feld B eine optimale Stromdichte gibt. Diese wird für niedrige Schichtdicken durch den Glühprozeß realisiert und kann bei großen Schichtdicken durch Bestrahlung erreicht werden. Zur Verdeutlichung dieser Aussage wurden wegen der Streuung der Meßwerte die Mittelwerte in Abb. 15 und in Abb. 16 die Anpassungsgeraden für $d_s < 4 \text{ }\mu\text{m}$ eingezeichnet; die starken Abweichungen bei großen Schichtdicken werden, wie eben erwähnt, vermutlich durch große Körner ($d_k > 0,5 \text{ }\mu\text{m}$) hervorgerufen.

Zu den Darstellungen in diesem Abschnitt ist noch zu sagen, daß die hier zur Charakterisierung der Proben verwendeten Parameter Reaktionstemperatur und Schichtdicke natürlich erst über die zugehörige Mikrostruktur (Korngrößenverteilungen) und die intrinsischen Parameter B_{c2} und κ zu den beobachteten Änderungen der kritischen Stromdichten führen (siehe Abb. 21 in Abschn. 5.2). Die entsprechenden Meßwerte sind jedoch weniger sicher oder müßten fremden Arbeiten entnommen werden. Dagegen konnte die Schichtdicke experimentell gut bestimmt werden und eignet sich zur Gliederung der Kurvendarstellungen vor allem wegen des in Abb. 16 gezeigten Zusammenhangs mit dem Bestrahlungseffekt.

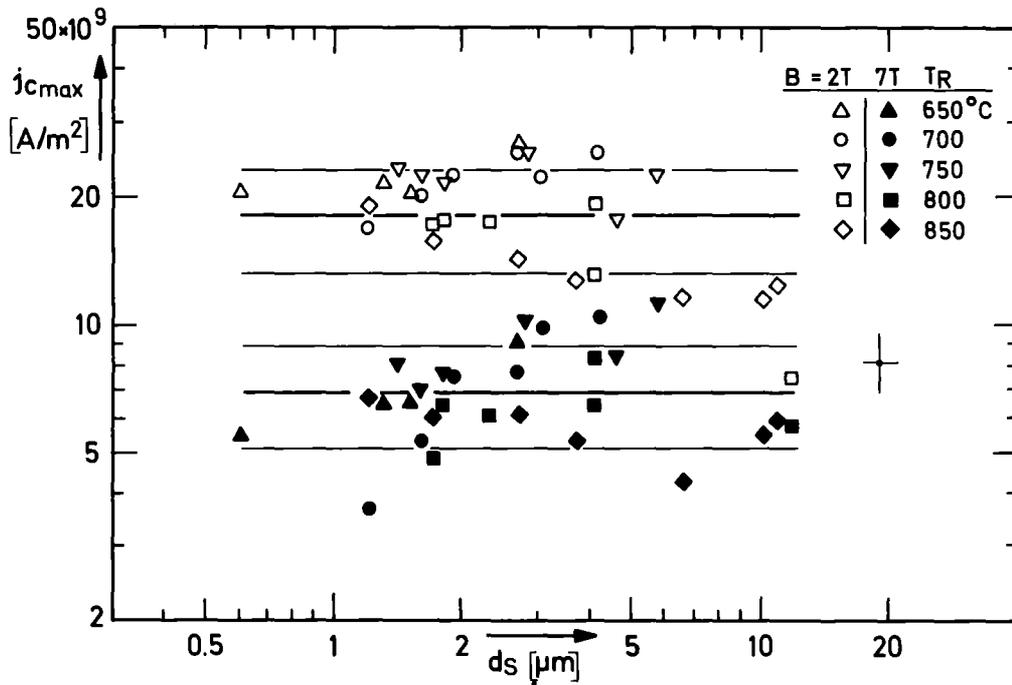


Abb. 15: Die während der Bestrahlung erreichte maximale Stromdichte für verschiedene Reaktionstemperaturen als Funktion der Schichtdicke bei zwei Feldern $B = 2$ und 7 T (leere bzw. volle Symbole). Bei $T_R > 750$ °C liegen die Stromdichten im allgemeinen etwas niedriger, aber eine signifikante Abhängigkeit von den Reaktionsparametern fehlt. Deshalb ist für beide Felder der Mittelwert mit Streubereich (ca. ± 27 %, dünne Geraden) eingezeichnet.

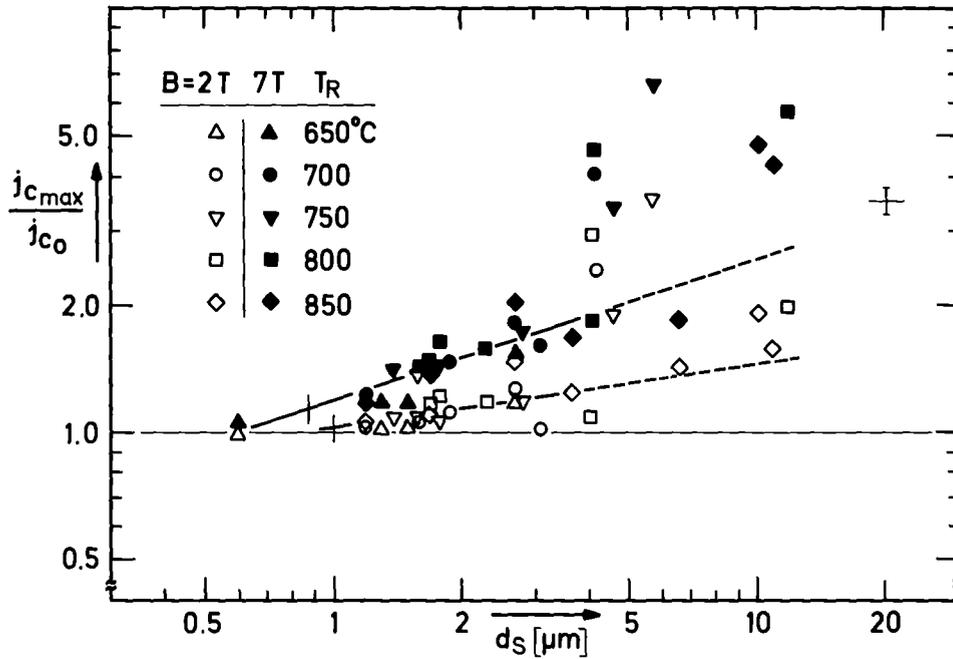


Abb. 16: Die maximale während der Bestrahlung erreichte kritische Stromdichte, normiert auf den Wert vor Bestrahlung, für verschiedene Reaktionstemperaturen bei zwei Feldern $B = 2$ und 7 T (leere bzw. volle Symbole) in Abhängigkeit von der Schichtdicke d_s . Für $d_s < 4 \mu\text{m}$ wurde eine Ausgleichsgerade angepaßt (Standardschätzfehler $\pm 8 \%$), wegen der Abweichungen bei größeren Schichtdicken siehe Text.

4. Auswirkungen der Strahlenschädigung der A15-Struktur

4.1 Gleichwertigkeit der unterschiedlich erzeugten Ordnungsstörungen

Die Wirkung der Schädigung der A15-Struktur durch Störung der Ordnung S bei Bestrahlung ist unabhängig von den sonstigen Probenparametern (Abb. 12). Auch die starke Druckabhängigkeit von T_c (siehe Abschnitt 2.4) hat nur geringen Einfluß auf die Abhängigkeit von der Bestrahlung. Diese Druckabhängigkeit wird vermutlich durch die martensitische Transformation³⁴⁾ bei $T \approx 45$ K hervorgerufen, wobei der Volumenanteil an tetragonal verzerrtem Nb_3Sn vom anliegenden Druck abhängt (hervorgerufen durch die unterschiedliche Wärmeausdehnung beim Abkühlen von CuSn-Matrix und Nb-Kern). Unterhalb von T_c wachsen die transformierten Bereiche dann nicht mehr³⁵⁾, wobei der Wert von T_c noch von anderen Faktoren wie Stöchiometrie oder Störung der Ordnung an den Korngrenzen beeinflusst wird.

Man kann nun annehmen, daß sich die Absenkung von T_c vor Bestrahlung durch eine reduzierte Ordnung $S_0 < 1$ beschreiben läßt, da die Verzerrung des kubischen Kristallgitters ($\sim 0,6$ %) zu Unregelmäßigkeiten in der Kettenanordnung der Nb-Atome führt und die Grenzen zwischen kubischer und tetragonaler Phase jeweils als Störung erscheinen. Ähnliche Vermutungen einer gemeinsamen Ursache für die bei unterschiedlichen Einflüssen abgesenkte Übergangstemperatur wurden auch von anderen Autoren^{36, 37)} geäußert.

Eine reduzierte Ordnung $S < 1$ führt jedenfalls zu einer Verschmierung des Peaks der Zustandsdichte N an der Fermikante und zu einer Erhöhung der Fermienergie. Man kann dann unter gewissen Annahmen T_c theoretisch bestimmen, z. B. Appel³⁸⁾ aus der McMillan-Formel³⁹⁾ mit ordnungsabhängigem Elektron-Phonon-Kopplungsparameter λ :

$$\lambda = \lambda_0 \frac{S+3}{4} \frac{N(S)}{N(1)},$$

oder Fähnle und Kronmüller⁴⁰⁾ durch numerische Lösung der Gapgleichung. Beide Methoden benötigen numerische Werte aus weiteren Ex-

perimenten (Debyetemperatur, spezifische Wärme als Funktion der Ordnung S). Für geringe Störung der Ordnung, z. B. $0,8 < S < 1$ entsprechend $\phi t < 5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-2}$, variiert λ jedoch nur schwach mit S . In diesem Fall reicht eine lineare Näherung völlig aus, und damit folgt über die T_c -Formel von McMillan ein linearer Zusammenhang zwischen S und $\ln T_c$, wie er durch Gl. (2-3) dargestellt ist. Pande¹⁸⁾ geht einen ähnlichen Weg, berücksichtigt jedoch durch eine Mittelung von λ auch eine Konzentration der Defekte in gestörten Zonen. Es ergibt sich eine leichte Abweichung von der Linearität entsprechend in Gl. (2-3) $7,9 < q \leq 9,1$ für $0,8 < S \leq 1$, jedoch liefern homogene und inhomogene Defektverteilungen in diesem Fall dasselbe Ergebnis.⁴¹⁾

In Abb. 17 ist deshalb $\ln T_c$ aufgetragen über der durch Bestrahlung erzeugten Störung der Ordnung S (nach (1-5) mit $k = \sigma \bar{v}' = 3,9 \cdot 10^{-20} \text{ cm}^2$). An einigen Beispielen ist gezeigt, wie aus den Meßpunkten durch linearen Fit für jede Probe eine Steigung q_i ermittelt wurde (siehe Tab. 2, Anhang I). Der Mittelwert für 28 Proben beträgt $q = 7,1 \pm 0,9$ und wurde zusätzlich mit einem angenommenen maximalen $T_{cm} = 18,3 \text{ K}$ eingezeichnet (dicke Gerade, Streubereich gestrichelt). Dieser Verlauf wird also für eine Probe mit idealem T_c erwartet.

Man kann weiter die oben besprochene durch den Herstellungsprozeß hervorgerufene reduzierte Ordnung S_0 (vor Bestrahlung) durch Extrapolation des Bestrahlungsverlaufs zu diesem idealen T_c -Wert bestimmen. Die gemessenen T_c -Werte würden dann hervorgerufen durch die Summe der beiden Störungen: $S_{\text{gesamt}} = S + S_0 - 1$. Allerdings stört die Streuung der Steigung, die zum Teil eine Folge des Meßfehlers für die Bestrahlungsdosis ($\pm 13 \%$) ist. Ebenso ist die Berechnung von S nach (1-5) nur eine Näherung, da die Defektkinetik sicher auch vom Zustand der Proben vor Bestrahlung abhängt und hier nur pauschal durch E_d und E_r berücksichtigt wurde. Deshalb eignet sich die experimentell bestimmbare Größe S_0 nicht besser zur Charakterisierung des Ordnungszustands der Probe vor Bestrahlung als z. B. T_{co} .

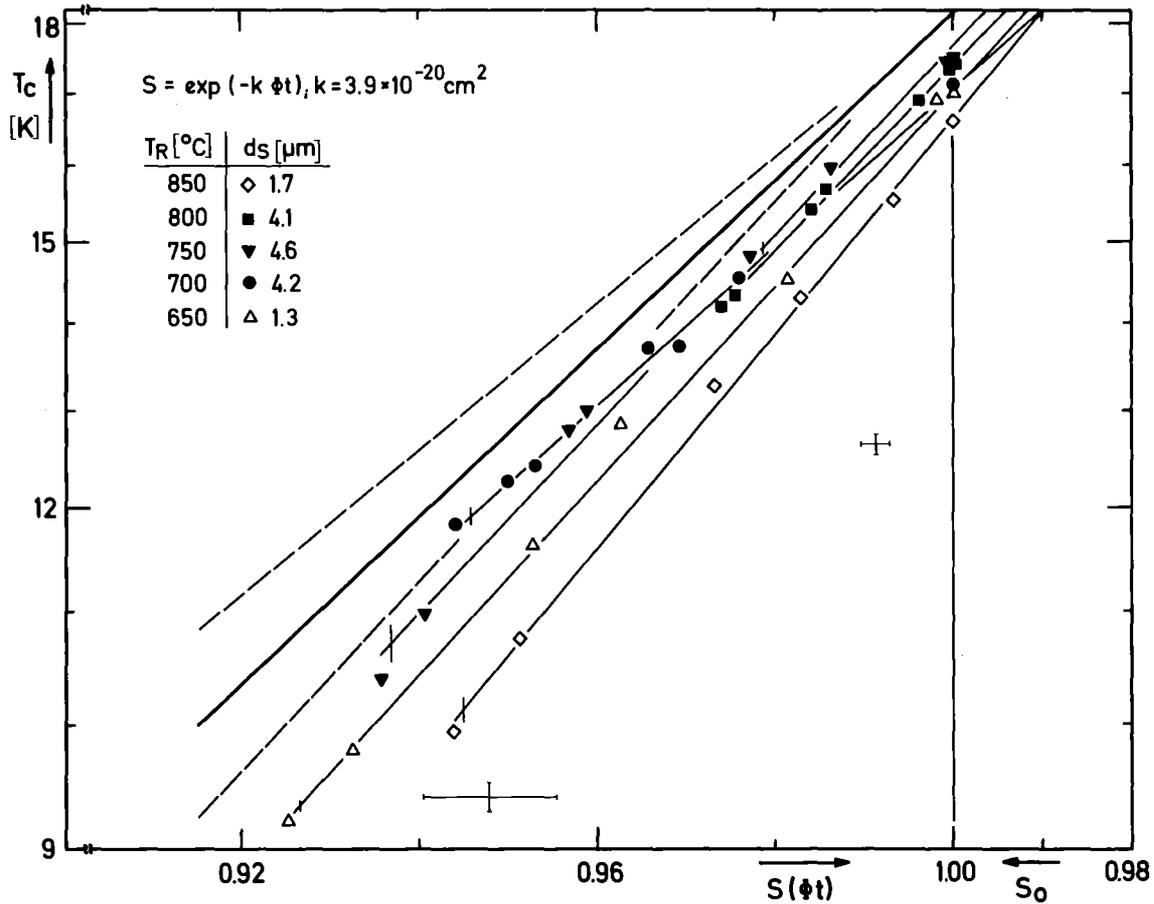


Abb. 17: Logarithmus der Übergangstemperatur $T_C = T(0,5 \cdot R_N)$ als Funktion der durch Bestrahlung verminderten Ordnung S der A15-Struktur. S_0 ist die Ordnung vor Bestrahlung aus der Extrapolation auf einen Idealwert $T_{cm} = 18,3 \text{ K}$ (siehe Text). Der Standardschätzfehler für die Geraden sowie stellvertretend zwei Meßfehlerangaben sind mit eingetragen. Die dick eingezeichnete Gerade gibt die mittlere Steigung $\bar{q} = 7,1 \pm 0,9$ sowie den Streubereich (gestrichelt) an.

4.2 Schädigung von B_{c2} und Volumenpinningkraft

Die Pinningkräfte in einem homogen geschädigten Supraleiter hängen von der Energiedifferenz ab, die für den Flußschlauchkern im Hindernis und im homogenen Teil bestehen. Diese wird bestimmt durch das kritische Feld H_c bzw. bei gering gestörtem κ von B_{c2} . Da die Volumenpinningkraft durch ein Skalengesetz⁸⁾ beschrieben wird,

$$P_V = c B_{c2}^m \kappa^{-n} f(b = B/B_{c2}), \quad n \sim 2, \quad m \sim 2,5, \quad (4-1)$$

ist jeweils die maximale Volumenpinningkraft zu betrachten; die Abhängigkeit von B bleibt bis auf die lineare Streckung der Funktion $f(b)$ gleich. Werden die durch Bestrahlung entstehenden Pinningzentren also nicht berücksichtigt, so erwartet man eine Erniedrigung des Maximums von P_V und eine Verschiebung nach kleineren B -Werten durch die Absenkung von B_{c2} .

Ergänzend zu den an einigen Proben vorliegenden B_{c2} -Meßwerten nach maximalem Bestrahlungsfluß (siehe Anhang III) könnte man weitere Werte nach dem Zusammenhang

$$B_{c2}(\Phi t) = 0,7 T_c(\Phi t) \cdot (-dB_{c2}/dT)_{T_c} \quad (4-2)$$

bestimmen aus dem Anstieg dB_{c2}/dT in der Nähe von T_c . Da jedoch bei den vorliegenden inhomogen aufgebauten Proben T_c und j_c in verschiedenen Bereichen der Schicht gemessen werden, wurde hierauf verzichtet.

Statt dessen wird eine theoretische Abhängigkeit von T_c und B_{c2} von der Defektkonzentration bei Bestrahlung benutzt, die durch eigene B_{c2} -Meßwerte bei 4,2 K (s. Tab. 2 im Anhang I sowie Anhang III) gestützt wird. Dabei wird eine monotone Absenkung von B_{c2} durch Bestrahlung vorausgesetzt⁴²⁾, so daß sich B_{c2} bis $\Phi t \leq 0,5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-2}$ nur wenig (< 17 %) ändert. Eine Erhöhung von B_{c2} bei steigender Defektkonzentration, verbunden mit einer Erhöhung des Restwiderstands, wurde zwar an dünnen Schichten beobachtet⁴³⁾ und auch bei Neutronenbestrahlung von Nb_3Sn -Draht-

proben als Ursache des Anstiegs von j_c angenommen^{44, 6)}, jedoch tritt dieser Fall sicher nur bei sehr reinen Proben auf.

Hier wird der bei Fähnle⁴⁰⁾ berechnete Verlauf von B_{c2} und T_c benutzt, der im Anhang III (Abb. 12) zusammen mit eigenen Meßwerten dargestellt und diskutiert ist. Der näherungsweise hyperbolische Verlauf läßt sich wiedergeben mit:

$$(1 - T_c/T_{c0} + \beta)(B_{c2}/B_{c20} + \beta) = \beta(1 + \beta) = \beta^2 \alpha. \quad (4-3)$$

Für β und α kann man aus Abb. A2 die Werte 0,268 und 4,73 (durchgezogene Kurve) bzw. 0,602 und 2,66 (strichpunktierte⁴⁵⁾ Kurve) entnehmen. Mit der im betrachteten Dosisbereich völlig ausreichenden Näherung von (1-5)

$$1 - S/S_0 = 1 - \exp(-k\phi t) \approx k\phi t \quad (< 0,08) ,$$

wird nach (2-3):

$$T_c/T_{c0} = \exp(-qk\phi t) .$$

Damit erhält man den gesuchten $B_{c2}(\phi t)$ -Zusammenhang aus Gleichung (4-3):

$$B_{c2}/B_{c20} = \frac{\beta(1+\beta)}{\beta + 1 - \exp(-qk\phi t)} - \beta. \quad (4-4)$$

Eine Näherung für $T_c/T_{c0} > 0,8$ ($\phi t < 10^{18} \text{ cm}^{-2}$) ist noch:

$$\begin{aligned} B_{c2}/B_{c20} &\approx \frac{1+\beta}{\beta} (1 - T_c/T_{c0}) + 1 \\ &\approx 1 - \alpha qk\phi t , \end{aligned} \quad (4-5)$$

Durch Einsetzen von (4-4) oder der Näherung (4-5) in das Skalengesetz (4-1) erhält man die Strahlenschädigung der Volumenpinningkraft P_V in Abhängigkeit vom Bestrahlungsfluß ϕt bei Vernachlässigung des Einflusses von κ .

4.3 Diskussion der Hochdosisreduktionen

Mit der im vorigen Abschnitt durchgeführten Abschätzung der Strahlenschädigung von B_{c2} sollen nun über das Skalengesetz (4-1) die gemessenen Werte der Volumenpinningkraft $P_V = j_c \cdot B$ als Funktion der Bestrahlungsdosis diskutiert werden. Dabei werden die Meßwerte P_{Vmax} im Maximum der Feldabhängigkeit benutzt, so daß $f(b)$ in (4-1) eine Konstante ist:

$$\ln P_{Vmax} = m \ln B_{c2} - n \ln \kappa + \text{const.} \quad (4-6)$$

Unter Verwendung von (4-5) wird die Absenkung mit der Bestrahlungsdosis:

$$-\frac{d}{d\phi t} \ln P_{Vmax} = \frac{m \alpha q k}{1 - \alpha q k \phi t} - \frac{n}{\kappa} \left| \frac{d\kappa}{d\phi t} \right| \quad (4-7)$$

$$= \tilde{k}_R \leq m \alpha q k = 2,45 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2. \quad (4-8)$$

Dieser rechnerisch mit $q = 5,35$ abgeschätzte Koeffizient \tilde{k}_R hängt über den Nenner von (4-7) noch von ϕt ab. Bei Benutzung der besseren Näherung (4-4) erhält man für $\phi t = 5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-2}$: $\tilde{k}_R = 1,8 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$.

In Abb. 18 sind die Meßwerte für einige Proben in entsprechender Auftragung dargestellt. Der Mittelwert der Steigungen der Fitgeraden für 27 Proben beträgt:

$$-\frac{d \ln P_{Vmax}}{d \phi t} = \tilde{k} = (1,8 \pm 0,4) \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2 \quad (4-9)$$

mit einer jeweiligen Streuung von etwa 3 %. Die Streuung des Mittelwerts verringert sich noch um 40 %, wenn die Korrelation der \tilde{k} mit den experimentellen q -Werten aus den T_c -Messungen (Streuung in Abb. 17 bzw. Tabelle 2 im Anhang) berücksichtigt wird:

$$\tilde{k}_i \cdot q/q_i = (1,90 \pm 0,26) \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2.$$

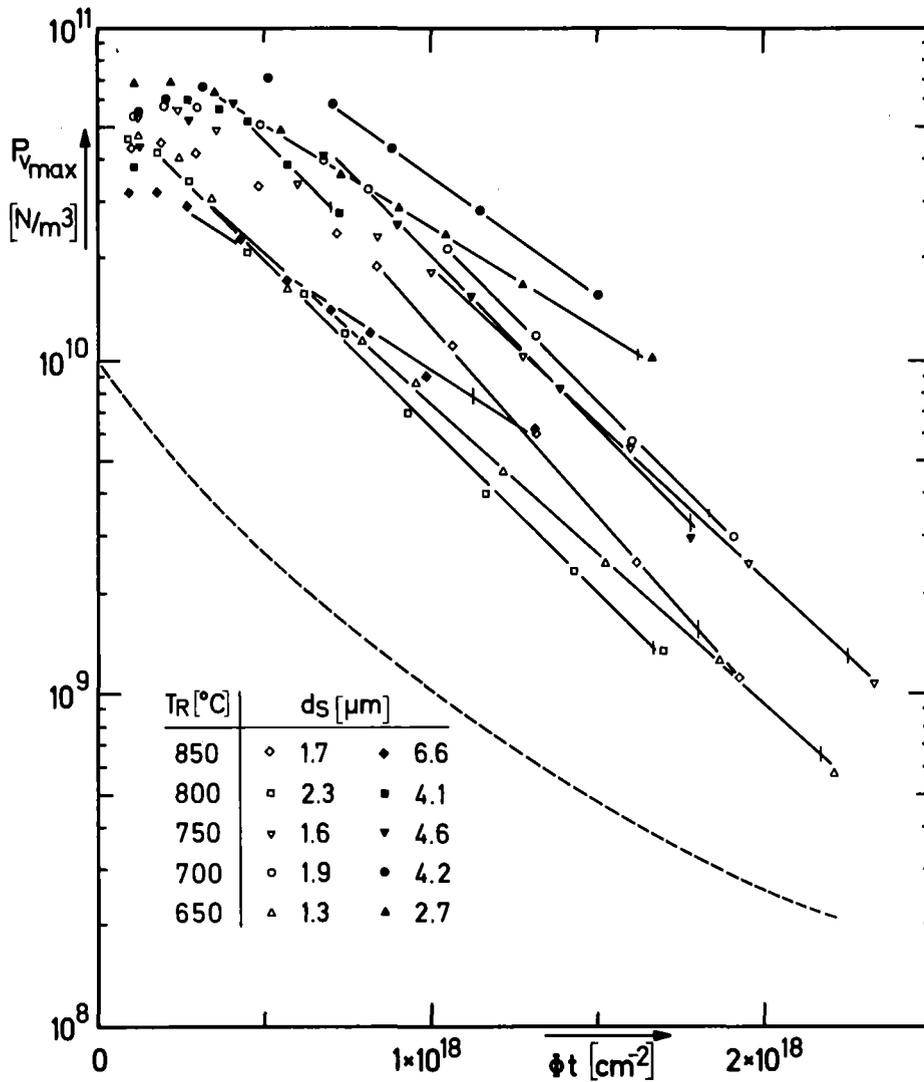


Abb. 18: Exponentieller Abfall des Maximums der Volumenpinningkraft im Bereich der Schädigung ($\phi t \geq 5 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$). Der Standardschätzfehler für die Gerade ist jeweils eingetragen; die gestrichelte Kurve ist normiert auf $P_{V0} = 10^{10} \text{ N/m}^3$ und wurde nach Gl. (4-6) und dem mittleren Wert $q = 7,1$ aus den T_C -Messungen berechnet.

In Abb. 18 ist der nach (4-6, 1. Term) berechnete Verlauf der Absenkung von P_V gestrichelt angedeutet und in Abb. 19 mit B_{C2} und T_C verglichen. Dabei wurde der $B_{C2} - T_C$ - Zusammenhang nach Abb. A 2, durchgezogene Kurve, und der aus den T_C -Messungen bestimmte mittlere Wert für $q \cdot k = 7,1 \cdot 3,9 \cdot 10^{-20} \text{ cm}^2$ benutzt (s. Abb. 17).

Man sieht so, daß der Haupteffekt der Absenkung der Pinningkräfte vor allem durch die Schädigung von T_C und B_{C2} bestimmt wird,

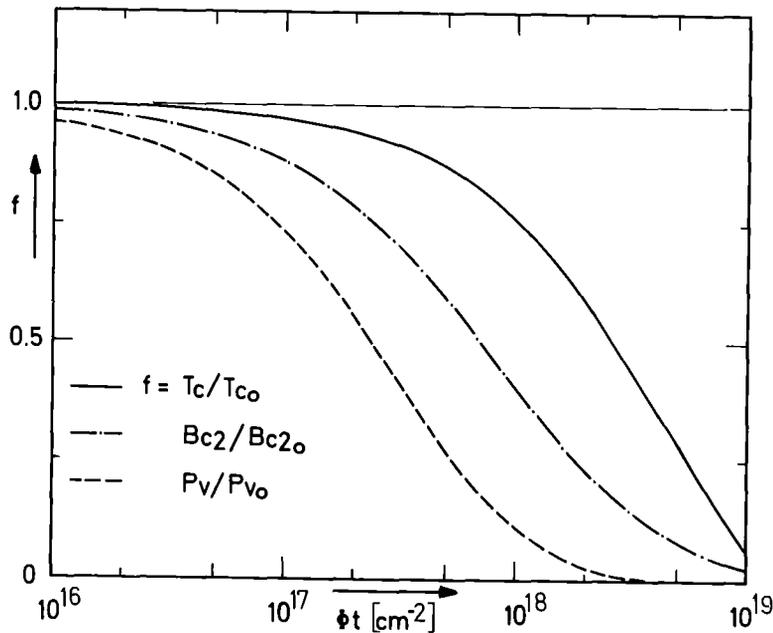


Abb. 19: Berechnung der Strahlenschädigung von P_{Vmax} aus T_C -Messungen. Dargestellt sind 3 Funktionen vom Bestrahlungsfluß ϕt : Gemessener Verlauf von T_C/T_{C0} (Mittelwert, durchgezogene Linie, für $\phi t > 2,3 \cdot 10^{18}$ extrapoliert), der hieraus bestimmte Verlauf von B_{C2}/B_{C20} (nach 4-4), s. Abb. A 2) und von P_V/P_{V0} (berechnet nach Gl. (4-6), gestrichelt). Der gestrichelte Verlauf ist auch in Abb. 18 eingezeichnet.

wobei das allgemeine Skalengesetz (4-1) ausreicht und eine detaillierte Beschreibung der Einzelpinningkräfte nicht nötig ist. Der Einfluß von κ wird hier vernachlässigt, da eine experimentelle Bestimmung nicht durchgeführt wurde. Wie Berechnungen^{40,45)} zeigen, nimmt κ anfangs mit der Bestrahlung ab, um bei $\Phi t \approx 5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ wieder anzusteigen. Dies bewirkt nach (4-6) eine Verkleinerung von \tilde{k}_R um weniger als 25 %, also vergleichbar mit der Streuung der Meßwerte in (4-9). Bei größeren Dosen verschwindet der Einfluß, was einer Linearisierung der gestrichelten Kurve in Abb. 18 entspricht.

Im nächsten Kapitel wird die hier bestimmte Reduktion der Volumenpinningkraft durch Schädigung der intrinsischen Parameter von den Meßwerten abgetrennt, um den Einfluß der strahleninduzierten Pinningzentren zu untersuchen. Dazu werden jeweils die experimentellen Schädigungsraten \tilde{k}_i verwendet.

5. Diskussion der Pinningmechanismen im bestrahlten Supraleiter

5.1 Abtrennung des Bestrahlungsanteils der Pinningkräfte

Im allgemeinen ist bei mehreren wirksamen Pinningmechanismen eine Trennung der Einzelbeiträge schwierig. Im vorliegenden Fall darf man jedoch annehmen, daß die Haftwirkung der schon vor Bestrahlung pinningaktiven Korngrenzen bei niedriger Dosis nur wenig geändert wird, da es sich im Maximum von P_V um verdünnte, starke Pinningzentren handelt. Deshalb wird eine einfache additive Aufteilung von P_V in P_{V1} , Haftkraft der vor Bestrahlung wirksamen Pinningzentren, und P_{V2} , der durch Bestrahlung neu entstandenen Pinningzentren, versucht:

$$P_V = P_{V1} + P_{V2} \quad (5-1)$$

Auch hier werden die Meßwerte im Maximum der Feldabhängigkeit $f(b)$ benutzt; zur Begründung siehe Abschn. 5.3. Die im Hochdosisbereich wirksame Absenkung von P_V wird als Korrektur berücksichtigt und auf P_{V0} , den Wert vor Bestrahlung, normiert:

$$P_V = P_{V0} \exp(-\tilde{k}\phi t) \cdot (1+f_2) \quad (5-2)$$

$P_{V1} = P_{V0} \exp(-\tilde{k}_1\phi t)$ mit den jeweiligen \tilde{k}_i aus Abb. 18.

Für f_2 wird der Ansatz

$$f_2 = \frac{P_{V2}}{P_{V1}} = A' (\phi t)^{m'} \quad (5-3)$$

gewählt, da bereits ohne Korrektur der Strahlenschädigung der Verlauf von $P_V - P_{V0}$ bei niedriger Dosis durch $\phi t^{m'}$, $0,5 < m' < 1$, angepaßt werden konnte.⁴⁶⁾ Bei verdünnten Pinningzentren erwartet man $m' = 1$ (Proportionalität zur Volumendichte der Cluster) oder bei höherer Dichte $m' = 2/3$, wenn nur die Dichte in Flußschlauchrichtung und Lorentzkraftrichtung effektiv zum Pinning beiträgt.

In Abb. 20 ist die der Gl. (5-3) entsprechende Auftragung der

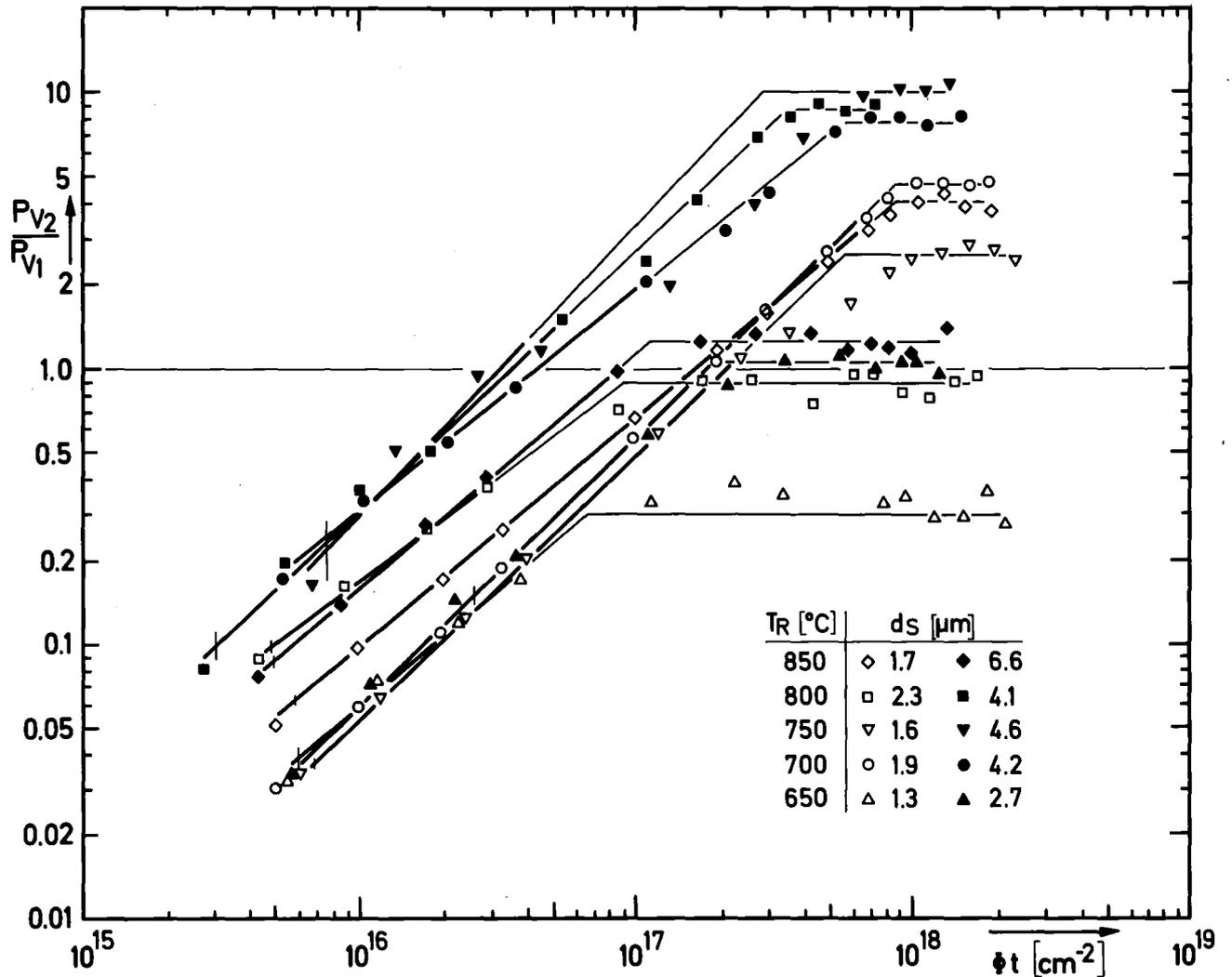


Abb. 20: Anstieg der strahleninduzierten Volumenpinningkraft P_{V2} im Niederdosisbereich, normiert auf die Volumenpinningkraft der Korngrenzen $P_{V1} = P_V - P_{V2} = P_{V0} \exp(-\tilde{k}\phi t)$ mit den \tilde{k} aus den Fitgeraden in Abb. 18. Im stärker ausgezogenen Teil wurde die Gerade angepaßt (Standardschätzfehler angegeben); bei der Extrapolation bis zur Sättigung weichen die Punkte mit $T_R = 750$ °C sowie für einige weitere, hier nicht wiedergegebene Proben ab. Die Geradensteigungen sind in Anhang I aufgeführt, der Mittelwert beträgt $m' = 0,9$.

Meßwerte gezeigt. Für die ersten 4 bis 6 Punkte ($\phi t \leq 10^{17} \text{ cm}^{-2}$) ist die Linearität ausgezeichnet (der sich dabei aus der Streuung ergebende Standardschätzfehler $S_{y.x}$ für die Gerade ist mit angegeben). Ohne die Korrektur der Strahlenschädigung von P_{V2} (Nenner von (5-3)) ist die Linearität viel schlechter, d. h. auch die strahleninduzierten Pinningkräfte sind in gleicher Weise wie Korngrenzenpinning von B_{c2} und κ abhängig.

Die Abweichung von der Linearität bei höherer Dosis kann durch die Anpassung der \tilde{k}_i (in Abb. 18) entstehen, dieser Einfluß auf den Wert m' ist jedoch gering.

Für die Geradensteigungen ergibt sich ein Mittelwert von:

$$m' = 0,89 \pm 0,14 \quad (28 \text{ Proben}) \quad (5-4)$$

(mittl. stat. Fehler für die Einzelwerte $\delta m'_i / m'_i = 3 \%$). Auch hier ist eine Korrelation der einzelnen Werte mit Probenparametern (d_s, d_K) nicht erkennbar, woraus man folgern kann, daß die Eigenschaften der strahleninduzierten Pinningzentren nicht von der Mikrostruktur der Proben abhängen. Dadurch ist allerdings die Möglichkeit einer Aktivierung von pinningschwachen Korngrenzen durch akkumulierte Defekte noch nicht ausgeschlossen.

Die Koeffizienten A' in (5-3) sind zur Beschreibung des Strahlenpinnings nicht geeignet, da P_{V0} enthalten ist und sich die Streuung der Exponenten \tilde{k} und m' zu stark auswirkt. Dagegen wird die Stärke der Strahlenpinningzentren z. B. durch die Größe

$$f_2(\phi t) P_{V0} = P_{V2} \exp(+\tilde{k}\phi t), \quad \phi t = \text{const.},$$

charakterisiert, die in Abb. 21 (s. nächster Abschnitt) dargestellt ist.

Der Einsatz der Sättigung im Anstieg von f_2 in Abb. 20 zwischen $\phi t = 10^{17}$ und 10^{18} cm^{-2} ist einerseits qualitativ zu erwarten, da bei hoher Defektdichte nur noch Fluktuationen in der räumli-

chen Verteilung als Pinningzentren wirken. In diesem Fall nimmt die Pinningkraft pro Defekt etwa proportional zur Pinningzentrendichte ab²⁴⁾, und die gesamte Strahlenpinningkraft $P_{V_0} f_2$ als Funktion von Φt bleibt konstant. Andererseits wurde die exponentiell mit dem Fluß zunehmende Schädigung beider Pinningmechanismen in diesem Bereich an die Meßwerte angepaßt (Abb. 18 in 4.3). Deshalb ist eine quantitative Aussage über den Zuwachs an Strahlenpinning hier nicht mehr möglich, die gute Linearität in Abb. 18 ist aber bei konstanter Strahlenpinningkraft noch besser verständlich, denn dort wurde ja diese nicht berücksichtigt.

5.2 Effektivität der einzelnen Pinningzentren

Nachdem im vorigen Abschnitt der Einfluß der Strahlenschädigung in befriedigender Weise berücksichtigt werden konnte, werden im weiteren die Pinningkräfte losgelöst von diesem Einfluß behandelt. Für den Vergleich der beiden Pinningmechanismen wird die jeweilige Größe der Einzelhaftkraft sowie die Zahl der wirksamen Pinningzentren benötigt. Da experimentell hier nur die Volumenpinningkraft zugänglich ist, wird zunächst die effektive Haftkraft Q je Defekt betrachtet.²⁴⁾ Dabei wird die lineare Summation der Einzelhaftkräfte benutzt, die in der Theorie als oberer Grenzwert für die Volumenpinningkraft gilt, sowie die Unabhängigkeit der Pinningzentren angenommen.

Für *Korngrenzenpinning* ergibt sich aus dem näherungsweise linearen Teil des $P_{Vmax} (d_k^{-1})$ - Zusammenhang (Abb. 6) ein Zuwachs von $2 \cdot 10^9 \text{ N/m}^3$ für $\delta d_k^{-1} = 1 \text{ } \mu\text{m}^{-1}$ entsprechend einer Pinningkraft von $4 \cdot 10^{-12} \text{ N}$ pro Flußlinie oder $4 \cdot 10^{-5} \text{ N}$ pro Meter Flußlinienlänge l_F bei einer mittleren Korngröße von $\bar{d}_k = 1000 \text{ } \text{Å}$:

$$Q_K = \frac{\partial P_V}{\partial d_k^{-1}} \delta d_k^{-1} \cdot a_0 \bar{d}_k l_F \approx 4 \cdot 10^{-12} \text{ N} \quad (B = 7 \text{ T}),$$

$$Q_K / l_F = 4 \cdot 10^{-5} \text{ N/m.} \quad (5-5)$$

Für diese Abschätzung wurde 1/3 der gesamten Korngrenzenfläche als pinningwirksam angenommen.

Bei *Bestrahlung* bis $\Phi t = 10^{17} \text{ d/cm}^2$ steigt die Volumenpinningkraft um den Wert $f_2(\Phi t) \cdot P_{V0} = 1 \dots 4 \cdot 10^{10} \text{ N/m}^3$ an. Nimmt man an, daß alle Cluster mit einem Durchmesser $d_{Cl} \geq \xi \approx 40 \text{ \AA}$ pinningwirksam sind, und benutzt man die in Abb. 1 abgeschätzten Größenverteilungen, so erhält man eine Volumendichte n_V zwischen $0,2$ und $3 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ bei dieser Dosis. Für $n_V = 1 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ beträgt dann die effektive Haftkraft Q_s je Defekt:

$$Q_s = f_2(\Phi t) P_{V0} / n_V = 1 \dots 4 \cdot 10^{-12} \text{ N},$$

$$Q_s / l_F = 2 \dots 8 \cdot 10^{-5} \text{ N/m.} \quad (5-6)$$

Der angegebene Streubereich verringert sich etwa auf die Hälfte, wenn man einen linearen Zusammenhang zwischen Q_s und $\ln d_s$ bzw. Q_s und T_{CO} annimmt, wie er in Abb. 21 dargestellt ist. In den Proben mit höherem T_{CO} ist danach die effektive Haftkraft je Strahlendefekt größer, dagegen konnte eine Korrelation mit der mittleren Korngröße nicht festgestellt werden. Dies spricht für die Unabhängigkeit der beiden Pinningmechanismen und für die Berechtigung des Ansatzes (5-2), wo für den Hochdosisabfall der strahleninduzierten Volumenpinningkraft $P_{V0} f_2$ ebenfalls die in Abschnitt 4.3 diskutierte und auf B_{C2} bzw. T_C zurückgeführte Schädigung des Korngrenzenpinnings verwendet wird. Demzufolge ist eine starke Überlappung der Strahlenpinningzentren bei den hier verwendeten Dosen nicht gegeben.

5.3 Diskussion der Feldabhängigkeit und des Defektspektrums

Die Abhängigkeit der Volumenpinningkraft vom äußeren Feld B tritt in dem Skalengesetz (4-1) nur in der Form $f(b)$, $b = B/B_{C2}$ auf. Diese Funktion läßt sich für verschiedene Pinningmechanismen aus theoretischen Annahmen berechnen, wobei in vielen Fällen

$$f(b) = c' b^r (1-b)^s \quad (5-7)$$

Für Korngrenzenpinning, d. h. vor Bestrahlung, hat sich (5-7) mit $r = 0,5$, $s = 2$ gut bewährt als Fitfunktion für alle verwendeten Proben, jedoch stellt die Bestimmung von B_{c2} hier das größere Problem dar. Bei Pinning durch Defektcluster ist der Ansatz mit $r = 0,5$, $s = 1$ oder $r = 1$, $s = 1$ möglich¹³⁾, da für Punktdefekte das Maximum bei höheren Feldern liegt. Bei Bestrahlung wird der erwartete Anstieg des Maximums von P_V zu größeren Feldern sichtbar, allerdings konnte mit den verwendeten Magnetfeldern bei 4,2 K eine quantitative Untersuchung nicht durchgeführt werden.

In jedem Fall muß die gesamte Pinningkraft aufgeteilt werden auf zwei Teile mit unterschiedlicher Feldabhängigkeit. Für die in Abschnitt 5.1 durchgeführte Analyse erscheint die Vernachlässigung dieser Aufgabe vertretbar, da die beiden Maxima relativ nahe liegen ($b_{\max} = 0,2$ und $0,3 - 0,5$ für Korngrenzen bzw. Clusterpinning) und nur der Betrag verwendet wird. Für eine weitere Deutung der Feldabhängigkeit erscheint jedoch die Methode nicht geeignet. Auch das von Kramer⁸⁾ angegebene Verfahren erfordert für die statistischen Berechnungen einen umfassenderen Datensatz. Lediglich zur Extrapolation von B_{c2} , sowohl vor als auch nach maximaler Bestrahlung, wurde die Feldabhängigkeit von P_V ausgenutzt (s. Anhang III).

Ein weiterer Zugang zu den Einzelpinningkräften bietet sich durch den Vergleich von berechneten und experimentellen Maximalwerten der Einzelpinningkraft, wenn die Mikrostruktur der Pinningzentren bekannt ist. Man kann etwa die experimentell gefundenen Werte für die durch Bestrahlung erzeugte Volumenpinningkraft mit Rechnungen⁴⁰⁾ für kleine normalleitende kugelförmige Pinningzentren vergleichen, wobei jedoch die Größenverteilung der Cluster vor allem bei niedrigen Energien zu wenig bekannt ist. Benutzt man in dem Ansatz

$$P_{V2} = n_V P_{\max} = \int_{E_d}^{E_m} \frac{\partial n_V}{\partial E} p_m(E) dE \quad (5-8)$$

die Größenverteilung aus Abb. 1 Kurve a und für $p_m(E)$ den bei Fähnle angegebenen Verlauf von $p_m(R/a_o)$, so erhält man $P_{V2} \approx 5,1 \cdot 10^{11} \text{ N/m}^3$ bei $\phi t = 10^{17} \text{ cm}^{-2}$. Der Clusterradius R wurde dabei aus der Energie wie in Abb. 1 bestimmt, und der Index m bedeutet bei den Einzelpinningkräften den für verdünnte Systeme möglichen Maximalwert.

Eine bessere Abschätzung ergibt sich, wenn man für $d_{C1} < \xi$ die Einzelpinningkraft proportional dem Volumen V der Defektcluster ansetzt:

$$p_m = \mu_o H_c^2 (1-b) \frac{\delta B_{c2}}{B_{c2}} \frac{V}{a_o/2} \quad , \quad (5-9)$$

und wegen des Proximity-Effekts δB_{c2} von d_{C1}/ξ abhängig macht. Man erhält dann $P_{V2} \approx 2,5 \cdot 10^{11} \text{ N/m}^3$ bei $\bar{p}_m = 3,6 \cdot 10^{-14} \text{ N}$ und dieser Dosis, wobei immer noch 1/3 des Beitrags von Clustern mit $d_{C1} < \xi$ stammt. Der experimentelle Wert $f_2 P_{V0}$ liegt etwa einen Faktor 10 niedriger, jedoch ist wegen der vielen nötigen Abschätzungen eine genaue Übereinstimmung nicht zu erwarten. Möglicherweise ist auch die Reduktion von δB_{c2} quadratisch von d_{C1}/ξ abhängig⁴⁷⁾ oder das System nicht genügend verdünnt.

5.4 Vergleich von Korngrenzen- und Bestrahlungspinningkräften

Bei dem Vergleich von Korngrenzen- und Bestrahlungspinningkräften findet man viele Gemeinsamkeiten, obwohl doch zwei völlig verschiedene Geometrien und Größenverteilungen vorliegen. So stimmen die abgeschätzten Pinningkräfte je Pinningzentrum und Flußlinie größenordnungsmäßig überein ((5-5) und (5-6)) und die Abhängigkeit von der Strahlenschädigung ist gleich. Dies ist eine Folge einerseits der breiten Größenverteilungen, die besonders charakteristische Effekte verhindern und die gute Beschreibung durch das einfache Skalengesetz (4-1) gestatten. Andererseits stellt jede Störung unabhängig von der geometrischen Anordnung in den A15-Materialien eine starke lokale Abweichung der Supraleitungsparameter und damit ein Pinningzentrum dar, wenn die Aus-

dehnung nur einige Kristallgitterabstände übersteigt. Dabei kann man die gestörte Zone als normaleitend betrachten, und die Einzelpinningkräfte hängen stark von den Eigenschaften der Matrix ab.

Unterschiede bestehen vor allem in der Abhängigkeit vom Magnetfeld, da bei niedrigen Feldern der Abstand der Pinningzentren relativ zum Flußlinienabstand a_0 schon vor Bestrahlung relativ niedrig ist. Eine starke Variation der mittleren Korngrößen läßt sich aber durch den Reaktionsprozess nicht erreichen, wie in Abb. 5 dargestellt wurde, und deshalb das Korngrenzenpinning bei niedrigeren Defektdichten nicht an dem gewählten Material untersuchen. Als Funktion vom Bestrahlungsfluß steigt die Volumenpinningkraft daher bei hohen Feldern stärker an und es bildet sich eine Feldabhängigkeit $f(b)$ mit breitem Maximum aus.

Für eine mehr quantitative Aussage über die Pinningzentren, z. B. zur Klärung der Frage, welcher Wechselwirkungsmechanismus bei Korngrenzenpinning wirksam ist und ob im Fall der Kernwechselwirkung sich eine plausible "Dicke" der Korngrenzen ergibt, ist vor allem eine genaue Bestimmung der Dichte der Korngrenzen nötig. Vorteilhaft wäre eine bezüglich T_c relativ homogene Supraleiterschicht ohne Störung durch Druckspannungen. In diesem Fall ist die Bestrahlung mit verschiedenen hochenergetischen Teilchen eine gute Methode, die Pinningwechselwirkung zu untersuchen, da sich die Pinningzentrengröße und Häufigkeitsverteilung variieren läßt und man die Voraussagen entsprechender theoretischer Berechnungen vergleichen kann. Nach den Ergebnissen dieser Arbeit kann man die Schädigung der reversiblen Parameter leicht eliminieren und braucht eine gegenseitige Beeinflussung der verschiedenen Pinningzentren bei niedriger Dosis nicht erwarten.

Schluß

In dieser Arbeit wurde das Verhalten von Nb_3Sn bei Deuteronenbestrahlung untersucht. Die für A15-Supraleiter typische große Bedeutung einer Störung der Ordnung spiegelt sich in allen Ergebnissen wider. Im vorliegenden Fall (Ionen) kann man die Schädigung als homogen betrachten und kommt mit den üblichen Ansätzen für die Defekterzeugung und für den Zusammenhang von T_c und Ordnung innerhalb des Meßfehlers zu quantitativer Übereinstimmung mit Literaturwerten (Abb. 17). Die gleichzeitige Schädigung von B_{c2} führt dann zum Haupteffekt der Absenkung der Stromtragfähigkeit (Abb. 18), wobei B_{c2} nach Bestrahlung durch Extrapolation bestimmt werden konnte und für den Verlauf mit der Dosis die theoretische Abhängigkeit von T_c (Abb. A 2) benutzt wurde.

Nach Korrektur für diesen Haupteffekt ist der Anstieg der Stromtragfähigkeit durch Bestrahlung erwartungsgemäß nahezu linear mit der Dosis (Abb. 20) und die Größe des Effekts ist durch T_c bzw. B_{c2} vor Bestrahlung beeinflusst (Abb. 21).

Damit ist es möglich, sowohl Anstieg wie Abfall der Stromtragfähigkeit vorherzusagen, wenn durch eine Kurzbestrahlung die Exponenten für Anstieg (j_c) und Abfall (T_c) bestimmt wurden.

Bei inhomogenem Schichtaufbau ist die induktive Messung von T_c ratsam, um im feinkörnigen Bereich Werte zu erhalten und damit die Streuung in Abb. 21 zu reduzieren. Dann erscheint auch die direkte Berechnung der Effekte ohne Bestrahlungsexperiment möglich. Die Methode ist natürlich auch bei Multifilamentleitern anwendbar, wie aus den Tabellen im Anhang hervorgeht.

Ein Vergleich der Meßwerte mit theoretischen Berechnungen für die Pinningkräfte bestätigt die Anwendbarkeit des einfachen Skalengesetzes (4-1) für Korngrenzenpinning wie für Strahlenpinningzentren ((4-7) bis (4-9)). Es zeigt sich weiter, daß die

effektiven Einzelhaftkräfte (pro Defekt und Flußlinie) größenordnungsmäßig gleich sind ((5-5) und (5-6)) und vom Volumen der gestörten Zone abhängen. Kompliziertere Ansätze werden wegen der relativ zum Flußlinienabstand geringen Abmessungen für Strahlenpinningzentren kaum benötigt und bei Korngrenzenpinning wegen der breiten Größenverteilungen unzweckmäßig. Für eine Entscheidung zwischen verschiedenen theoretischen Ansätzen wäre erforderlich, das Magnetfeld im ganzen interessierenden Bereich zu variieren oder eine genauere Bestimmung von Anzahl und Größenverteilung der Defekte durchzuführen.

Für die Zukunft erscheint eine Untersuchung des Zusammenhangs zwischen T_c und B_{c2} (Abb. A 2) besonders interessant, vor allem, wenn der Einfluß von Druckbelastungen eingeschlossen wird. Die Dichteverteilungen der Defekte können durch Überstrukturabbildungen bei der Transmissionselektronenmikroskopie eventuell besser bestimmt werden, wodurch dann Vergleiche von verschiedenen Nuklearbestrahlungen⁴⁸⁾ über die Variation des Defektgrößenspektrums noch an Bedeutung gewinnen.

A N H A N G

Anhang I

Probenspezifikationen und Meßwerte

Die Ergebnisse dieser Arbeit stützen sich in der Hauptsache auf Einkernleiter, deren Supraleiterschicht durch Reaktionsglühung im Vakuum selbst hergestellt wurde (Abschn. 2.1). Ergänzend wurden jedoch auch einige vom Materialhersteller in Argonatmosphäre unter den üblichen technischen Bedingungen hergestellte Ein- und Mehrkernleiter untersucht, für die der Übersichtlichkeit halber die Meßergebnisse nur in Tabelle 2 aufgeführt werden. Wie zu erwarten, sind die Meßwerte bei entsprechender Schichtdicke und Reaktionstemperatur vergleichbar mit den unter Vakuum geglühten Proben. Die Unterschiede im Diffusionsprozess (s. Abb. 2 und 3) wurden daher nicht untersucht.

Die Daten der Ausgangsmaterialien sind in Tabelle 1 zusammengestellt. Nach Herstellerangabe beträgt der Sn-Gehalt der CuSn-Matrix einheitlich für alle Proben 13.5 Gew.% $\hat{=}$ 7.8 At.% und das Querschnittsverhältnis von Matrix : Nb-Kern etwa 5 : 1 (vor der Reaktionsglühung). Das nachträglich bezogene Drahtmaterial mit verbesserter Gleichmäßigkeit des Nb-Kerns zeigt außer dem geänderten Verhältnis von Schichtdicke zu Supraleiterquerschnittsfläche und den daraus resultierenden geringeren Strömen (18 %) keine systematischen Abweichungen (s. Abb. 2) und wurde

Tabelle 1: Ausgangsmaterial für Proben

Mat.Nr. NS-	VAC- Charge	Durchm. [mm]	Fil. Zahl	Fil. \emptyset [μ m]	$\frac{4\pi F}{U^2}$	Reakt., CuSn/Nb	lfd. Proben-Nr. in Tabelle 2
76/38	CS 1098	0.145	1	67 \pm 2	0.71	unreag., 5	1-4,6,8,11,12,14- 17,19-22,24,25.
77/41	CS 1432	0.152	1	60 \pm 2	0.86	unreag., 6	5,7,9,10,13,18, 23,26-29.
76/32	CS 1098	0.145	1	ca.67	-	in Ar, 5	30 (24h, 700 $^{\circ}$ C)
76/35	CS 1098	0.145	1	ca.67	-	in Ar, 5	31 (24h, 750 $^{\circ}$ C)
76/33	NS 61/5-5	0.15	61	ca. 8	-	in Ar, 5	32 (24h, 700 $^{\circ}$ C)
76/36	NS 61/5-5	0.15	61	ca. 8	-	in Ar, 5	33 (24h, 750 $^{\circ}$ C)

Tabelle 2: Meßergebnisse

lfd	Exp.Nr.	t_R	T_R	d_s	$\frac{4\pi F}{U^2}$	\bar{d}_K	T_{c0}	$T_c(x)$	B_{c20}	$B_{c2}(x)$	$\phi t(x)$	$\frac{\Delta \phi t}{\phi t(x)}$	q	\bar{k}	$\frac{R_V(10^{17})}{R_0}$	m'	$R_0 f_2(10^{17})$	f_2	R_0
Nr.	/Probe	[h]	[°C]	[μm]		[nm]	[K]	[K]	[T]	[T]	[$10^{18} cm^{-2}$]			[$10^{18} cm^{-2}$]		[$10^{11} N/m^3$]	(max)	[$10^{11} N/m^3$]	
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19
1	77-6/2	24	650	0.6	0.71	-	15.7	9.6	16.6	12.5	1.56	0.47	8.4	1.84 ±0.04	0.83 ±0.01	0.89 ±0.01	0.097 ±0.001	0.28	0.459
2	76-6/1	96	650	1.5	0.70	200	16.8	11.6	-	-	1.45	0.05	6.7	1.68 0.01	0.85 0.01	0.85 0.01	0.186 0.007	0.93	0.447
3	77-4/2	96	650	1.3	0.70	-	17.1	9.2	-	9.0	2.21	0.33	8.24 ±0.07	2.09 0.01	0.81 0.04	0.85 0.04	0.194 0.021	0.29	0.446
4	77-5/3	400	650	2.7	0.74	80	16.9	11.7	18.2	15.2	1.68	0.11	6.07 0.14	1.41 0.01	0.87 0.03	0.96 0.02	0.277 0.027	1.1	0.494
5	77-6/6	10	700	1.2	0.82	-	16.2	12.5	17.3	14.4	1.04	0.35	6.5	1.52 0.09	0.86 0.06	0.90 0.03	0.098 0.017	0.98	0.339
6	77-4/6	21	700	1.9	0.70	120	16.9	9.8	-	11.2	1.91	0.31	7.58 0.82	2.33 0.01	0.79 0.02	0.97 0.01	0.245 0.006	4.8	0.439
7	77-6/3	26	700	1.6	0.33	-	15.7	10.2	16.4	12.7	1.59	0.27	7.3	1.41 0.01	0.87 0.01	0.84 0.02	0.148 0.013	0.70	0.393
8	77-1/5	96	700	3.1	0.80	-	17.2	10.8	-	-	2.07	0.33	5.9	1.82 0.01	0.83 0.01	0.93 0.01	0.240 0.022	3.1	0.491
9	77-6/1	96	700	2.7	0.91	-	16.9	12.3	17.3	14.9	1.25	0.25	6.6	1.22 0.07	0.89 0.12	(1.25)	0.750 0.026	1.0	0.422
10	77-6/4	340	700	4.2	0.79	150	16.2	11.9	16.8	14.7	1.51	0.28	6.62 0.17	1.66 0.02	0.85 0.02	(0.81)	0.435 0.016	8.1	0.221
11	77-3/1	2	750	1.4	0.67	-	16.7	9.3	-	9.0	1.83	0.30	8.5	2.46 0.01	0.78 0.08	0.84 0.01	0.227 0.005	2.2	0.477
12	77-4/3	3	750	1.8	0.73	-	16.8	9.2	-	7.9	2.33	0.38	7.76 0.12	1.91 0.02	0.83 0.04	0.78 0.05	0.153 0.063	1.0	0.448
13	77-4/4	3	750	1.6	0.89	115	16.4	9.2	-	8.1	2.33	0.30	7.55 0.13	2.14 0.02	0.81 0.03	0.96 0.01	0.218 0.003	2.7	0.446
14	77-1/2	12	750	2.8	-	60	17.2	14.4	-	-	0.75	0.38	6.2	1.69 0.01	0.84 0.01	0.65 0.03	0.39 0.12	1.7	0.469
15	77-3/2	34	750	4.6	0.60	-	17.6	10.4	-	11.2	1.77	0.27	8.00 0.25	2.38 0.01	0.79 0.05	(1.05)	0.66 0.20	10	0.198
16	77-3/3	94	750	5.7	0.72	200	17.6	11.5	-	14.0	1.61	0.34	7.1	3.33 0.01	0.72 0.02	(1.11)	0.57 0.15	41	0.133
17	77-3/4	0.5	800	1.8	0.69	-	16.9	11.9	-	16.2	1.12	0.31	8.2	2.31 0.02	0.79 0.06	1.03 0.12	0.49 0.16	3.1	0.320
18	77-6/5	0.5	800	1.7	0.84	-	17.0	12.3	17.5	14.6	1.35	0.35	5.37 0.11	1.62 0.05	0.85 0.06	0.92 0.02	0.144 0.009	1.6	0.319
19	77-4/1	0.7	800	2.3	0.74	220	16.9	(7.5)	-	8.7	1.71	0.31	-	2.27 0.01	0.80 0.04	0.75 0.05	0.313 0.015	0.89	0.324
20	76-6/2	3	800	4.1	-	165	17.4	12.8	-	-	1.42	0.33	5.8	(1.6)	(0.85)	0.73	0.261 0.018	3.9	0.276
21	77-3/5	3	800	4.1	0.69	180	17.5	14.1	-	18.9	0.73	0.32	7.81 0.17	2.27 0.01	0.80 0.03	0.94 0.03	0.387 0.047	8.9	0.143
22	77-3/6	45	800	11.8	0.68	340	17.7	16.4	-	-	0.34	0.28	7.10 0.59	2.1* 0.01	0.81* 0.03	1.06 0.11	0.38 0.25	2.3	0.079
23	77-5/4	0.2	850	1.2	0.38	-	16.4	10.1	17.6	14.5	1.68	0.13	7.45 0.21	1.64 0.01	0.85 0.03	0.86 0.03	0.149 0.019	0.73	0.432
24	77-4/5	0.3	850	1.7	0.74	350	16.7	8.9	-	8.5	1.92	0.19	9.08 0.14	2.60 0.01	0.77 0.05	0.83 0.01	0.242 0.007	4.0	0.370
25	77-1/3	0.3	850	2.7	0.64	-	17.3	12.6	-	-	1.15	0.27	7.2	1.66 0.01	0.85 0.03	0.63 0.01	0.335 0.003	2.5	0.222
26	77-5/1	1.5	850	3.7	0.70	-	17.1	13.2	24.6	17.8	1.04	0.26	6.89 0.19	1.34 0.01	0.88 0.04	0.93 0.01	0.250 0.016	0.98	0.237
27	77-5/2	4	850	6.6	0.66	220	17.4	11.8	21.9	14.7	1.31	0.16	7.01 0.05	1.50 0.01	0.86 0.04	0.85 0.01	0.213 0.010	1.3	0.183
28	77-5/6	8.8	850	10.1	0.59	280	17.5	12.5	28.4	17.7	1.06	0.15	7.11 0.19	1.73 0.01	0.84 0.02	0.95 0.01	0.345 0.019	7.8	0.085
29	77-5/5	16	850	11.0	0.73	-	17.6	12.9	26.9	18.4	1.46	0.16	5.51 0.10	1.36 0.01	0.87 0.01	0.98 0.01	0.273 0.005	6.8	0.103
30	77-1/6	24	700	5.7	-	-	17.6	11.9	-	-	2.00	0.48	5.2	1.54*	0.86*	0.82	0.307 0.092	-	0.378
31	77-1/4	24	750	14.5	-	-	17.8	12.3	-	-	1.56	0.43	6.3	1.86*	0.83*	0.81	0.26 0.11	-	0.071
32	76-5/1	24	700	ca. 3	61 Fil.	-	-	-	-	-	0.46	-	5.4*	1.6*	0.85*	0.67	0.98 0.21	7.3	0.17
33	76-5/2	24	750	ca. 4	61 Fil.	-	-	-	-	-	0.46	-	5.4*	1.6*	0.85*	0.67	1.04 0.08	9.3	0.13

im weiteren nicht mehr unterschieden. Für Aktivierungsanalyse und Radiografie sind natürlich die unterschiedlichen Zusammensetzungen berücksichtigt.

In Tabelle 2 sind einige charakteristische Meßergebnisse zusammengestellt, die ergänzend zu den graphischen Darstellungen in der Arbeit z. B. auch den Streubereich der Parameter \tilde{k} und m' deutlich machen. Im einzelnen sind neben der Experiment- und Probennummer in Spalte 1 in den folgenden Spalten 2-4 die Reaktionszeit und -temperatur sowie die resultierende gemittelte Nb_3Sn -Schichtdicke, gemessen bei 600facher Vergrößerung, eingetragen. Der Formfaktor (s. Abschn. 2.1) in Spalte 5 gibt die Abweichung von einem idealen kreisförmigen Umfang des Querschnitts an (≤ 1.0) und in Spalte 6 ist die über die gesamte Schicht gemittelte Korngröße angegeben (nach rasterelektronenmikroskopischen Aufnahmen, s. Abschn. 2.2).

In Spalte 7 und 8 sind die resistiv bestimmten Übergangstemperaturen vor und nach Bestrahlung (im Punkt maximaler Dosis) sowie (Spalte 9 und 10) die durch Extrapolation (s. Anhang III) bestimmten Werte von B_{c2} vor und nach Bestrahlung angegeben. Der zugehörige Wert des integrierten Gesamtflusses ist in Spalte 11 und in Spalte 12 der hierauf normierte Wert der stärksten Abweichung innerhalb der Spannungsabgriffe zu finden.

Beide Werte wurden nach dem in Abschn. 3.3 und Anhang IV beschriebenen Verfahren durch Aktivierungsanalyse (an Probe /2 für jede Exp. Nr.) in Verbindung mit Autoradiografien zur Bestimmung der Ortsabhängigkeit der Aktivierung berechnet. Außerdem wurde eine Korrektur durch Vergleich der Integration über den Blendenquerschnitt mit dem experimentell bestimmten Gesamtfluß angewendet. Durch Vergleich der ortsabhängigen Aktivierung mit den ortsauflösenden T_c -Messungen konnte an jeder Probe der lineare Zusammenhang zwischen $\ln T_c$ und der Schädigung S bestätigt werden (Abb. 17). Die Steigung q der Geraden ist in Spalte 13 angegeben, wobei die Schädigung der Ordnung S immer mit dem gleichen Exponenten $k = 3.9 \cdot 10^{-20} \text{ cm}^2$ berechnet

wurde; eine experimentelle Aussage ist jedoch nur für das Produkt $k \cdot q$ möglich (siehe Gl. (4-3)-(4-8)).

Die weiteren Angaben betreffen die I_C -Messung, wobei die Steigung der Geraden $\tilde{k} = -\partial \ln P_{V_{\max}} / \partial \phi t$ bei höherer Dosis (Abb. 18) und die beim Fluß ϕt erreichte Reduktion P_{V1} / P_{V0} ($\phi t = 10^{17} \text{ cm}^{-2}$) in Spalte 14 und 15 angegeben sind (Gl. (5-2), 2. Term). Der nach Abzug dieser Schädigung verbleibende Anstieg von P_V durch Vermehrung der Pinningzentren bei niedriger Dosis ist, ebenfalls in Punkt $\phi t = 10^{17} \text{ cm}^{-2}$, in Spalte 17 und die Geradensteigung $m' = \partial \ln P_{V_{\max}} / \partial \ln \phi t$ (s. Abb. 20) sowie der Sättigungswert f_2 (max) in Spalte 16 und 18 angegeben. Hier ist jedesmal der aus 4-10 Punkten bei niedrigem Fluß gewonnene Wert für die least-squares-fit-Gerade (Abb. 20) genannt. Die Sättigungswerte entstehen dabei etwas willkürlich durch die Anpassung im Hochdosisbereich. Die in den letzten 6 Spalten angegebenen Fehlergrenzen betreffen die Güte der jeweiligen linearen Anpassung in einem sinnvoll gewählten Intervall. Bei den eingeklammerten Werten in Spalte 16 lag das Maximum von P_V bei $B > 7 \text{ T}$ und mußte durch Extrapolation bestimmt werden; der geklammerte Wert in Spalte 14 ist nur durch 2 Punkte gestützt.

Die Werte für Probe 22 in Spalte 14-18 (mit*) sind aus T_C -Messungen berechnet, da wegen zu niedriger Bestrahlungsdosis das Maximum in j_C als Funktion der Dosis nicht überschritten wurde; sie stellen daher ein Beispiel für die in Abschn. 5.4 und im Schluß vorgeschlagene Anwendung der Methode dar. Die Meßfehler zu Spalte 2-12 sind in Anhang II diskutiert.

Anhang II

Abschätzungen der Meßfehler

Die Reaktionstemperatur T_R bei der Probenherstellung weicht um maximal $4\text{ }^\circ\text{C}$ vom angegebenen Wert ab, wobei die Reaktionszeit t_R bei Überschreiten einer $50\text{ }^\circ\text{C}$ tiefer liegenden Temperatur gezählt wurde, bis zur Erreichung der Fehlergrenze vergingen allerdings maximal 2 min. Tiefere Temperaturen (über $600\text{ }^\circ\text{C}$) wurden in weniger als 1 min. durchlaufen, so daß für die kürzesten Reaktionszeiten von 0.2 und 0.3 h dieser Verlauf mit zu berücksichtigen wäre. Für alle anderen Werte fällt der Fehler der Zeitmessung nicht ins Gewicht, es wurden jedoch z. T. gerundete Werte ($\pm 2\%$) angegeben.

Wesentlich ungenauer ist dagegen die Angabe der nach dem in Abschnitt 2.1 angegebenen Verfahren bestimmten Schichtdicke. Zwar beträgt die typische Streuung bei Ausmessung verschiedener Schlifffbilder des gleichen Materials etwa 7% , jedoch sind vor allem bei Schichtdicken von $1.5\text{ }\mu\text{m}$ und kleiner wegen der Differenzbildung zweier großer Zahlen stärkere Abweichungen möglich. Bei dicken Schichten wird die Erfassung der großen Körner am Rand zur Matrix durch den jeweiligen Querschliff streuen, weshalb allgemein mit einem Streubereich von $\pm 10\%$ für die Schichtdicke zu rechnen ist. Dies ist auch die Genauigkeit der Bestimmung der Supraleiterquerschnittsfläche, da die Meßgenauigkeit des mittleren Durchmesser nicht ins Gewicht fällt. Für die Messung der I_C -Werte wurden 3% Fehler abgeschätzt (bei vergrößertem Shuntstrom bis zu 6%) und es ergibt sich so für j_C bzw. P_V etwa $13\text{...}16\%$ Meßfehler. Der Eichfehler des Magnetfeldes kann maximal 1.5% betragen (Streuung 0.3%), ist jedoch im Rahmen dieser Arbeit vernachlässigbar.

Die wohl größte Unsicherheit liegt in der Bestimmung einer mittleren Korngröße, wobei vor allen Dingen die Auflösungsgrenze bei $100\text{...}200\text{ }\text{\AA}$, die stark von der Einstellung des Elektronenmikroskops und der Qualität der Politur bzw. Ätzung der Proben abhängig ist, in der Nähe der kleinsten erwarteten Korndurchmesser liegt.

Für die aus den Größenverteilungen berechneten mittleren Korngrößen (arithmetischer Mittelwert in Tabelle 2 Spalte 6, abweichende Mittelung in Abb. 6) wird deshalb als Fehler $\pm 30\%$ angenommen.

Für die T_c -Messungen (Tab. 2 Spalte 7 und 8) beträgt der Meßfehler einheitlich jeweils ± 0.1 K; lediglich bei abrupten Änderungen innerhalb der 1 mm Meßlänge (am Blendenrand) treten größere Fehler auf, solche Punkte wurden jedoch nicht zur Bestimmung von q verwendet. Meßwerte unter 9.2 K sind wegen der Supraleitung des Nb-Kerns extrapoliert.

Bei der Bestimmung von B_{c2} beträgt der Meßfehler unterhalb 15 T etwa ± 0.5 T. Da wegen der breiten Defektgrößenverteilung nicht mit den bekannten Abweichungen bei hohen Feldern zu rechnen ist, sollte die Extrapolation bis auf 18 T auf etwa 1 T verlässlich sein, darüber hinaus jedoch sind die Angaben nur als Anhaltspunkte zu werten.

Für den integrierten Gesamtfluß Φt wird der Meßfehler auf $\pm 15\%$ geschätzt, da einerseits die Wirkungsquerschnitte für die Aktivierung bestenfalls auf 10% bekannt sind und die Aktivierungsmessung ebenfalls mit 2-8% Fehler behaftet ist. Da andererseits mehrere Nuklide für die Erzeugung der Schwärzung der Autoradiografien in Frage kommen, wurden die so berechneten Bestrahlungsflüsse auf den experimentell bestimmten Gesamtfluß korrigiert, der wegen Aufweitung des Strahls an den Strahlfenstern, im flüssigen Helium und in der Probe seinerseits nur auf etwa 12% genau angegeben werden kann. Sicher kann ein Teil der Streuung der die homogene Defekterzeugung beschreibenden Faktoren q (ca. $\pm 24\%$) insbesondere wegen der Korrelation mit der jeweiligen Schädigungsrate \tilde{k} von j_c (siehe Bemerkung nach Gl. (4-9)) auf Fehler in der Bestimmung der Bestrahlungsdosis zurückzuführen sein. Eine wesentliche Verbesserung wäre von speziellen Aktivierungsmeßfolien aus Reinstmetallen zu erwarten, die mittels eines bezüglich der Radiografien standardisierten Verfahrens³¹⁾ auszuwerten wären.

Anhang III

Abschätzungen von B_{c2} aus Messungen bis 13 T

III.1 Extrapolation von B_{c2}

Wegen der leichten Zugänglichkeit und der vor allem bei bestrahlten Proben zu erwartenden Meßgenauigkeit wurde B_{c2} bei $T = 4.2$ K aus j_c -Messungen bis $B = 13$ T extrapoliert. Hierzu wurde die Feldabhängigkeit der Volumenpinningkraft ((4-1), (5-7)) benutzt, die zwar bei mittleren Feldstärken in unübersichtlicher Weise von der Pinningstruktur abhängt. In der Nähe von B_{c2} jedoch sollte die Volumenpinningkraft, falls eine breite Verteilung der Pinningzentrengröße und -dichte vorliegt, nur noch von den Eigenschaften des Flußliniengitters abhängen. Nach Kramer⁸⁾ gilt dann:

$$f(b) \sim c_{66} a_0 \sim (1-b)^2 b^{1/2}, \quad (b=B/B_{c2}), \quad (A-1)$$

da der Schermodul c_{66} wesentlich schwächer als alle anderen elastischen Konstanten ist und deswegen das Abscheren von Bereichen des Flußliniengitters auf einen Gitterabstand a_0 in Kraftrichtung begrenzt ist. Man erwartet daher eine lineare Abhängigkeit von B für:

$$(f(b) \cdot b^{-1/2})^{1/2} \sim I_c^{1/2} B^{1/4} \sim 1-B/B_{c2} \quad (A-2)$$

und kann diesen Zusammenhang bei guter Linearität für die Extrapolation von B_{c2} benutzen. Wie die Auftragung in Abb. A 1 zeigt, ist die Feldabhängigkeit nach (A-1) teilweise schon ab $B = 2$ T und sowohl vor wie nach Bestrahlung gut erfüllt. Dabei ist natürlich bei den bestrahlten Proben der extrapolierte Wert wegen der starken Reduktion entsprechend sicherer; die Werte über $B = 20$ T stellen nur noch einen Anhaltspunkt dar.

III.2 Diskussion der Ergebnisse

Die experimentelle Bestimmung von B_{c2} hatte zum Ziel, die

Anwendbarkeit von theoretischen Zusammenhängen zwischen T_c und B_{c2} nach Bestrahlung zu überprüfen, wie sie z. B. für Nb_3Al bei Somekh⁴²⁾ oder für Nb_3Sn bei Fähnle⁴⁰⁾ zu finden sind. Diese Berechnungen benutzen das Labbé-Fridel-Modell⁴⁹⁾ der linearen Ketten und einen Mittelwert für die Fermigeschwindigkeit. Die Reduktion der mittleren freien Weglänge ist bei Fähnle berücksichtigt und äußert sich in höheren B_{c2} -Werten vor allem bei starker Reduktion. In Abb. A 2 sind die durch Extrapolation gewonnenen B_{c2} -Werte mit den theoretischen Kurven verglichen, wobei für ungestörtes Nb_3Sn ein Wert $B_{c2m} = 30$ T angenommen wurde ($B_{c2m} = 25$ T im Original). Dabei ist für die durchgezogene und die gestrichelte Kurve die Zustandsdichte als Funktion der Defektkonzentration nach Labbé und van Reuth bestimmt, während die strichpunktierte

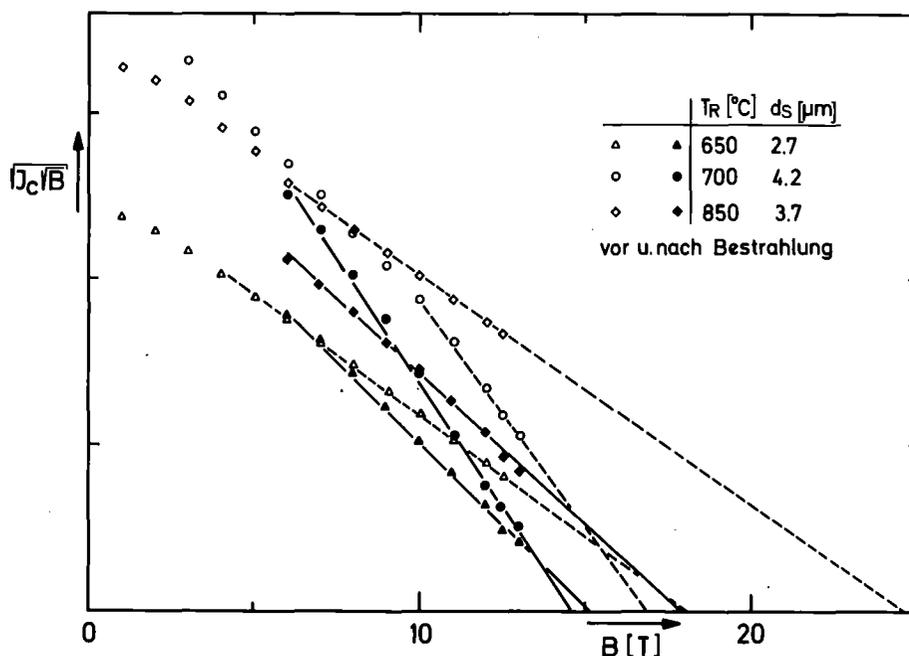


Abb. A 1: Extrapolation von B_{c2} aus I_c -Messungen bis 13 T, wobei die Feldabhängigkeit $P_V \sim b^{1/2} (1-b)^2$ zu einer linearen Abhängigkeit der Funktion $I_c^{1/2} B^{1/4}$ von B führt. Ordinate in relativen Einheiten, 650 °C (vor Bestrahlung) um Faktor 2 gestaucht.

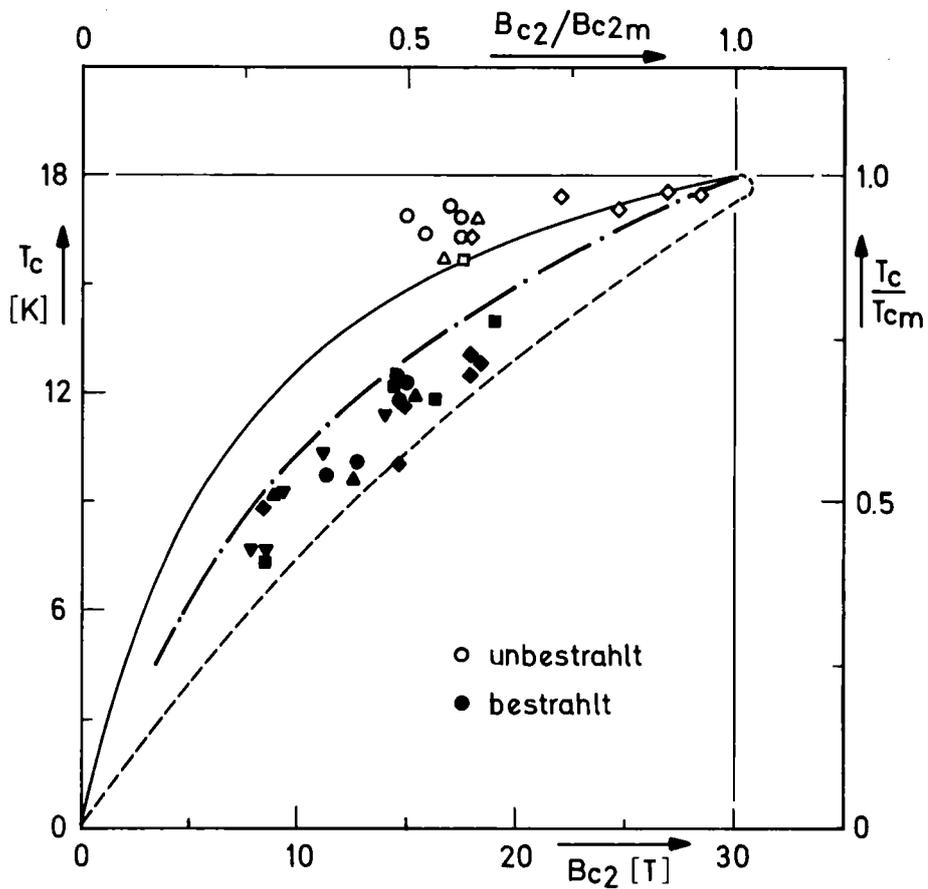


Abb. A 2: Zusammenhang zwischen T_c und B_{c2} bei Strahlenschädigung mit eigenen Meßwerten (B_{c2} extrapoliert ab 13 T, volle Symbole bestrahlt, leere unbestrahlt). Die theoretischen Kurven sind der Arbeit von Föhnle^{40,45)} entnommen (rechte und obere Achsenbeschriftung); in der Originalarbeit betrug $B_{c2m} = 25$ T. Durchgezogene und gestrichelte Kurve mit der Zustandsdichte nach (50), strichpunktierte Kurve nach der verbesserten Näherung (45,51).

Kurve der neuen Arbeit⁴⁵⁾ entnommen ist und eine verbesserte Zustandsdichterechnung⁵¹⁾ benutzt. Es zeigt sich, daß vor Bestrahlung B_{c2} etwas stärker abgesenkt ist, als die Theorie aus den T_c -Meßwerten voraussagt. Nach Bestrahlung liegen die Werte zwischen der durchgezogenen und der gestrichelten Kurve (für Unabhängigkeit der mittleren Fermigeschwindigkeit von der Störung der Ketten); die verbesserte Rechnung (strichpunktiert) paßt hier am besten.

Da nach Bestrahlung die Zustandsdichte an der Fermikante schwächer variiert, ist es möglich, daß die unbestrahlten Werte durch die Thermokompression der Matrix und die dadurch hervorgerufene Verschiebung der Fermikante stärker abgesenkt sind, als es nach Bestrahlung möglich ist. Allerdings erwartet man einen Effekt, der auf T_c bezogen höchstens 0,3 K ausmacht und damit zu klein wäre.

Trotz dieser Komplikation bestätigen die Meßwerte den prinzipiellen Verlauf der theoretischen Kurven. Für geringe Störung kann man den Zusammenhang approximieren und für die Abschätzung der Schädigungsrate von P_V heranziehen (s. Abschnitt 4.2 und 4.3).

Anhang IV

Ergänzungen zur Dosisbestimmung

IV.1 Numerische Angaben zur Radiografieauswertung

Die Koeffizienten α' und β' wurden aus den Maxima der Schwärzungskurven (Film Agfapan 25) von 32 Proben bei den 4 Belichtungszeiten $t_B = 6.1, 11.8, 24.1, 48.1$ h bestimmt durch einen Fit der Geraden:

$$\ln D_{ij} = \kappa_i \ln(t_B/1h)_j + a_i, \quad j = 1, 2, 3, 4 \quad (\text{A-3})$$

und der Koeffizienten:

$$a_i = \alpha' \kappa_i + \beta', \quad i = 1, \dots, 32. \quad (\text{A-4})$$

Es ergibt sich $\alpha' = -7.08$, $\beta' = 3.95$, wobei die statistische Ablehnungswahrscheinlichkeit für lineare Unabhängigkeit sowohl für ((A-3), $n = 3$) als auch für ((A-4), $n = 32$) nach Student-t-Test $> 99\%$ bleibt. Die κ_i lagen zwischen 0.4 und 0.8 bei D_i -Werten zwischen 0.05 und 1.2 (logarithmische optische Dichte über Entwicklungsschleier).

Durch Vergleich der durch γ -Analyse bestimmten und mit $T_{1/2}(\text{Zn } 65) = 244$ d korrigierten Gesamtaktivität A_0 mit den durch numerische Integration aus den Schwärzungskurven bestimmten Summen wurde der Vorfaktor η bestimmt:

$$A = \eta^{-1} \gamma D^\tau, \quad \tau = \alpha' (\ln t_B + \alpha')^{-1}, \quad (\text{äquivalent zu (3-1)})$$

$$\eta = A_0^{-1} \gamma \sum_i D_i^\tau \Delta x, \quad \gamma = \exp \beta' (1-\tau), \quad (\text{A-5})$$

mit $\Delta x = 0.5$ mm. Dabei lag η zwischen 5.8 und 75 mm/ μCi und die Abklingzeiten zwischen 290 und 650 Tagen.

IV.2 Einige Ergebnisse der γ -Spektrometrie

Die über 6.5 mm Probenlänge integrierte Aktivität (bei Bestrahlungsende) betrug 0.02...0.2 μCi für Zn 65, das 3.7fache für

Tabelle 3: Mittels γ -Aktivitätsanalyse gefundene längerlebige Nuklide ;
Aktivitäten bezogen auf 50-MeV Deuteronenfluß $\Phi t = 10^{18} \text{ cm}^{-2}$

Erzeugungsreaktionen	Nuklid	σ_A [10^{-24} cm^2]	Zerfall $T_{1/2}$ [d]	A [nCi/mm]		N_A/N_{Zn65} $t_A = 0$
				$t_A = 291 \text{ d}$	$t_A = 646 \text{ d}$	
Cu 65 (d, 2n)	Zn 65	0,1±0,01	ϵ, β 244	11	3.9	1.00
Cu (63+x) (d, $\alpha p x n$)	Co 60	(~0,01)	β^- 1924	2.5	2.2	0.90
Cu (63+x) (d, $\alpha p (x+2) n$)	Co 58	-	ϵ, β 70.8	20	0.6	3.9
Cu (63+x) (d, $\alpha p (x+3) n$)	Co 57	-	ϵ, e^- 270	7.8	3.8	(0.8)
Nb 93 (d, $\alpha 3 n$)	Zr 88	-	ϵ 83.4	1.6	(0.1)	0.3
Zr 88	Y 88	-	ϵ 108	9.5	(1)	-
Sn (112+y) (d, $\alpha p y n$)	Sn113	-	ϵ 115.1	4.5	0.5	0.5

$x = 0, 2; y = 0, 2, 3, \dots, 8, 10, 12$

$\epsilon = \text{K-Einfang}; e^- = \text{Konversionselektronen}$

Werte in Klammer: Unsicherheit > 20 %

Co 58 ($T_{1/2} = 70.8$ d) und das 0.85fache für Co 60 ($T_{1/2} = 5.27$ a). Dies entspricht etwa $0.2 \cdot 10^{-5}$ langlebigen aktivierten Kernen pro Cu-Atom der bestrahlten CuSn-Bronze-matrix bei $\phi t = 10^{18} \text{ cm}^{-2}$. Die Aktivierung der Nb-Atome des Drahtkerns beträgt etwa 1/3 dieses Wertes. In der Tabelle 3 sind die wichtigsten gefundenen Isotope und eine mögliche Erzeugungsreaktion aufgeführt.

IV.3 Aktivitätsverteilung innerhalb eines Probensatzes

In Abb. A 3 ist die Aktivitätsverteilung innerhalb des Strahlflecks an einem Beispiel (Experiment Nr. 77-6) gezeigt. Man sieht, daß trotz der sorgfältigen Fokussierung mit Hilfe von ZnS - Fluoreszenzschirmen an mehreren Punkten des Strahlverlaufs eine nicht zu vernachlässigende Inhomogenität bestehen bleibt; so variiert die Aktivität z. B. über 70 % der bestrahlten Probenlänge um einen Faktor 2 und innerhalb der Spannungsabgriffe um 40 %. Wie jedoch entsprechende Messungen mit mehreren Spannungsabgriffen (an Probe 1 in diesem Bild) ergeben

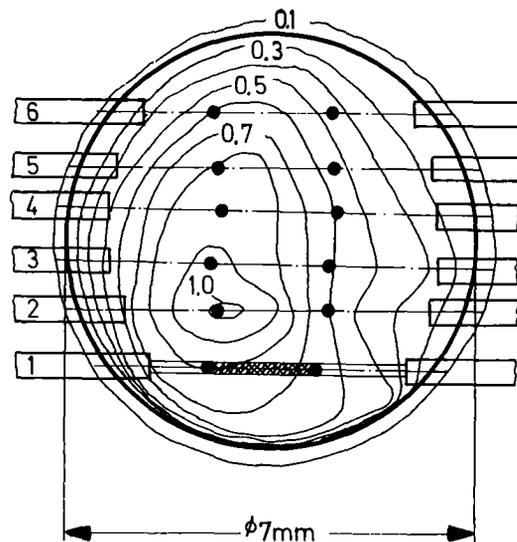


Abb. A3: Normierte Dosisverteilung der Proben nach Bestrahlung (Exp. Nr. 77-6). Die Homogenität im Bereich der Spannungsabgriffe ist besser als 40 %.

haben, löst ein Übergang zur Normalleitung in einem Teilstück der Probe nicht einen Übergang des ganzen Leiters aus (gute Stabilisierung durch den Nb-Kern), so daß nur die Dosis innerhalb der Spannungsabgriffe maßgebend ist. In Fällen, in denen jedoch ein großer Teil der Probe vorzeitig normalleitend wird, steigt der Meßfehler entsprechend an (stark vergrößerte Stromaufnahme des Shunts).

Bei der Integration der Aktivität über den Strahlfleck ergibt sich eine Abweichung gegenüber dem experimentell ermittelten Gesamtfluß, und zwar für $t_A = 291 \text{ d} : \Delta\eta = -35.3 \%$, $t_A = 326 \text{ d} : \Delta\eta = -29.7 \%$, $t_A = 446 \text{ d} : \Delta\eta = -16.8 \%$. Der Korrekturfaktor klingt mit $T_{1/2} \approx 443 \text{ d}$ ab und entspricht einem kurzlebigen Anteil mit $T_{1/2} \approx 81.4 \text{ d}$ (etwa Zr 88, s. Tab. 3). Die entsprechende Korrektur der Φt - Werte wurde durchgeführt.

Anhang V

Liste der verwendeten Symbole

A	Aktivität pro Längeneinheit des Drahtes
A_o	Gesamtaktivität an Zn 65 nach Gammaskopie-
	metrie
A'	Proportionalitätskonstante
a_o, a_G	Flußliniengitterkonstante, Kristallgitter-
	konstante
a_i, a', β'	Fitparameter bei Radiografieauswertung
α, β	Koeffizienten für Näherung des $T_c - B_{c2}$ -Zusam-
	menhangs
B, B_{c2}	Induktion, oberes kritisches Feld
B_{c20}, B_{c2m}	oberes kritisches Feld vor Bestrahlung, ge-
	schätzter Wert für Proben hoher Reinheit
b, b_{max}	reduziertes Feld, im Maximum der Volumenpin-
	ningkraft
c_D	Konzentration fehlbesetzter Nb-Gitterplätze
c, c' , const.	Proportionalitätskonstanten
c_{66}	Schermodul des Flußliniengitters
D	optische Dichte
d, ∂	Differentialzeichen
δ, Δ	Intervall, Intervall oder Änderung
d_s, d_K	Schichtdicke, Korngröße
d_{cl}	Durchmesser Defektcluster
E_1, E_2	kinetische Energie Deuteron, primär gestos-
	senes Atom
E_m, \bar{E}	maximale, mittlere übertragene Energie
E_d, E_r	Verlagerungsenergie, Schwellenergie Ersetzungs-
	stoß
e	Elementarladung
η	Effektivitätsfaktor bei Aktivierung
f_o, F	Formfaktor, Querschnittsfläche
f_2	normierte strahleninduzierte Volumenpinningkraft
f (b)	Abhängigkeit der Volumenpinningkraft vom redu-
	zierten Feld

Φt	über die Zeit integrierter Deuteronenfluß
H_c	thermodynamisches kritisches Feld
i, j	Zählindices
I_c, j_c	kritischer Strom, kritische Stromdichte
K, K_0	Diffusionskoeffizienten
k	Wirkungsquerschnitt für Erzeugung von Fehlbesetzungen
k'	Effektivitätsfaktor bei Kaskadenbildung
$-\tilde{k}, -\tilde{k}_i$	mittlerer Wert der Steigung von $\ln P_{Vmax}$ über Φt , Einzelwerte
\tilde{k}_R	rechnerisch abgeschätzte Steigung $\partial \ln P_{Vmax} / \partial \Phi t$
κ	Ginzburg-Landau Parameter
$\kappa(D)$	Exponent bei Belichtungszeit
l_F	Flußschlauchlänge
λ, λ_0	renormierte Elektron-Phonon-Kopplungskonstante mit, ohne Strahlenschädigung
m', m'_i	mittlere Steigung von $\ln P_{Vmax}$ über $\ln \Phi t$, Einzelwerte
M_1, M_2	Atomgewicht Deuteron, primär gestoßenes Atom
m, n, n'	Konstanten
n_V, n_{Cl}^*	Volumendichte an Defektclustern, beim angegebenen Φt -Wert
n_{Cl}	Anteil an Defektclustern normiert auf Frenkelpaardichte
n_L	Linienendichte von Korngrenzen
μ_0	Induktionskonstante
$\nu, \nu', \bar{\nu}'$	Kaskadenfaktor, mit Ersetzungsstößen, Mittelwert
$N(S)$	Zustandsdichte an der Fermikante als Funktion der Ordnung S
P_V, P_{Vmax}, P_{V0}	Volumenpinningkraft, im Maximum von $f(b)$, vor Bestrahlung
P_{V1}, P_{V2}	Korngrenzen-, Bestrahlungsanteil von P_{Vmax}
p_{max}	maximale Einzelpinningkraft ohne andere Pinningzentren
$p_m(R/a_0), \bar{p}_m$	p_{max} nach Berechnungen ⁴⁰⁾ für kugelförmige normaleitende Ausscheidungen als Funktion vom normierten Radius, Mittelwert

Q	Aktivierungsenergie
q	Steigung von $\ln T_c$ über S
Q_K, Q_S	effektive Pinningkraft je Korngrenze, Strahlenpinningzentrum
R	Gaskonstante
R_N	Restwiderstand bei 19 K
r, s	Konstanten
$S, S_o, S_{\text{gesamt}}$	Ordnung bei Bestrahlung, vor Bestrahlung, Summe
$S_{y.x}$	Standardabweichung der y -Werte gegenüber der Schätzung aus den x -Werten (Standardschätzfehler der Regressionsgeraden)
σ, σ_A	Wirkungsquerschnitt für Atomverlagerung, für Aktivierung
T, T_R	Temperatur, Reaktionstemperatur
t, t_R	Zeit, Reaktionszeit
$T_{1/2}, t_A$	Halbwertszeit, Abklingzeit
t_B, τ	Belichtungszeit, diese enthaltender Koeffizient
T_c, T_{co}, T_{cm}	Übergangstemperatur, vor Bestrahlung, geschätz- ter Maximalwert
V	Volumen eines Defektclusters
x	Längenkoordinate
ξ	Kohärenzlänge
Z_1, Z_2	Kernladung Deuteron, primär gestoßenes Atom

Literaturhinweise

- 1) E. Seibt, private Mitteilung
- 2) C. H. Dustmann, et al., "Supraleitertechnologie für Fusionsmagnete", zus. von E. Seibt, KFK 2395, 27, Karlsruhe, 1976
- 3) M. A. Abadou, J. Nucl. Mat. 72, 147 (1978)
- 4) W. Heinz, E. Seibt, "Radiation Damage in Superconducting Materials", 6th Intern. Conf. on Magnet Technology, Bratislava (1977)
- 5) A. M. Campbell, Phil. Mag. B37, 149 (1978)
- 6) B. S. Brown, "Radiation Effects on Superconductivity", in Radiation Damage in Metals, eds. N. L. Peterson, S. D. Harkness, Am. Soc. for Metals, Ohio, 1976
- 7) M. Fähnle, phys. stat. sol. (b) 84, 541 (1977)
- 8) E. J. Kramer, J. Appl. Phys. 44, 1360 (1973)
- 9) M. W. Thompson, Defects and Irradiation Damage in Metals (Kap. V), University Press, Cambridge, 1969
- 10) M. Söll, K. Böning, H. Bauer, J. Low. Temp. Phys. 24, 631 (1976)
- 11) B. T. Kelly, Irradiation Damage to Solids, S. 56, Pergamon Press, 1966
- 12) H. T. Coffey, E. L. Keller, A. Patterson, S. H. Autler, Phys. Rev. 155, 355, (1967)
- 13) H. Ruoss, Diplomarbeit, Universität Karlsruhe (1976)
- 14) M. L. Jenkins, H. Williams, Phil. Mag. 34, 1155 (1976)
- 15) C. S. Pande, phys. stat. sol. (a) 52, 687 (1979)
- 16) N. Q. Lam, J. Nucl. Mat. 56, 125 (1975)
- 17) L. R. Aronin, J. Appl. Phys. 25, 344 (1954)
- 18) C. S. Pande, Sol. State Commun. 24, 241 (1977)
- 19) R. v. Jan, phys. stat. sol. 6, 925 (1964)
- 20) P. Maier, H. Ruoss, E. Seibt, "Strahlenresistenzverhalten von A15-Supraleitern", Verhandl. DPG (VI) 11, 712 (1976) sowie: W. Maurer, "Entwicklungen auf dem Gebiet der Hochstromsupraleitung im Kernforschungszentrum Karlsruhe" (Kap. II. 3), KFK 2290, Karlsruhe, 1976

- 21) H. H. Farrell, G. H. Gilmer, M. Suenaga, J. Appl. Phys. 45, 4024 (1974)
- 22) J. D. Livingston, phys. stat. sol. (a) 44, 295 (1977)
- 23) W. Schelb, Diplomarbeit, Universität Karlsruhe (1978)
- 24) E. J. Kramer, J. Nucl. Mat. 72, 5 (1978)
- 25) R. M. Scanlan, W. A. Fietz, E. F. Koch, J. Appl. Phys. 46, 2244 (1975)
- 26) G. Rupp, J. Appl. Phys. 48, 3858 (1977)
- 27) J. W. Ekin, IEEE Transact. on Magn. Mag-15, 169 (1979)
- 28) T. L. Luhman, M. Suenaga, IEEE Transact. on Magn. MAG-13, 800 (1976)
- 29) H. Becker, K. H. Katheder, E. Seibt, S. Steinacker, KFK 1684, Karlsruhe, 1972
- 30) E. Seibt, IEEE Transact. on Magn. Mag-11, 174 (1975)
sowie: K.-R. Krebs, P. Maier, E. Seibt, KFK 1996, Karlsruhe, 1974 und: P. Maier, Diplomarbeit, Universität Karlsruhe, 1974
- 31) A. W. Rogers, Techniques of Autoradiography, Elsevier, Amsterdam, 1969 sowie: H. Schülken, Kerntechnik 8/9, 365 (1974)
- 32) A. R. Sweedler, D. G. Schweitzer, G. W. Webb, Phys. Rev. Lett. 33, 168 (1974)
- 33) B. Besslein, G. Ischenko, Sol. State Comm. 19, 867 (1976)
- 34) R. N. Bhatt, Phys. Rev. B16, 1915 (1977)
- 35) I. Nakayama, J. Phys. Soc. Japan 43, 1533 (1977)
- 36) B. T. Matthias, Supercond. in d- and f-Band Metals, AIP Conf. Proc. 4, 365, ed. D. H. Douglass, New York, 1972
- 37) L. R. Testardi, J. M. Poate, H. J. Levinstein, Phys. Rev. Lett. 37, 637 (1976) sowie: L. R. Testardi, Rev. Mod. Phys. 47, 637 (1975)
- 38) J. Appel, Phys. Rev. B13, 3203 (1976)
- 39) W. L. McMillan, Phys. Rev. 167, 331 (1968)
- 40) M. Fähnle, H. Kronmüller, J. Nucl. Mat. 72, 249 (1978)
sowie: M. Fähnle, Doktorarbeit, Universität Stuttgart, 1977
- 41) C. S. Pande, J. Nucl. Mat. 72, 249 (1978)
- 42) R. E. Somekh, J. Phys. F 5, 713 (1975)
- 43) T. P. Orlando, E. J. Niff, Jr., S. Foner, M. R. Beasley, Phys. Rev. B 19, 4545 (1979)

- 44) A. R. Sweedler, C. L. Snead, L. Newkirk, F. Valencia, D. M. Parkin, T. H. Geballe, R. H. Schwall, B. T. Matthias, E. Corenswit, Conf. on Rad. Eff. and Tritium Techn. for Fusion Reactors, Gatlinburg, Tenn., USA, Oct. 1975, eds. J. S. Watson, F. W. Wiffen, USERDA, 1976
- 45) M. Fähnle, phys. stat. sol. (b) 92, K 127 (1979)
- 46) P. Maier, E. Seibt, J. Nucl. Mat. 72, 147 (1978)
- 47) E. J. Kramer, private Mitteilung, 1978
- 48) W. Decker, J. Diehl, P. Maier, E. Seibt, to be publ.
- 49) J. Labbé, J. Friedel, J. de Physique 27, 153 (1966)
- 50) J. Labbé, E. C. van Reuth, Phys. Rev. Lett. 24, 1232 (1970)
- 51) A. Junod, J. Phys. F 8, 1891 (1978)

Herrn Prof. Dr. W. Heinz möchte ich danken für die Möglichkeit zur Durchführung und sein förderndes Interesse an dieser Arbeit sowie für die jederzeit gewährte Unterstützung.

Meinem Betreuer Herrn Dr. E. Seibt danke ich für viele Anregungen und kritische Hinweise sowie für die gute Zusammenarbeit bei den Bestrahlungsmessungen.

Den Herren A. Heneka, J. Pytlik und H. Becker danke ich für wertvolle technische Unterstützung, ohne die die Bestrahlungsexperimente nicht möglich gewesen wären.

Für Diskussion und Unterstützung danke ich Herrn Dr. H. Küpfer und den Herren Dipl. Phys. T. Brodbeck und Dipl. Phys. H. Ruoss.

Frau Ansbach danke ich für das sorgfältige Schreiben der Arbeit.

Weiter bedanke ich mich:

- bei der Betriebsgruppe des Karlsruher Isochronzyklotrons unter der Leitung von Herrn Dr. H. Schweickert für die Bereitstellung des Strahls,
- bei Herrn Dr. H. Hillmann und Herrn Dr. E. Springer von der Firma VACUUMSCHMELZE GmbH, Hanau für bereitgestellte Nb₃Sn-Proben und für unterstützende Diskussion,
- bei Herrn Dr. E. Gantner vom Institut für Radiochemie des Kernforschungszentrums unter der Leitung von Herrn Prof. Dr. W. Seelmann-Eggebert für die γ -Aktivitätsanalyse,
- bei Herrn Dipl. Phys. P. Pfundstein vom Laboratorium für Elektronenmikroskopie der Universität Karlsruhe unter der Leitung von Herrn Dr. L. Albert für die Untersuchungen am Rasterelektronenmikroskop,
- bei der elektronischen Werkstatt unter Herrn J. Bröckl und der mechanischen Werkstatt unter Herrn R. Böhmer.