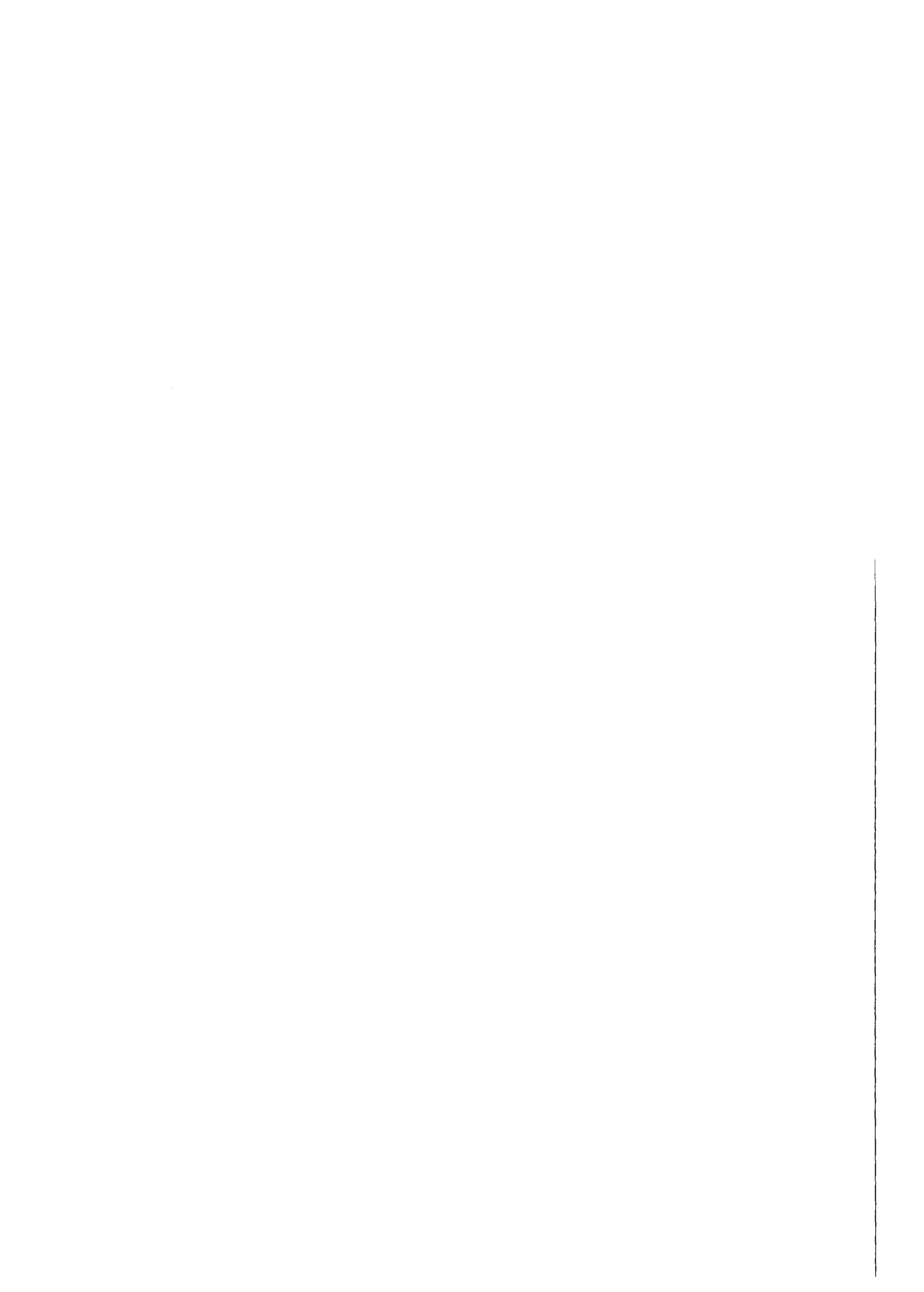


KfK 3205  
August 1981

**Untersuchung struktureller  
Verzerrungen in  
NbC<sub>x</sub>-Einkristallen mit  
Hilfe temperaturabhängiger  
Channeling-Messungen**

R. Kaufmann  
Institut für Angewandte Kernphysik

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Institut für Angewandte Kernphysik

KfK 3205

Untersuchung struktureller Verzerrungen in  
 $\text{NbC}_x$ -Einkristallen mit Hilfe temperaturabhängiger  
Channeling-Messungen\*

R. Kaufmann

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

## ABSTRACT

### UNTERSUCHUNG STRUKTURELLER VERZERRUNGEN IN $\text{NbC}_x$ -EINKRISTALLEN MIT HILFE TEMPERATURABHÄNGIGER CHANNELING-MESSUNGEN

Es wurde die Größe statischer Auslenkungen der Niob- und Kohlenstoff-Atome in der Umgebung von C-Leerstellen in  $\text{NbC}_x$ -Einkristallen ( $x = 0.82 - 0.98$ ) mit Hilfe von Channeling-Experimenten untersucht. Zur Bestimmung der Ausbeute durch Wechselwirkung mit Nb und C wurde die Methode der Rutherford-Rückstreuung mit 2 MeV- $\text{He}^+$ -Teilchen bzw. die  $^{12}\text{C}(d,p)^{13}\text{C}$ -Kernreaktion mit 1.27 MeV Deuteronen verwendet.

Als Funktion der Temperatur nahmen die Halbwertsbreiten  $\psi_{1/2}$  der winkelabhängigen Ausbeutekurven für Nb von 295 K nach 78 K deutlich zu und blieben dann bis 4 K nahezu konstant. Als Funktion der C-Leerstellenkonzentration nahm  $\psi_{1/2}$  im Bereich  $x = 0.98 - 0.90$  stark ab und blieb dann im Bereich  $x = 0.90 - 0.82$  etwa konstant. Die Ausbeute für C zeigte keine C-Konzentrationsabhängigkeit.

Die Ergebnisse der Channeling-Experimente wurden mit Hilfe von Monte-Carlo-Simulationsrechnungen interpretiert.

Im Konzentrationsbereich  $x = 0.98 - 0.90$  zeigte sich ein linearer Anstieg der mittleren statischen drei-dimensionalen Auslenkungen der Nb-Atome von  $0.025 \text{ \AA}$  auf  $0.10 \text{ \AA}$ ; im Bereich  $x = 0.90 - 0.82$  blieben die Werte dann etwa konstant. Die statischen Auslenkungen der C-Atome lagen unter der Nachweisgrenze von  $0.025 \text{ \AA}$ .

Für geringe Leerstellenkonzentrationen ( $x = 0.98 - 0.96$ ) wurde nach der Kanzaki-Methode das Verzerrungsfeld in der Umgebung einer Leerstelle berechnet. Die Kanzaki-Kräfte wurden aus der Änderung des Gitterparameters als Funktion der Leerstellenkonzentration bestimmt. Gemäß dem berechneten Verzerrungsfeld wurde bei den Simulationsrechnungen ein Defektmodell verwendet, das Verlagerungen von  $0.11 \text{ \AA}$  für die (1,0,0)-Nb-Nachbarn einer Leerstelle und von  $0.03 \text{ \AA}$  für die (3,0,0)-Nb-Nachbarn aufwies. Die Simulationsrechnungen ergaben Halbwertsbreiten  $\psi_{1/2}$ , die mit den experimentellen Daten übereinstimmten.

Im Konzentrationsbereich  $x = 0.92 - 0.82$  wurde ein Defektmodell verwendet, bei dem alle Nb-Atome um einen festen Betrag verlagert waren. Durch Anpassung an die experimentellen Ergebnisse ergaben sich statische Auslenkungen von  $0.095 \text{ \AA}$ .

INVESTIGATION ON STRUCTURAL DISTORTIONS IN  $\text{NbC}_x$ -SINGLE CRYSTALS BY  
MEANS OF TEMPERATURE DEPENDENT CHANNELING MEASUREMENTS

Investigations using channeling-experiments were performed on the magnitude of the static displacements of the niobium and the carbon atoms around C-vacancies in  $\text{NbC}_x$ -single crystals ( $x = 0.82 - 0.98$ ). Rutherford backscattering with 2 MeV  $\text{He}^+$ -particles and the  $^{12}\text{C}(d,p)^{13}\text{C}$ -nuclear reaction with 1.27 MeV deuterons were used for the determination of the interaction yields from Nb and C, respectively.

As a function of temperature the half widths at half maximum  $\psi_{1/2}$  of the angular scans for Nb clearly increased with decreasing temperature in the range from 295 K to 78 K and then remained nearly constant down to 4 K. As a function of C-vacancy concentration in the range  $x = 0.98 - 0.90$   $\psi_{1/2}$  also clearly decreased and then remained approximately constant in the range of  $x = 0.90 - 0.82$ . The C-yield did not depend on the C-concentration.

The results of the channeling experiments were interpreted by Monte-Carlo-simulation calculations.

A linear increase of the mean static three-dimensional displacements of the Nb-atoms from  $0.025 \text{ \AA}$  to  $0.10 \text{ \AA}$  was found in the concentration range of  $x = 0.98 - 0.90$  and then the values remained nearly constant in the range of  $0.90 - 0.82$ . The static displacements of the C-atoms lay below the detection limit of  $0.025 \text{ \AA}$ .

The strain field around a vacancy for low vacancy concentrations ( $x = 0.98 - 0.96$ ) was calculated employing the Kanzaki-method. The Kanzaki-forces were determined from the change of the lattice parameter as a function of the vacancy concentration. In the simulation calculations a defect model was used with displacements of  $0.11 \text{ \AA}$  for the  $(1,0,0)$ -Nb-neighbours of a vacancy and of  $0.03 \text{ \AA}$  for the  $(3,0,0)$ -Nb-neighbours according to the calculated strain field. The simulation calculations yield half widths  $\psi_{1/2}$  which were in agreement with the experimental data.

In the concentration range of  $x = 0.92 - 0.82$  a defect model was used where all Nb-atoms were displaced with a constant value. Static displacements of  $0.095 \text{ \AA}$  were found by fitting to the experimental results.

|  |    |
|--|----|
| EINLEITUNG .....   | 1  |
| 1. THEORETISCHE GRUNDLAGEN .....   | 5  |
| 1.1 Der Channeling-Effekt .....  | 5  |
| 1.1.1 Allgemeine Beschreibung .....  | 5  |
| 1.1.2 Klassische Theorie: Kontinuumsmodell .....                                   | 8  |
| 1.2 Monte-Carlo-Computer-Simulation des Channeling-<br>Experiments .....           | 15 |
| 1.2.1 Grundlagen der Computer-Simulation .....                                     | 15 |
| 1.2.2 Berechnung des Streuwinkels .....  | 18 |
| 1.2.3 Berechnung des Energieverlusts .....   | 22 |
| 1.2.4 Thermische Schwingungen und ihre<br>Simulation im Monte-Carlo-Programm ..... | 28 |
| 1.2.5 Berechnung der Rückstreu- und Kern-<br>reaktionsausbeute .....               | 32 |
| 1.2.6 Berechnung des statistischen Fehlers .....                                   | 34 |
| 2. EXPERIMENTELLE TECHNIK .....  | 35 |
| 2.1 Herstellung der NbC <sub>x</sub> -Proben .....                                 | 35 |
| 2.1.1 Herstellung der NbC <sub>x</sub> -Einkristalle durch<br>Zonenschmelzen ..... | 35 |
| 2.1.2 Bestimmung der Zusammensetzung .....   | 35 |
| 2.1.3 Erhöhung des C-Gehalts durch<br>Ionenimplantation .....                      | 38 |
| 2.1.4 Erhöhung des C-Gehalts durch Nachdiffusion....                               | 40 |
| 2.1.5 Präparation der Einkristalloberflächen .....                                 | 43 |
| 2.2 Das Tieftemperaturgoniometer .....   | 44 |
| 2.2.1 Der Helium-Kryostat .....  | 44 |
| 2.2.2 Steuerung durch einen NOVA-Computer .....                                    | 46 |
| 2.3 Rückstreu- und Kernreaktionsexperimente .....                                  | 54 |
| 2.3.1 Beschreibung der Analysenmethode .....                                       | 54 |
| 2.3.2 Ergänzende Angaben zum Experiment .....                                      | 58 |

|       |  |     |
|-------|--|-----|
| 3.    | ERGEBNISSE UND DISKUSSION .....  | 61  |
| 3.1   | Testuntersuchungen an einem Mo-Einkristall .....   | 61  |
| 3.2   | Channeling-Messungen an NbC <sub>x</sub> -Einkristallen als Funktion der Temperatur .....            | 64  |
| 3.2.1 | Ausbeute durch Streuung an Nb-Atomen .....   | 64  |
| 3.2.2 | Ausbeute durch Streuung an C-Atomen .....  | 70  |
| 3.3   | Analyse durch Monte-Carlo-Simulationsrechnungen .....  | 76  |
| 3.3.1 | Ausbeute durch Streuung an Nb-Atomen .....   | 76  |
| 3.3.2 | Ausbeute durch Streuung an C-Atomen .....  | 83  |
| 3.4   | Bestimmung von mittleren Auslenkungsamplituden in NbC <sub>x</sub> als Funktion der Temperatur ..... | 85  |
| 3.4.1 | Auslenkungsamplituden der Nb-Atome .....   | 85  |
| 3.4.2 | Auslenkungsamplituden der C-Atome .....  | 91  |
| 3.5   | Analyse des Verzerrungsfeldes um eine C-Leerstelle in NbC .....                                      | 93  |
| 3.5.1 | Berechnung des Verzerrungsfeldes nach der Kanzaki-Methode .....                                      | 94  |
| 3.5.2 | Monte-Carlo-Simulation und Vergleich mit dem Experiment .....  | 104 |
| 3.6   | Zusammenfassende Diskussion .....  | 107 |
|       | ANHANG .....   | 114 |
| I     | Beschreibung des Monte-Carlo-Programms .....   | 114 |
| II    | Auswirkung von Mosaikverteilungen auf winkelabhängige Ausbeutekurven .....                           | 116 |
| III   | Berechnung der dynamischen Matrix für die NaCl-Struktur .....  | 118 |
|       | LITERATURVERZEICHNIS .....   | 120 |



## EINLEITUNG

Die Karbide und Nitride der Übergangsmetalle der 4. bis 6. Gruppe des Periodensystems waren bisher Gegenstand einer Vielzahl von experimentellen und theoretischen Untersuchungen in der Grundlagenforschung. Ebenso wichtig ist aber auch ihre Verwendung im Bereich der Technik. Der Grund dafür liegt in ihren ungewöhnlichen physikalischen Eigenschaften. Zum einen sind diese Verbindungen bekannt für die hohen Werte von Schmelzpunkt, Härte und Sprödigkeit, was auch zu der Bezeichnung Hartstoffe geführt hat. Diese Eigenschaften sind im allgemeinen Anzeichen für eine starke kovalente Bindung, die bevorzugt bei nichtmetallischen Materialien auftreten. Zum anderen zeigen die Hartstoffe aber auch metallischen Charakter, was z.B. ihre elektrische und thermische Leitfähigkeit anbelangt. Hier erreichen sie die Werte der entsprechenden Übergangsmetalle. Außerdem sind einige dieser Verbindungen Supraleiter mit zum Teil sehr hohen Übergangstemperaturen,  $T_c$ . So wurden bei  $NbN_{0.7}C_{0.3}$  z.B. Werte von 17.8 K erreicht /1/.

Die Monokarbide der 4. und 5. Gruppe kristallisieren in der NaCl-Struktur. Es ist charakteristisch für die meisten dieser Verbindungen, daß sie sich nur mit einer Mindestkonzentration an Leerstellen im Nichtmetalluntergitter herstellen lassen, wobei aber die NaCl-Struktur über einen großen Konzentrationsbereich der Nichtübergangsmetallatome erhalten bleibt. Bei  $NbC_x$  erstreckt sich dieser Bereich von  $x = 0.98$  bis  $x = 0.73$  /2/.

Die Leerstellen der Nichtübergangsmetallatome in den Hartstoffen stellen einen durch zwei wesentliche Aspekte gekennzeichneten Fehlordnungszustand dar. Erstens stellt sich die Frage nach einer Ordnung der Leerstellen, da sich durch Wechselwirkung der Leerstellen untereinander eine Überstruktur herausbilden kann. Zweitens besteht die Möglichkeit für das Auftreten von Verzerrungsfeldern in der Umgebung der Leerstellen. Diese beiden Phänomene beeinflussen die physikalischen Eigenschaften der Verbindungen. Solange darüber keine Information existiert, kann nur die Änderung physikalischer Eigenschaften als Funktion der Leerstellenkonzentration registriert werden.

Die meisten Karbide zeigen z.B. eine ausgeprägte Abhängigkeit der Schmelztemperatur von der C-Konzentration mit einem Maximum im unterstöchiometrischen Bereich /1/. Der elektrische Widerstand steigt mit

zunehmender Leerstellenkonzentration an. Die Übergangstemperatur zur Supraleitung nimmt mit zunehmender Leerstellenkonzentration stark ab /3,4/. Phononendispersionsmessungen zeigten bei supraleitenden Hartstoffen in den akustischen Phononenzweigen in eng begrenzten Bereichen der Brillouinzone charakteristische Anomalien, die mit zunehmender Leerstellenkonzentration verschwanden /5/. Diese Anomalien konnten durch ein von Weber entwickeltes gitterdynamisches Modell, das sogenannte Doppelschalenmodell, erklärt werden /6/. Die Phononenzustandsdichten für NbC, z.B., zeigten eine leichte Verschiebung zu höheren Frequenzen mit zunehmender C-Leerstellenkonzentration /7/.

CPA-Rechnungen der elektronischen Bandstruktur und Clusterrechnungen wurden z.B. für unterstöchiometrisches NbC durchgeführt /8,9,10/, jedoch wurden Effekte wie die Ordnung von Leerstellen und Verzerrungsfelder in der Umgebung von Leerstellen nicht berücksichtigt.

Zum Verständnis der Änderung der physikalischen Eigenschaften von Hartstoffen mit sich ändernder Leerstellenkonzentration sind Untersuchungen über die langreichweitige Ordnung der Leerstellen und das Auftreten von Verzerrungsfeldern sicherlich sehr angebracht. Für einige Karbide wurden darüber kürzlich erste Ergebnisse veröffentlicht /11/.

In dieser Arbeit sollte am Beispiel NbC speziell die Größe von Relaxationen in der Umgebung von C-Leerstellen untersucht werden. Dazu sind mehrere Methoden geeignet. Die Methoden der diffusen Röntgen- und Neutronenstreuung erlauben es, die Größe von atomaren Verlagerungen in der Umgebung von Leerstellen zu bestimmen. Die Absorption von Röntgenstrahlen, EXAFS (Extended X-Ray Absorption Fine Structure), macht derartige Aussagen ebenfalls möglich. Die beiden letzteren Methoden wurden in /11/ verwendet. Auf Grund von Schwierigkeiten bei der Auswertung der Messungen ergaben sich beträchtliche Unterschiede in den Absolutwerten der Verlagerungen. Aus Debye-Waller-Faktor-Messungen mit Röntgen- oder Neutronenbeugung können mittlere atomare Auslenkungen bestimmt werden, die eine Summe aus dynamischen und statischen Werten darstellen. Führt man derartige Messungen bei tiefen Temperaturen aus, so ist es möglich, den statischen Anteil vom dynamischen Anteil zu trennen. Man erhält hieraus eine statische Auslenkung unter der Annahme, daß alle Atome mit diesem Wert normalverteilt ausgelenkt sind. Solche Messungen wurden für

einige Karbide durchgeführt /12,13,14/, ergaben jedoch zum Teil unterschiedliche Resultate.

Die in der vorliegenden Arbeit verwendete Methode ist das Channeling-Experiment mit schnellen leichten Ionen. Durch Messungen bei 295 K und bei 4 K ist es möglich, mittlere Auslenkungen der Targetatome zu bestimmen und eine Trennung der dynamischen und statischen Anteile durchzuführen. Channeling-Experimente stellen also eine zusätzliche Methode dar, Informationen zu erhalten, wie sie sonst aus Debye-Waller-Faktor-Messungen gewonnen werden. Durch Vergleich der gemessenen Werte mit Computer-Simulationsergebnissen ist es möglich, Aussagen über realistische Defektmodelle des Verzerrungsfeldes um eine C-Leerstelle zu machen. Dadurch kann aus Channeling-Untersuchungen die Größe der Auslenkungen der Atome in der Nachbarschaft einer C-Leerstelle bestimmt werden.

Im ersten Teil der Arbeit werden die theoretischen Grundlagen des Channeling-Experiments dargelegt. Es wird eine allgemeine Beschreibung des Channeling-Effektes auf der Basis der Kontinuumstheorie gegeben. Weiter wird die Berechnung der Größen, die bei einer Monte-Carlo-Computer-simulation des Channeling-Experimentes wichtig sind, wie Streuwinkel, Energieverlust, Rückstreu- oder Kernreaktionsausbeute, sowie die Simulation von thermischen Schwingungen erläutert. Außerdem wird auf die Bestimmung des statistischen Fehlers beim Monte-Carlo-Verfahren eingegangen.

Der zweite Teil der Arbeit beschreibt die experimentelle Technik. Zunächst werden die Herstellung der NbC-Einkristalle durch Zonenschmelzen sowie die verschiedenen Methoden zur Bestimmung der Zusammensetzung erläutert. Dann wird der Prozess der Erhöhung des C-Gehalts durch Ionenimplantation und Nachdiffusion dargelegt. In einem weiteren Abschnitt folgt eine Beschreibung des für die Channeling-Experimente verwendeten Tieftemperaturgoniometers. Anschließend wird die Analysenmethode der in dieser Arbeit angewandten Rückstreu- und Kernreaktionsexperimente kurz beschrieben.

Die Ergebnisse der Untersuchungen folgen im dritten Teil. Nach einem kurzen Abschnitt über Testmessungen und -rechnungen an einem Mo-Einkristall werden die Ergebnisse der Channeling-Messungen für die Streuung an Nb- und C-Atomen in  $\text{NbC}_x$  vorgestellt. Danach folgen Resultate von Monte-Carlo-Simulationsrechnungen. Durch Vergleich der experimentellen mit den theoretischen Daten können daraus die mittleren Auslenkungsampli-

tuden der Nb- und der C-Atome bestimmt werden. Nach Subtraktion der dynamischen Amplituden ergeben sich mittlere statische Verlagerungen. In einem weiteren Abschnitt werden die Ergebnisse einer Berechnung des Verzerrungsfeldes um eine C-Leerstelle mit der Kanzaki-Methode dargestellt. Die Ergebnisse von Monte-Carlo-Simulationsrechnungen für verschiedene Defektmodelle werden dann mit den gemessenen Daten verglichen.

## 1. THEORETISCHE GRUNDLAGEN

### 1.1 Der Channeling - Effekt

#### 1.1.1 Allgemeine Beschreibung

Fällt ein Strahl hochenergetischer geladener Teilchen, wie z.B. Protonen oder  $\text{He}^+$ -Teilchen, auf ein einkristallines Target und ist dieser Strahl zugleich parallel zu dicht gepackten Atomketten oder Ebenen ausgerichtet (was gleichbedeutend ist mit niedrigindizierten Kristallrichtungen), so findet man, daß die Eindringtiefe der Teilchen größer ist als beim Beschuß einer gleichen polykristallinen Probe. Gleichzeitig ist bei diesem sogenannten orientierten Einschuß die Ausbeute an Prozessen mit kleinem Stoßparameter, im Vergleich zu den Atomabständen, wie z.B. Rückstreu- oder Kernreaktionsprozessen, erheblich reduziert. Dieses Phänomen wird durch den Channeling-Effekt bewirkt. Seine Entdeckung geschah bei einer Reichweitenberechnung für schwere Teilchen mit Hilfe eines Monte-Carlo-Computersimulationsprogramms durch M.T. Robinson und O.S. Oen im Jahre 1961 /15/. Bald darauf wurde der Effekt bei Messungen der Reichweite schwerer Ionen im keV-Bereich in Einkristallen in Abhängigkeit der Relativorientierung Ionenstrahl-Kristall in Chalk-River /16/ und München /17/ beobachtet. Auch bei Transmissions- und Rückstreuexperimenten mit schnellen Protonen an dünnen einkristallinen Goldfolien in Harwell /18/ wurde der Channeling-Effekt beobachtet.

Der Channeling-Effekt beruht aber nicht nur auf der Transparenz eines Einkristalls in niedrigindizierten Kristallrichtungen. In diesem Fall wäre nämlich der kritische Winkel  $\psi_c$ , d.h. der maximale Kippwinkel, unter dem die Teilchen gegen die niedrigindizierte Kristallachse einfallen dürfen, um noch dem Channeling-Effekt zu unterliegen, rein geometrisch bestimmbar und für eine Kristalltiefe von  $1 \mu\text{m}$  kleiner als  $0.004$  Grad. Auch erwartete man keine Energieabhängigkeit. Beides steht im Gegensatz zum Experiment, das z.B. für  $2 \text{ MeV-He}^+$ -Teilchen kritische Winkel von  $1^\circ$  liefert. Channeling wird daher tatsächlich durch einen Führungseffekt der Atomketten oder Ebenen erzeugt. Die Bewegung geladener Teilchen, die dem Channeling-Effekt unterliegen, findet unter Erhaltung der transversalen Energie  $E_\perp$  in Bezug auf die reflektierende Atomkette statt:

$$U(\vec{r}) + E \cdot \psi^2(\vec{r}) \equiv E_\perp = \text{const.} \quad (1.1)$$

$\vec{r}$  ist der Einfallswinkel des Ions in der Transversal- oder Querebene,  $U(\vec{r})$  stellt das effektive Potential für die Wechselwirkung der Ionen mit den Targetatomen in dieser Ebene dar,  $E$  die kinetische Energie der Ionen,  $\psi(\vec{r})$  den momentanen Winkel zwischen Kettenrichtung und Bahntangente. Hierbei wurde die Beziehung

$$E \cdot \sin^2 \psi \approx E \cdot \psi^2 \quad (\text{für kleine } \psi) \quad (1.2)$$

benutzt. Durch die Eintrittskordinaten ist festgelegt, ob die Teilchenbahn durch den Führungseffekt bestimmt ist, oder ob das Ion einen genügend kleinen Abstand zur Atomkette erreichen kann, um einen Großwinkelstoß zu erleiden und damit nicht mehr dem Channeling-Effekt unterliegt.

Dieses Prinzip der Erhaltung der transversalen Energie bei der Bewegung eines geführten Teilchens gilt nur für den idealen Kristall. Wird als Target ein perfekter Kristall benutzt, so wird die transversale Energie der Teilchen mit zunehmender Tiefe größer werden und die korrelierte Folge von Kleinwinkelstößen, die den Führungseffekt ausmachen, wird immer größere Ablenkwinkel bewirken, bis das Teilchen irgendwann den Kanal verläßt. Zu diesem als Dechanneling bezeichneten Prozess tragen aber auch Wechselwirkungen mit Elektronen bei oder zum Beispiel andere Störungen des Kristallgitters, wie Fehlstellen und auch Verzerrungen in der Umgebung von Fehlstellen. Eine schematische Darstellung der Vorgänge beim Channeling-Prozess ist in Abb. 1 dargestellt. Teil 1a zeigt eine ideale Kristallstruktur. Ionen, die parallel zu Atomketten einfallen, werden entweder von der ersten Atomlage zurückgestreut oder unterliegen dem Channeling-Effekt und bewegen sich auf Trajektorien mit großer Wellenlänge, bezogen auf die Atomabstände. In Abb. 1 unten links ist das entsprechende Rückstreupektrum eingezeichnet. Als Random-Spektrum wird das Rückstreupektrum bei nicht orientierter Probe bezeichnet. Dieses Spektrum wird gemessen, indem die niedrig indizierte Kristallrichtung um das 10-fache des kritischen Winkels gegen den Teilchenstrahl verkippt und während der Messung um die Oberflächennormale rotiert wird. Es hat sich gezeigt, daß mit diesem Verfahren reproduzierbare Random-Spektren gewonnen werden.

Verkippt man die Einschußrichtung gegen die Kettenrichtung, nimmt auch die Rückstreuerausbeute zu. Integriert man alle Rückstreuereignisse über einen bestimmten Tiefenbereich und trägt diese Zählrate als Funktion des Kippwinkels auf, so erhält man eine sogenannte winkelabhängige Ausbeutekurve, wie in Abb. 1 unten rechts eingezeichnet. Hierbei ist auf die

Random-Ausbeute normiert worden. Die winkelabhängige Ausbeutekurve ist im wesentlichen durch zwei Parameter gekennzeichnet, die minimale Ausbeute bei axialem Einschub,  $\chi_{\min}$ , und die Halbwertsbreite,  $\psi_{1/2}$ . Führen die Atome thermische Schwingungen aus, so ist die ideale Kette etwas gestört, wie es in Abb. 1b als perfekter Kristall in Form einer Momentaufnahme eingezeichnet ist. Dies bedeutet für die Teilchenbahnen, daß die Oszillationen kürzer sind. Teilchen, die ursprünglich die Bedingungen des Channeling-Effekts erfüllten, können jetzt durch den Dechanneling-Prozess den Kanal verlassen. Die Rückstreuerausbeute nimmt zu, die minimale Ausbeute wird größer und die Halbwertsbreite der winkelabhängigen Ausbeutekurven nimmt ab. Einen noch stärkeren Dechanneling-Effekt haben Verzerrungen auf Grund von Gitterfehlstellen, wie es in Abb. 1c gezeigt ist.

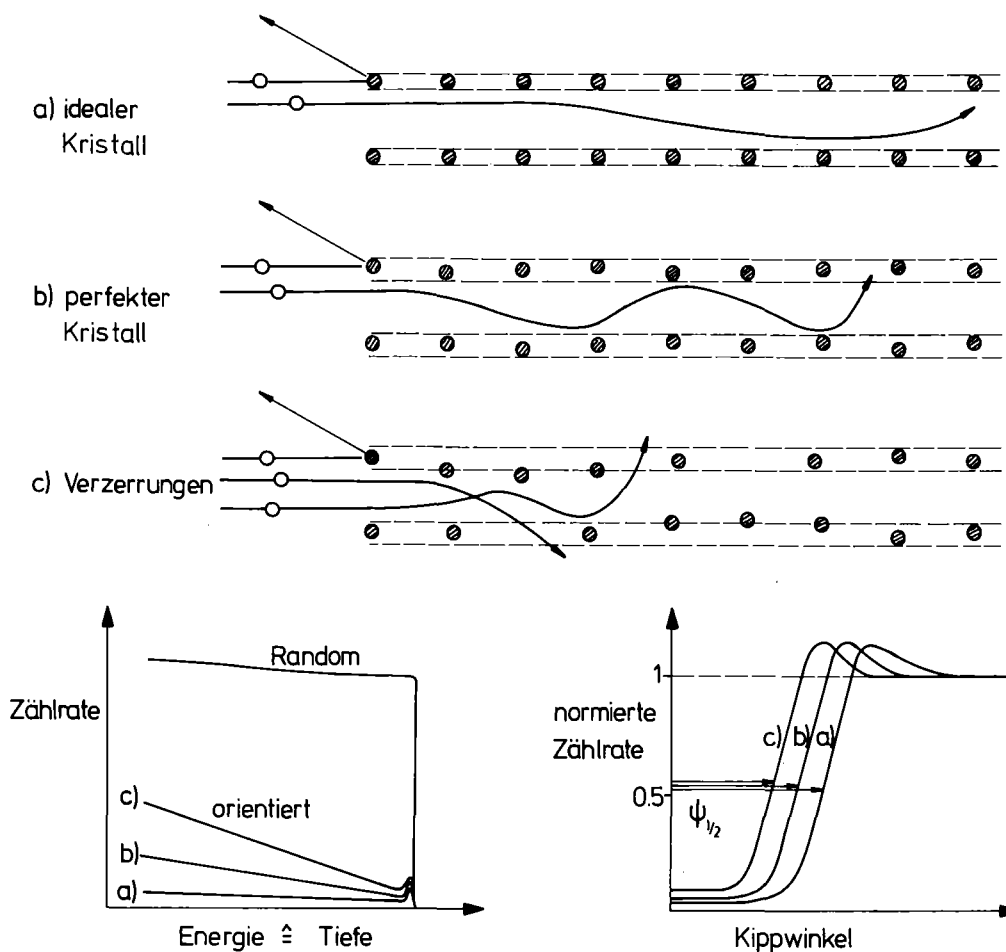


Abb. 1 Prinzip des Channeling-Effekts im idealen und perfekten Kristall sowie bei Vorhandensein von Verzerrungen auf Grund von Fehlstellen. Ebenfalls eingezeichnet sind die entsprechenden Rückstreuenspektren und winkelabhängigen Ausbeutekurven.

Anhand dieser schematischen Darstellung ist zu erkennen, daß der Channeling-Effekt es erlaubt, die Größe von thermischen Schwingungsamplituden und auch die Verzerrungsfelder von Fehlstellen zu bestimmen. Selbstverständlich ist der Channeling-Prozess auch zur Bestimmung anderer Kristallfehler, wie z.B. der Lage von Zwischengitteratomen und Fremdatomen anwendbar. Für ausführliche Informationen sei auf die Werke von Morgan /19/ und Gemmell /20/ verwiesen.

Nachdem die Prinzipien und Anwendungsmöglichkeiten des Channeling-Effekts diskutiert wurden, soll im folgenden Abschnitt versucht werden, den Prozess quantitativ zu beschreiben und die zur Auswertung nötigen Modellannahmen darzustellen.

### 1.1.2 Klassische Theorie: Kontinuumsmodell

Der Führungseffekt von Atomketten und Ebenen auf die Bahn geladener Teilchen wurde zuerst von Lehmann und Leibfried /21/ theoretisch beschrieben und zwar für Teilchen, die sich in der Nähe der Kanalmitte bewegen. Die grundlegende Arbeit für das Verständnis des Channeling-Effekts wurde 1965 von Lindhard veröffentlicht /22/. Im folgenden wird das von ihm vorgestellte Kontinuumsmodell kurz beschrieben.

Zunächst soll jedoch die Anwendbarkeit der klassischen Mechanik diskutiert werden. Bohr /23/ zeigte, daß reine Coulombstreuung eines einfallenden Teilchens mit der Ladung  $Z_1 e$  an einem Teilchen der Ladung  $Z_2 e$  solange klassisch beschrieben werden kann, wie für das Verhältnis  $k$  von Stoßdurchmesser  $R_0 = 2Z_1 Z_2 e^2 / M_1 v^2$  zur de Broglie-Wellenlänge  $\lambda = \hbar / M_1 v$   $k \gg 1$  gilt, wobei  $v$  die Geschwindigkeit des einfallenden Teilchens im Laborsystem darstellt. Lindhard zeigte, daß für abgeschirmte Coulomb-Potentiale die Bedingung in

$$k \gg 1 + (b/a)^2 \quad (1.3)$$

geändert werden muß, wobei  $b$  der Stoßparameter und  $a$  der Thomas-Fermi-Abschirmparameter ist, der bei vollionisierten Einschußteilchen als:

$$a = 0.8853 \cdot a_0 \cdot Z_2^{-1/3};$$

$$a_0 = \text{Bohr-Radius}$$

$$Z_2 = \text{Ladungszahl des Targetatoms}$$

definiert ist. Lindhard bewies, daß für den Channeling-Effekt die klassische Mechanik anwendbar bleibt, solange korrelierte Folgen von Kleinwinkelstößen betrachtet werden, obwohl die Bedingung (1.3) für 5 MeV Protonen,



die auf Si geschossen werden, für den Fall von Einzelstößen, bei denen  $b \sim a$  ist, nicht mehr erfüllt ist.

Der wesentliche Gedanke bei der Einführung des Kontinuumsmodells war, daß die korrelierte Folge von Reflexionen, die von einer Atomkette auf ein schnelles Ion ausgeübt wird, durch einen glatten Potentialschlauch angenähert werden kann, solange ein kritischer Abstand  $\rho_c$  zur Atomkette nicht unterschritten wird. Die Begründung für diese Näherung (die Darstellung folgt einer Arbeit von Sizmann und Varelas /24/) geht von binären Wechselwirkungspotentialen aus, die üblicherweise durch Thomas-Fermi-Potentiale dargestellt werden:

$$V(R) = Z_1 Z_2 e^2 / R \cdot \phi(R/a), \quad (1.4)$$

wobei  $\phi$  die Abschirmfunktion ist,  $Z_1$  die Ordnungszahl des einfallenden Ions und  $Z_2$  die des Targetatoms ist. Die Wechselwirkung des Ions am Ort  $\vec{R}$  mit den Targetatomen erhält man durch Summation über alle binären Wechselwirkungen:

$$U_{\text{Gitter}}(\vec{R}) = \sum_{\vec{T}} V(|\vec{R}-\vec{T}|), \quad (1.5)$$

wobei  $\vec{T}$  die Translationsvektoren des Gitters darstellen sollen. Nimmt man der Einfachheit halber ein primitives kubisches Gitter an und interessiert sich nur für axiales Channeling (Gitterführung entlang einer Atomkette), so kann man  $U$  aufspalten:

$$U(\rho, z) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} V(\sqrt{\rho^2 + (z - nd)^2}) \quad (1.6)$$

Hier ist der Übergang zu Zylinderkoordinaten vollzogen, wobei  $\rho$  der radiale Abstand von der Kette und  $z$  der Abstand entlang der Kette ist;  $d$  ist der Abstand der Atome in der Kette. Da  $U$  eine periodische Funktion in  $z$  ist, kann es als Fourier-Reihe dargestellt werden:

$$U(\rho, z) = 1/d \int_{-\infty}^{\infty} V(\sqrt{\rho^2 + \zeta^2}) d\zeta \{1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} \cos n\omega\zeta \cos n\omega z\} \quad (1.7)$$

mit  $\omega = \frac{2\pi}{d}$ .

Die Terme  $\cos n\omega z$  schwanken zwischen +1 und -1 und heben sich gegenseitig auf, solange die Ablenkung des Teilchens auf einer Wegstrecke der Länge  $d$  sehr klein bleibt. Der kritische Abstand  $\rho_c$  für diese Bedingung ergibt sich /25/:

$$\rho_c = \left( \frac{Z_1 Z_2 e^2 d}{E} \right)^{1/2} \cdot \left( 1 + 0.2 \log \frac{0.2 E a^2}{Z_1 Z_2 e^2 d} \right), \quad (1.8)$$

wobei der 2. Term ungefähr 1 ergibt. Deshalb kann für  $\rho > \rho_c$  Gleichung (1.7) umgeformt werden:

$$U(\rho) = 1/d \int_{-\infty}^{\infty} \sqrt{\rho^2 + \zeta^2} d\zeta \quad (1.9)$$

Dieser Ausdruck wird als Kontinuumspotential bezeichnet.

Bisher wurde nur ein statisches Gitter betrachtet. Läßt man thermische Schwingungen der Targetatome zu, so wird  $\rho_c$  formal geändert zu  $\rho_c^t = \sqrt{\rho_c^2 + \rho_{\perp}^2}$ , wobei  $\rho_{\perp}$  die Projektion der mittleren thermischen Schwingungsamplitude auf die Querebene darstellt.

Setzt man für die Abschirmfunktion in (1.4) die Lindhardsche Näherung/22/:

$$\phi(R/a) = 1 + [1 + (C \cdot a/R)^2]^{-1/2}; C = 3 \quad (1.10)$$

ein, so ergibt sich als Kontinuumskettenpotential:

$$U(\rho) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{d} \cdot \ln \left[ \left( \frac{Ca}{\rho} \right)^2 + 1 \right]$$

Lindhard zeigte, daß die Kontinuumsnäherung gültig ist, wenn die Transversalenergie des einfallenden Ions kleiner als die potentielle Energie im Abstand  $d$  ist. Für die Einfallswinkel  $\psi$  muß dann gelten:

$$\psi < \hat{\psi} = \sqrt{E/E} \text{ mit } E = \frac{2Z_1 Z_2 e^2}{d} \quad (1.11)$$

Der Grenzwinkel  $\hat{\psi}$  ist gültig, solange  $\hat{\psi} < a/d$  bleibt.

Überlagert man diese Einzelkettenpotentiale zu einem Summenpotential, das durch den Beitrag aller einen Kanal umgebenden Ketten gebildet wird und löst die Bewegungsgleichung eines geführten Teilchens für dieses Potential, so erhält man die Flußverteilung der geführten Teilchen, die an Stellen der Potentialminima Maxima aufweist und an Stellen der Potentialmaxima Minima. Abb. 2 zeigt ein solches Summenpotential für den Einschub von 2 MeV  $\text{He}^+$ -Teilchen parallel zur [110]-Richtung in NbC für eine Oberflächeneinheit zelle.

Mit Hilfe der bisher aufgeführten Beziehungen können nun einige wichtige Werte für den Einschub von 2 MeV  $\text{He}^+$ -Teilchen auf NbC in der [110]-Richtung abgeschätzt werden. Die Gültigkeitsgrenze für die Kontinuumsnäherung liegt für den Fall der Nb-Ketten in Bezug auf den Einfallswinkel bei

$$\hat{\psi} = 1.11^\circ < a/d = 2.2^\circ;$$

$$a = 0.119 \text{ \AA}$$

$$d = 3.16 \text{ \AA}$$

Dieser Wert für den kritischen Winkel  $\hat{\psi}$  entspricht einer Querenergie von  $E = 750 \text{ eV}$ . Der dazu gehörige Stoßparameter beträgt  $0.06 \text{ \AA}$ . Der kritische Abstand  $\rho_c$ , berechnet nach (1.8) beträgt  $0.04 \text{ \AA}$  und liegt in der Größen-

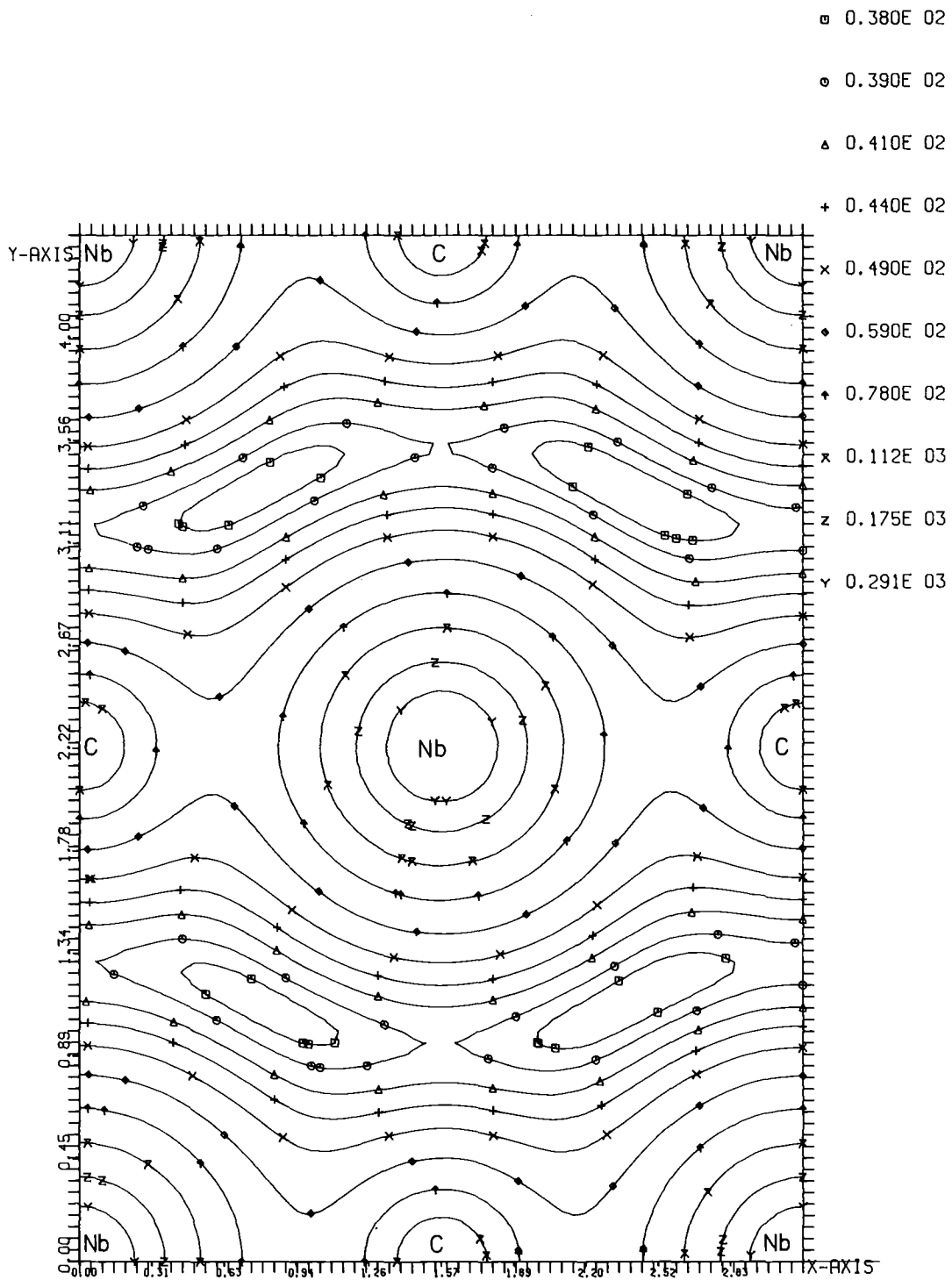


Abb. 2a Kontinuumspotential für  $\text{He}^+ \rightarrow \text{NbC}$ . Als Näherung für die Thomas-Fermi-Abschirmfunktion wurde die Molière-Funktion verwendet. Die Potentialwerte sind in eV angegeben. An den Ecken und in der Mitte befinden sich Nb-Atome, die übrigen Plätze sind von C-Atomen besetzt.

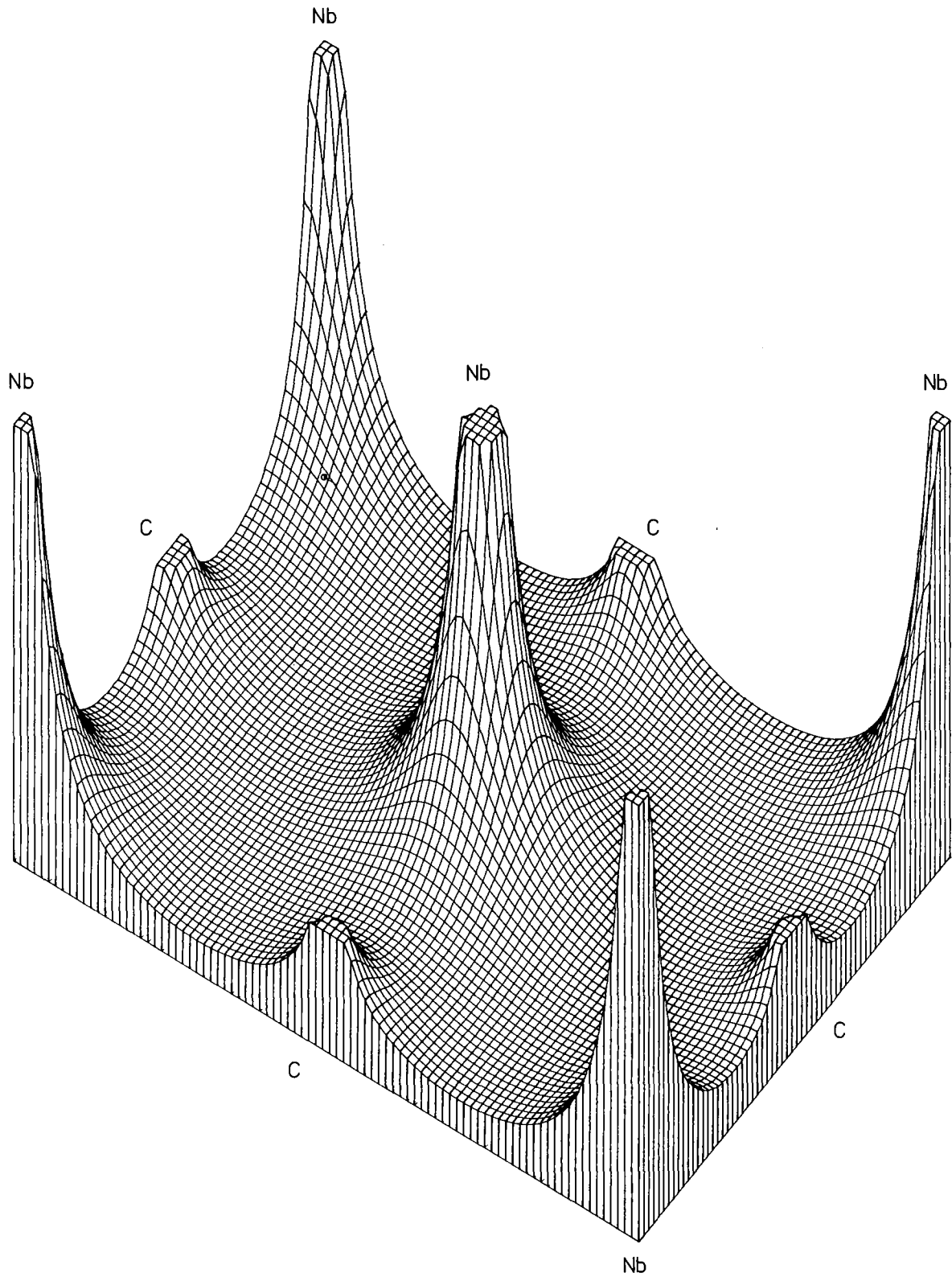


Abb. 2b Kontinuumspotential aus Abb. 2a in dreidimensionaler Darstellung. An den Ecken und in der Mitte befinden sich Nb-Atome, die übrigen Plätze sind von C-Atomen besetzt.

ordnung von thermischen Schwingungsamplituden.

Das Potentialbild in Abb.2a zeigt einen Bereich besonders niedrigen Potentials als breites Band zwischen den Atomketten. Die begrenzenden Potentialwerte zwischen den Kanälen sind 39 eV und 59 eV. Werden diese Werte als maximale Werte der Transversalenergie eines Projektils verstanden, daß es einen Kanal nicht verlassen kann, so ergeben sich daraus maximale Einschußwinkel von  $0.25^\circ$  und  $0.31^\circ$  bei Einschuß in Kanalmitte.

Mit Hilfe der Kontinuumsnäherung lassen sich auch Werte für die sogenannte minimale Ausbeute  $\chi_{\min}$  abschätzen.  $\chi_{\min}$  ist dabei das Verhältnis der Ausbeute eines stoßparameterabhängigen Prozesses bei orientiertem Einschuß zur Ausbeute bei Einschuß in Random-Richtung.  $\chi_{\min}$  bezieht sich auf die Ausbeute an der Oberfläche, schließt jedoch die Teilchen, die direkt von der ersten Atomlage gestreut werden, aus. Nach Lindhard /22/ gilt für das so definierte  $\chi_{\min}$ :

$$\chi_{\min} = Nd\pi (u^2 + a^2) \quad (1.12)$$

N = atomare Dichte des Targets

u = thermische Schwingungsamplitude  $\perp$  zur Kette .

Diese Beziehung läßt sich durch Abschätzung der effektiven Trefferfläche für die eingeschossenen Teilchen an der Oberfläche darstellen.

Für NbC in der [110]-Richtung findet man:

$$\chi_{\min} = 0.032$$

$$\text{mit } N = 8.95 \cdot 10^{22} \text{ At/cm}^3$$

$$\left. \begin{array}{l} u_{\text{Nb}} = 0.05 \text{ \AA} \\ u_{\text{C}} = 0.057 \text{ \AA} \end{array} \right\} \text{ aus einer Berechnung mit Hilfe des Doppelschalenmodells von Weber / 6 / .}$$

Das Kontinuumsmodell stellt eine Möglichkeit dar, Meßgrößen aus Channeling-Experimenten wie kritischen Winkel oder minimale Ausbeute analytisch zu berechnen. Es wurden auch analytische Formeln mit Fitparametern an Ergebnisse von Computersimulationsrechnungen oder an Messungen angepaßt. Dennoch bleibt der Nachteil bestehen, daß das Modell nur für ein statisches Gitter gilt und Effekte wie die Aufstreuung des einfallenden Ionenstrahls durch thermische Schwingungen der Targetatome oder Kleinwinkelstöße mit Elektronen, die zu einer Vergrößerung der Querenergie führen, nicht berücksichtigt. Diese Zunahme der Querenergie mit wachsender Eindringtiefe führt dazu, daß die Wahrscheinlichkeit der Teilchen geführt zu werden abnimmt, und der Effekt des schon beschriebenen

Dechanneling zunimmt. Eine Abnahme der Energie der Ionen durch elektronischen Energieverlust wird ebenfalls nicht berücksichtigt. Alle diese zusätzlichen Effekte bewirken, daß die Halbwertsbreite der winkelabhängigen Ausbeutekurve als Funktion der Eindringtiefe der Teilchen abnimmt und die minimale Ausbeute zunimmt. Auch eine Aufweitung des Strahls beim Durchlaufen einer amorphen Oberflächenschicht (z.B. Oxidhaut) bewirkt eine Vergrößerung der Querenergie und trägt damit zum erhöhten Dechanneling bei.

Alle diese Effekte können mit dem Kontinuumsmodell nicht erfaßt werden, wenn es sich um komplizierte Kristallstrukturen handelt. Die Beschreibung des Channeling-Effekts im Fall von Kristalldefekten ist ebenfalls unmöglich, so daß die Anwendung des Kontinuumsmodells sehr begrenzt bleiben muß.

Die geschilderten Überlegungen führten dazu, neue Modelle einzuführen. Bei der Computer-Simulation durch ein Monte-Carlo-Programm treten die erwähnten Beschränkungen nicht auf; sie macht eine eingehende Defektanalyse erst möglich. Der Vorteil dieser Methode ist weiter, daß die physikalischen Prozesse, welche die Bahn der geführten Teilchen beeinflussen, wie z.B. thermische Schwingungen, elektronischer Energieverlust, Aufstreuung des Strahls durch Stöße mit Elektronen, "an- und abgeschaltet" werden können. So läßt sich die Auswirkung eines bestimmten Parameters auf die Teilchenbahnen bestimmen.

## 1.2 Monte-Carlo-Computer-Simulation des Channeling-Experiments

### 1.2.1 Grundlagen der Computer-Simulation

Computer-Simulationsprogramme zur Berechnung der Trajektorien schneller geladener Teilchen in Festkörpern beruhen meistens auf dem Modell des binären Stoßes. Hierbei wird angenommen, daß die Wechselwirkung eines Ions mit den Atomen des Targets in einer Folge von Einzelstößen beschrieben werden kann, so daß zu jeder gegebenen Zeit eine Wechselwirkung zwischen dem Ion und nur einem einzigen Targetatom stattfindet. Die Computer-Simulationsrechnung verläuft in der folgenden Weise: Ein Teilchen wird auf ein Target geschossen, dessen Kristallstruktur im Rechner gespeichert ist; man sucht den nächstentfernten Stoßpartner, den das Teilchen auf seiner Bahn trifft, berechnet den durch den Stoßparameter bestimmten Ablenkwinkel, findet hierdurch die Bahnasymptote nach dem Streuprozess und sucht jetzt für die geänderte Bahn den nächsten Stoßpartner.

Im Programm werden die Wahrscheinlichkeiten für das Auftreten von Prozessen wie Rutherford-Rückstreuung, Kernreaktionen oder Röntgenanregungen berechnet.

Die Anwendung des Modells des binären Stoßes in einem Programm zur Simulation des Channeling-Prozesses ist schon mehrfach ausführlich beschrieben worden /26,27,28/ und soll hier nur kurz geschildert werden. Bei der Berechnung der Teilchenbahnen beim Channeling-Prozess besteht der wesentliche Unterschied zur Berechnung von Trajektorien in amorphen Targets darin, daß die Streuwinkel der beteiligten Teilchen sehr klein sind und daß die Teilchenbahnen selbst maximal wenige Grad gegen die niedrig indizierte Kristallrichtung, entlang der der Channeling-Effekt erfolgt, geneigt sind. Aus diesem Grund kann die Streueinheit, die meistens durch die Elementarzelle oder eine Projektion der Elementarzelle auf die Channeling-Richtung dargestellt ist, in einzelne Streuebene entsprechend den Netzebenen der Kristallstruktur unterteilt werden, wie es in Abb. 3 für die [110]-Richtung in NbC gezeigt ist.

Üblicherweise wird nur der Streuprozess für das dem geführten Teilchen nächstliegende Atom berechnet mit dem Argument, daß für kleine Stoßparameter, also große Streuwinkel, wegen der stark ortsabhängigen Streupotentiale nur ein Atom den Hauptbeitrag liefert. Außerdem sei für mehrere Atome im gleichen Abstand wegen des kleinen Ablenkwinkels der Fehler nicht sehr groß, wenn nicht an allen

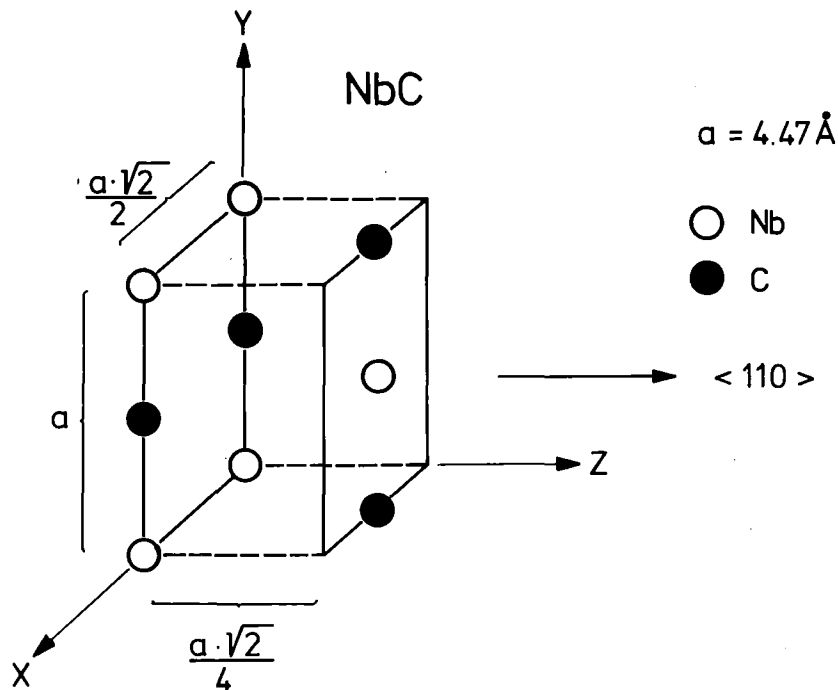


Abb. 3 Verwendete Streuzelle für NbC in der  $[110]$ -Richtung

gestreut wird. In dieser Arbeit wurde diese Schwierigkeit dadurch umgangen, daß die Streuprozesse mit allen umgebenden Atomen einer Ebene berechnet wurden und der tatsächliche Streuwinkel sich durch Summation über alle Einzelstreubeiträge gewinnen ließ. Es wurden also mehrere Stöße hintereinander gerechnet, aber durch die Summation wurden die Stöße als gleichzeitig geschehen betrachtet. Es kann gezeigt werden, daß diese Prozedur im Rahmen der Impulsnäherung, die in 1.2.2 näher beschrieben ist, gültig ist.

Das Ziel bei der Simulation des Channeling-Effekts in einem Kristall ist es, die Orts- und Energieverteilungen der geführten Teilchen zu erhalten und damit die Ausbeute an Rückstreuprozessen und Kernreaktionen. Man läßt zur Berechnung dieser Größen eine feste Zahl von Teilchen (bei den hier vorgestellten Rechnungen meist 428 Teilchen) auf die erste Ebene der Streuzelle einfallen, wobei diese Ebene entsprechend der Zahl an Teilchen in kleine Rechtecke unterteilt wird und auf jedes dieser Rechtecke ein Teilchen mit vorgegebener Energie und Impuls geschossen wird.

Der Querimpuls der Teilchen wird entsprechend der gewählten Einschußrichtung durch zwei Winkel  $\phi$  und  $\psi$  bestimmt.  $\phi$  stellt die Neigung



der durch Einschußrichtung und  $[110]$ -Richtung des Kristalls aufgespannten Ebene gegen die  $\{001\}$ -Ebene dar, wie es in Abb. 4 eingezeichnet ist.  $\psi$  bezeichnet den Winkel zwischen Einschußrichtung und  $[110]$ -Richtung, also der Kanalachse;  $\psi$  wird als Kippwinkel bezeichnet.

Eine dünne amorphe Oberflächenschicht kann simuliert werden, indem die Querimpulse mit einer entsprechenden Halbwertsbreite normalverteilt gewählt werden. Bei den in dieser Arbeit vorgestellten Rechnungen wurde diese Methode nicht angewandt, da die Oxidhaut der gemessenen NbC-Kristalle höchstens  $50 \text{ \AA}$  dick war. Die Aufstreuung durch eine so dünne Oberflächenschicht trägt jedoch nur unwesentlich zum Dechanneling bei.

Die Orts- und Energieverteilungen der geführten Teilchen werden im gleichen Raster registriert wie es beim Start der Teilchen benutzt wird. Zur Verbesserung der Statistik auf Kosten der Auflösung kann hierbei noch über mehrere Atomlagen gemittelt werden. Die genaue Beschreibung der Berechnung aller sich aus der Simulation ergebenden Parameter wie Streuwinkel, Energieverlust und momentaner Aufenthaltsort der Targetatome geschieht in den folgenden Kapiteln.

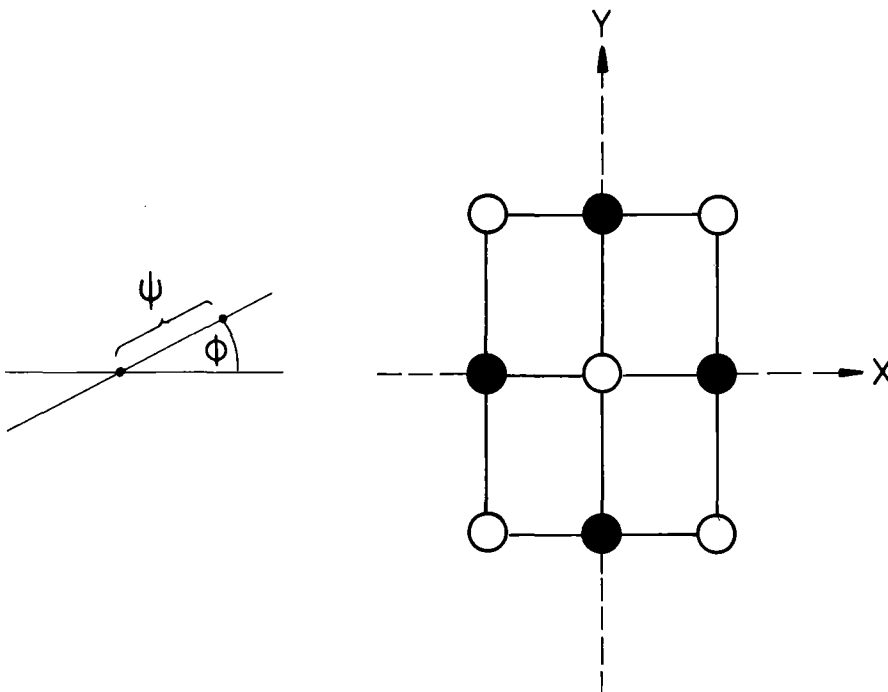


Abb. 4 Bedeutung der Einschußwinkel  $\phi$  und  $\psi$ .  $\phi$  stellt die Neigung der Kippebene gegen die  $\{001\}$ -Ebene dar,  $\psi$  den Winkel zwischen Einschußrichtung und Kanalachse.

### 1.2.2 Berechnung des Streuwinkels

Die Berechnung der Teilchenbahnen geschieht in folgender Weise:

Ein geladenes Teilchen tritt am Ort  $\vec{r}_i$  mit dem Impuls  $\vec{p}_0$  und mit dem Winkel  $\psi$  zur Kanalachse in die erste Streuebene ein, wie in Abb. 5 dargestellt ist. Durch einen Stoß mit dem Atom, das sich am Ort  $\vec{r}_a$

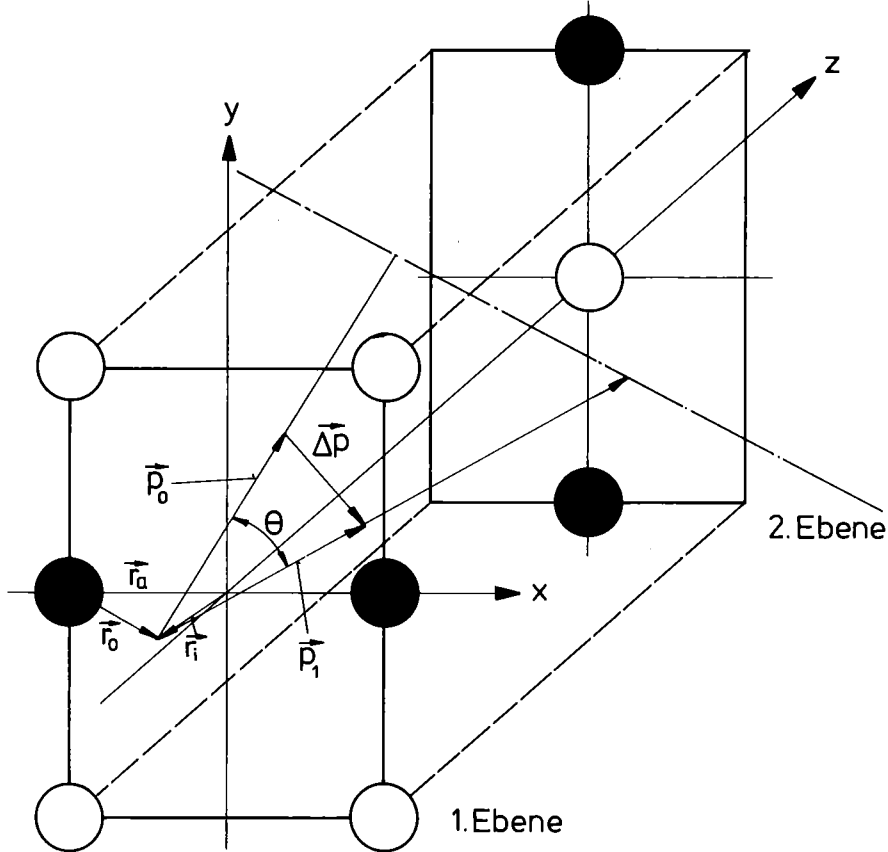


Abb. 5 Geometrie des Streuprozesses beim Stoß eines einfallenden Teilchens mit einem Gitteratom

befindet, wird es in der durch  $\vec{r}_0$  und  $\vec{p}_0$  aufgespannten Ebene um den Winkel  $\theta$  abgelenkt. Details des Streuprozesses sind in Abb. 6 nochmals herausgezeichnet. Die Papierebene ist hierbei die Ebene, in der der Streuprozess stattfindet. Der Schnittpunkt der Bahnasymptoten stimmt i. a. nicht mit dem Schnittpunkt der Asymptote des einlaufenden Teilchens mit der Atomebene überein. Es soll jedoch gezeigt werden, daß diese Abweichung bei der Berechnung der Bahnen geführter Teilchen vernachlässigt werden kann. Zur Berechnung der Abweichung dienen die zwei Größen  $\Delta_1$  und  $\Delta_2$ . Der Stoßparameter sei  $s$ . Dann ergibt sich für  $\Delta_2$ :

$$\Delta_2 = s \cdot \tan \psi \quad (1.13)$$

Weiter kann gezeigt werden, daß für  $\Delta_1$  folgende Beziehung gilt:

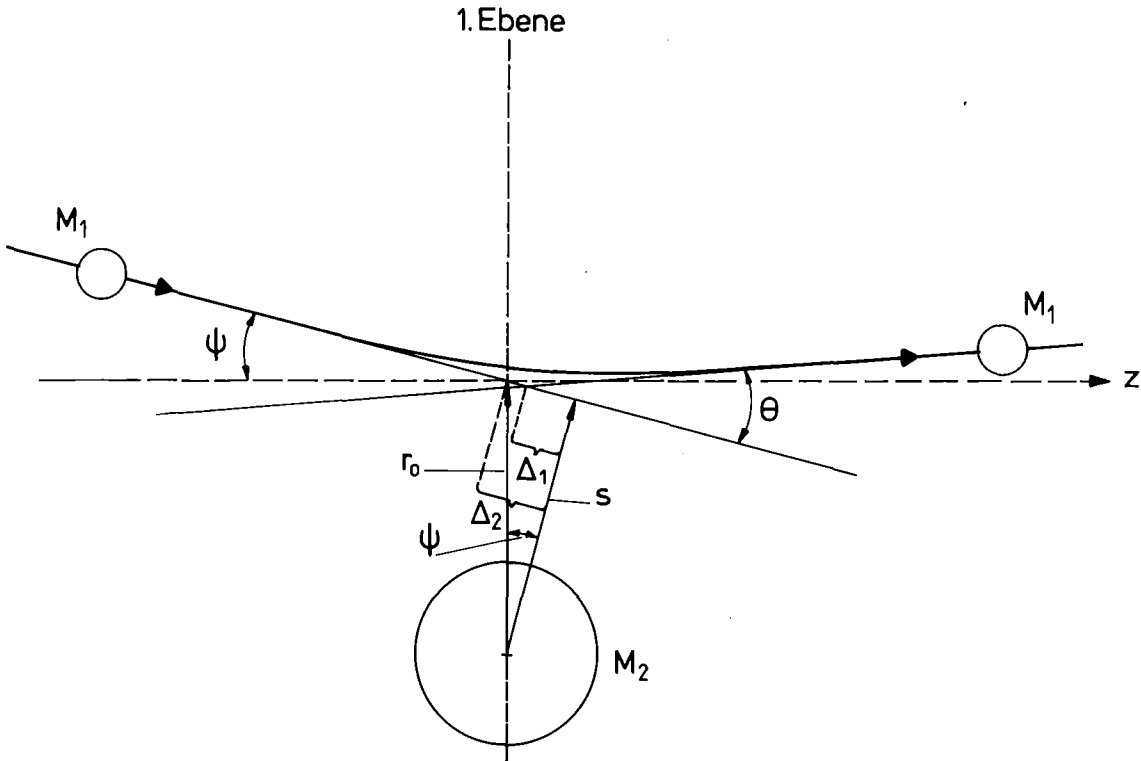


Abb. 6 Geometrie zur Berechnung der Bahnasymptoten nach dem Streuprozess

$$\Delta_1 = \frac{2M_1 \cdot \tau}{M_1 + M_2} + \frac{M_2 - M_1}{M_1 + M_2} \cdot s \cdot \tan \frac{\Theta_s}{2} \quad (1.14)$$

$M_1$  = Masse des einfallenden Teilchens

$M_2$  = Masse des Targetatoms

$\tau$  = Zeitintegral

$\Theta_s$  = Streuwinkel im Schwerpunktsystem .

Der Übergang vom Schwerpunkt - zum Laborsystem liefert den Streuwinkel  $\Theta$  durch:

$$\tan \Theta = \frac{\sin \Theta_s}{\cos \Theta_s + M_1/M_2} \quad (1.15)$$

Man sieht, daß für die Näherung  $M_1 \ll M_2$  gilt:

$$\Theta = \Theta_s \quad .$$

Weiter kann in diesem Fall auch der erste Term in (1.14) vernachlässigt werden /26/, so daß gilt:

$$\Delta_2 - \Delta_1 = s \left[ \tan \psi - \frac{M_2 - M_1}{M_1 + M_2} \tan \frac{\Theta}{2} \right] \quad (1.16)$$

Setzt man für  $\psi = 1^\circ$  und  $\Theta = 0.1^\circ$  (das sind für den Fall von geführten Teilchen

realistische Werte), so ergibt die Differenz  $\Delta_2 - \Delta_1 \sim s \cdot 0.01$ . Daraus erkennt man, daß für die in 1.2.1 erwähnten Näherungen bei der Berechnung der Trajektorien schneller leichter Ionen

$$s \approx r_0 \quad \text{und} \quad \Delta_2 \approx \Delta_1$$

gesetzt werden kann. In der Näherung für kleine Streuwinkel  $\theta$  und kleine Winkel  $\psi$  kann die Änderung des Impulses berechnet werden:

$$\Delta p = |\Delta \vec{p}| \cdot \frac{\vec{r}_0}{|\vec{r}_0|} \approx \theta \cdot |\vec{p}_0| \cdot \frac{\vec{r}_0}{|\vec{r}_0|} \quad (1.17)$$

Der neue Impuls des gestreuten Teilchens ergibt sich:

$$\vec{p}_1 = \vec{p}_0 + \Delta \vec{p} = \vec{p}_0 + \theta \cdot |\vec{p}_0| \cdot \frac{\vec{r}_0}{|\vec{r}_0|} \quad (1.18)$$

Verwendet man die Näherung  $|\vec{p}_1| \approx |\vec{p}_0|$ , daß also die Änderung des Vorwärtsimpulses gering ist, und führt relative Impulse  $p_x^{\text{rel}} = p_x / |\vec{p}|$  ein, so ergibt sich damit:

$$\begin{aligned} p_{1x}^{\text{rel}} &= p_{0x}^{\text{rel}} + \theta \cdot x_0/s \\ p_{1y}^{\text{rel}} &= p_{0y}^{\text{rel}} + \theta \cdot y_0/s \end{aligned} \quad (1.19)$$

$$\begin{aligned} x_1 &= x_0 + p_{1x}^{\text{rel}} \cdot d_p \\ y_1 &= y_0 + p_{1y}^{\text{rel}} \cdot d_p, \end{aligned} \quad (1.20)$$

wobei  $d_p$  der Abstand der Atomebenen entlang [110] ist. Zieht man noch thermische Auslenkungen des streuenden Atoms,  $\vec{r}_{\text{th}}$  und Streuung an Elektronen um den mittleren Winkel  $(\bar{\theta}_x, \bar{\theta}_y)$  in Betracht, so ergibt sich endgültig:

$$\begin{aligned} p_{1x}^{\text{rel}} &= p_{0x}^{\text{rel}} + \theta \cdot (x_0 - x_{\text{th}})/s + \theta_x \\ p_{1y}^{\text{rel}} &= p_{0y}^{\text{rel}} + \theta \cdot (y_0 - y_{\text{th}})/s + \theta_y, \end{aligned} \quad (1.21)$$

wobei  $\theta_x, \theta_y$  normalverteilte Werte mit den Mittelwerten  $\bar{\theta}_x, \bar{\theta}_y$  darstellen.  $s$  berechnet sich aus:

$$s = [(x_0 - x_{\text{th}})^2 + (y_0 - y_{\text{th}})^2]^{1/2}.$$

Die z-Komponenten der thermischen Schwingungsamplituden wurden dabei mit dem Argument  $z_{\text{th}} \ll d_p$  vernachlässigt. Diese Vernachlässigung wurde in /27/ überprüft und hat sich als gerechtfertigt erwiesen.

Die Berechnung des Ablenkwinkels beim Stoß eines geführten Teilchens mit einem Targetatom wird innerhalb der klassischen Streutheorie vollzogen. Man betrachtet hierbei die Wechselwirkung zweier Teilchen im abstoßenden Zentralkraftfeld. Im Schwerpunktsystem gilt für den Streuwinkel /29/:

$$\Theta_s = \pi - 2 \int_{r_m}^{\infty} \frac{sdR}{R^2} \frac{1}{[1 - V(R)/E_r - s^2/R^2]^{1/2}} \quad (1.22)$$

$V(R)$  = Potential im Abstand  $R$

$$E_r = \frac{M_2}{M_1 + M_2} \cdot E$$

$r_m$  = minimaler Abstand des Ions zum Targetatom.

Dieses Integral läßt sich analytisch nur für einige Potenzpotentiale lösen. Üblicherweise führt man deshalb eine störungstheoretische Entwicklung nach Potenzen von  $V(R)$  durch /30/:

$$\Theta_s = \sum_{n=1}^{\infty} \Theta_n = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{-2s}{2^n n! E_r^n} \int_s^{\infty} \frac{dR}{(R^2 - s^2)^{1/2}} \left\{ \frac{d}{dR} \cdot \frac{1}{R} \right\}^n V^n(R) R^{2n-1} \quad (1.23)$$

Gleichung (1.23) kann man umschreiben in:

$$\Theta_s = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{-2}{2^n n! E_r^n} \left\{ \frac{d}{ds} \cdot \frac{1}{s} \right\}^n \int_0^{\infty} (\xi^2 + s^2)^{n-1} V^n(\sqrt{\xi^2 + s^2}) d\xi \quad (1.24)$$

Werden alle Terme mit  $n \geq 2$  vernachlässigt, so erhält man:

$$\Theta_s = \Theta_1 = - \frac{1}{E_r} \frac{d}{ds} \int_0^{\infty} V(\sqrt{\xi^2 + s^2}) d\xi \quad (1.25)$$

Dies wird als Impulsnäherung bezeichnet, da andererseits  $\Theta_1$  gegeben ist durch:

$$\Theta_1 = \frac{\Delta p_{\perp}}{p}$$

Hier ist  $\Delta p_{\perp}$  der transversale Impuls, der beim Stoß auf das Projektil mit dem Vorwärtsimpuls  $p = v \frac{M_1 M_2}{M_1 + M_2}$  übertragen wird, wobei  $v$  die Geschwindigkeit im Laborsystem darstellt.

Setzt man nun für das Wechselwirkungspotential ein abgeschirmtes Coulomb-Potential und hierbei als Abschirmfunktion die Molière'sche Näherung /31/ für die statistische Thomas-Fermi-Abschirmfunktion:

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \phi\left(\frac{r}{a}\right) ; \phi(x) = \sum_{i=1}^3 \alpha_i \exp(-\beta_i x) \quad (1.26)$$

$$\alpha_i = \{0.1, 0.55, 0.35\}$$

$$\beta_i = \{6.0, 1.2, 0.3\}$$

so findet man für den Streuwinkel:

$$\Theta = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{a E_r} \sum_{i=1}^3 \alpha_i \beta_i K_1(\beta_i s/a) \quad (1.27)$$

$K_1(x)$  ist die modifizierte Besselfunktion 1. Ordnung /32/.

Als Maß für die Genauigkeit der Impulsnäherung kann nach /33/ innerhalb des Konvergenzradius der Reihe (1.23) die Größe

$$\gamma = \frac{\Theta_1 + \Theta_2 + \Theta_3}{\Theta_1} \quad (1.28)$$

herangezogen werden. Setzt man die entsprechenden Ausdrücke für das Molière-Potential ein, so lassen sich für 2 MeV  $\text{He}^+$ -Teilchen in Nb folgende Werte berechnen:

| $\Theta_1$ | s/a  | $\gamma$ |
|------------|------|----------|
| 26.0°      | 0.01 | 0.986    |
| 13.0°      | 0.02 | 0.999    |
| 8.6°       | 0.03 | 1.001    |
| 2.5°       | 0.1  | 1.003    |
| 0.54°      | 0.4  | 1.002    |
| 0.16°      | 1.0  | 1.001    |
| 0.013°     | 4.0  | 1.0      |
| 0.001°     | 10.0 | 1.0      |

Das bedeutet, daß die in Impulsnäherung berechneten Streuwinkel selbst bei Streuwinkeln um 26° maximal 1.4 % von dem durch (1.23) genäherten Wert abweichen.

### 1.2.3 Berechnung des Energieverlusts

Der Energieverlust, den ein Ion auf seinem Weg durch einen Festkörper erleidet, kann in zwei wesentliche Teile zerlegt werden: die Wechselwirkung des Ions mit den Targetelektronen (elektronischer Energieverlust) und die Wechselwirkung mit den Kernen (nuklearer Energieverlust).

Die grundlegende Theorie der Abbremsung von Ionen durch nukleare Stöße wurde von Bohr entwickelt /34/. Zur Berechnung wurde dann eine Formel von Lindhard, Scharff und Schiott verwendet /35/. Verbesserte

Ansätze zur Berechnung des nuklearen Energieverlusts wurden in /36/ veröffentlicht, die auch in dieser Arbeit zur Abschätzung verwendet werden. Es gilt:

$$s_n = 0.5 \ln \left[ \frac{1+\epsilon}{\epsilon+6.10718 \cdot \epsilon^{.37544}} \right] \quad (1.29)$$

Die reduzierte Energie des Ions ergibt sich zu /35/:

$$\epsilon = \frac{32.53 M_2 E}{Z_1 Z_2 (M_1 + M_2) (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}} \quad (1.30)$$

Die Energie E muß in keV eingesetzt werden.

Das berechnete  $s_n$  kann in die Einheit  $\text{eV}/(10^{15} \text{At}/\text{cm}^2)$  umgewandelt werden:

$$S_n = \frac{s_n (8.462 Z_1 Z_2 M_1)}{(M_1 + M_2) (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}} \quad (1.31)$$

Am Beispiel für 2 MeV  $\text{He}^+$ -Teilchen wurde der nukleare Energieverlust für ein Nb-Target zu  $3.3 \cdot 10^{-3} \text{ eV}/\text{Å}$  berechnet. Wie anschließend gezeigt wird, beträgt der elektronische Energieverlust für 2 MeV  $\text{He}^+$  in NbC dagegen ungefähr  $60 \text{ eV}/\text{Å}$ . Der elastische Teil des Energieverlusts kann also mit Recht vernachlässigt werden.

Die Wechselwirkung von Ionen mit Elektronen eines Festkörpertargets ist im wesentlichen durch drei wichtige Anteile gegeben:

- a) Stöße mit gebundenen Elektronen
- b) Stöße mit freien Elektronen
- c) Anregung von Plasmonen

Der Prozess a) hängt von der Flußverteilung der eingeschossenen Ionen im Festkörper ab, da hier die lokale Ladungsdichteverteilung eines Atoms eingeeht. Dieser Anteil wird für das geführte Teilchen andere Werte liefern als für ein in Random-Richtung laufendes Teilchen. Für Ionen, die nach dem Rückstreuprozess in Richtung Detektor laufen, ist diese Trennung des elektronischen Energieverlusts in drei Anteile nicht nötig, sondern es genügt, einen gemittelten Energieverlust anzugeben. Die Prozesse b) und c) können unter der Annahme, daß die freien Elektronen gleichmäßig über den ganzen Festkörper verteilt sind, als ortsunabhängig angesehen werden. Dieser Ansatz beruht auf dem Modell des freien Elektronengases, das für NbC sicher nicht streng gilt. Da Änderungen im Energieverlust jedoch keine großen Auswirkungen auf die Form von winkelabhängigen Ausbeutekurven haben, scheint dieser Ansatz gerechtfertigt. Da die gebundenen

Elektronen in der Kettennähe lokalisiert sind und andererseits die Flußverteilung bei axialem Einschluß ein ausgeprägtes Maximum in der Kanalmitte aufweist, wird unter den Bedingungen des Channeling-Effekts der erste Anteil stark abnehmen.

a) Stöße mit gebundenen Elektronen

Nach einer Arbeit von van Vliet /37/, die auf Ansätzen von Bohr /23/ basiert, läßt sich der Energieverlust durch Rutherford-Streuung mit gebundenen Elektronen wie folgt angeben:

$$\left(\frac{dE}{dz}\right)_{\text{geb.}} = \frac{4\pi Z_1^2 e^4}{mv^2} NZ_{\text{lok.}}^{\text{geb.}} \ln \frac{2mv^2}{\bar{I}} \quad (1.32)$$

m = Masse des Elektrons

$\bar{I}$  = mittlere Anregungsenergie des Targets

$NZ_{\text{lok.}}^{\text{geb.}}$  = lokale Dichte der gebundenen Elektronen

$Z_1$  = Ladungszahl des eingeschossenen Teilchens.

Dies ist ein mit  $NZ_{\text{lok.}}^{\text{geb.}}$  modifizierter Bethe-Bloch-Ansatz /38/. Die lokale Dichte der gebundenen Elektronen läßt sich für jede Atomsorte einer Verbindung mit dem Thomas-Fermi-Modell berechnen:

$$NZ_{\text{lok.}}^{\text{geb.}}(r) = \frac{Z_2^*}{4\pi a^3} \cdot \frac{d^2\phi(r/a)}{d(r/a)^2} \cdot \frac{1}{r/a} \quad (1.33)$$

$Z_2^*$  = Zahl der gebundenen Elektronen

$\phi$  stellt die Thomas-Fermi-Abschirmfunktion dar.

Da beim Channeling nur der mittlere Energieverlust als Funktion des Abstandes von der Kette interessiert, wird der angegebene Ausdruck zwischen zwei Streuebene gemittelt, wobei sich nach Einsetzen der Molière-Funktion ergibt:

$$\overline{NZ}_{\text{lok.}}(s) = \frac{Z_2^*}{2\pi d_p} \sum_{i=1}^3 \frac{\alpha_i \beta_i^2}{a^2} K_0(\beta_i s/a) \quad (1.34)$$

mit  $K_0$  als modifizierter Besselfunktion 0. Ordnung /32/.

Für die mittlere Anregungsenergie des Targets werden üblicherweise Werte eingesetzt, die durch Anpassung an gemessene Daten für Elemente ermittelt wurden. Bei den hier vorgestellten Rechnungen wurden Werte benutzt, die in der lokalen Dichte-Näherung berechnet wurden /39/ und für Nb den Wert 311 eV und für C den Wert 79 eV ergaben. Ähnliche Werte



werden in einer Arbeit von Chu und Powers /40/ angegeben, die Ansätze mit Hartree-Fock-Slater-Ladungsverteilungen benutzt haben.

b) Stöße mit freien Elektronen

Rutherford-Streuung zwischen einfallenden Teilchen und freien Elektronen führt zu einem Energieverlust, der folgende Form hat /37/:

$$\left(\frac{dE}{dz}\right)_{\text{frei}} = \frac{4\pi Z_1^2 e^4}{m\bar{v}Z} NZ^{\text{frei}} \ln \frac{v}{v_F} \quad (1.35)$$

$Z^{\text{frei}}$  = Zahl der pro Atom im Mittel abgegebenen freien Elektronen

$v_F$  = Fermigeschwindigkeit

$NZ^{\text{frei}}$  = Dichte der freien Elektronen .

$v_F$  ist hierbei nicht die aus Bandstrukturrechnungen gewonnene Fermigeschwindigkeit, sondern stellt eine gemittelte Geschwindigkeit dar, die für die Mehrzahl der Elektronen gilt. Da die Größe als Argument des Logarithmus vorkommt, sind Unsicherheiten nicht so gravierend. Als freie Elektronen wurden für NbC bei Nb die Zahl der 4d- und 5s-Elektronen und bei C die Zahl der 2p-Elektronen eingesetzt, wodurch sich für  $Z^{\text{frei}}$  der Wert 3.5 ergibt.

In der Näherung des freien Elektronengases ist die Fermigeschwindigkeit:

$$v_F = (3\pi^2 n_e)^{1/3} \cdot \hbar/m^* \quad (1.36)$$

$n_e$  = Dichte der freien Elektronen =  $NZ^{\text{frei}}$

$m^*$  = effektive Elektronenmasse  $\approx 0.85 \cdot m / 8$ .

Für NbC ist dann  $n_e = 0.31 \text{ El./\AA}^3$  und  $v_F = 2.9 \cdot 10^8 \text{ cm/sec}$ .

c) Anregung von Plasmonen

Der Energieverlust durch Plasmonenanregung ist gegeben durch /37/:

$$\left(\frac{dE}{dz}\right)_{\text{Plasmon}} = \frac{4\pi Z_1^2 e^4}{m\bar{v}Z} NZ^{\text{frei}} \ln \frac{2mv_F}{\hbar\omega_p} \quad (1.37)$$

$\hbar\omega_p$  = Plasmaenergie .

Für  $\omega_p$  ergibt das Modell des freien Elektronengases:

$$\omega_p = \left(\frac{4\pi n_e e^2}{m^*}\right)^{1/2} \quad (1.38)$$

Für den angegebenen Wert von  $n_e$  ergibt sich so

$$\hbar\omega_p = 22.6 \text{ eV} .$$

Nach Zusammenfassung der Anteile durch Stöße mit freien Elektronen und durch Plasmonenanregung ergibt sich der gesamte Energieverlust:

$$\left(\frac{dE}{dz}\right)_{\text{inelast.}} = \frac{4\pi Z_1^2 e^4}{mv^2} \left[ NZ^{\text{geb.}} \ln \frac{2mv^2}{I} + NZ^{\text{frei}} \ln \frac{2mv^2}{\hbar\omega_p} \right] . \quad (1.39)$$

Für eine Reihe von Elementen wurden von van Vliet /37/ Energieverlustberechnungen mit dem vorgestellten Modell durchgeführt und die Ergebnisse mit experimentellen Daten verglichen. Die Abweichungen lagen für die meisten Substanzen unter 10 %.

Für NbC wurden Energieverlustberechnungen für 2 MeV  $\text{He}^+$ -Teilchen durchgeführt. Die Ergebnisse wurden mit Werten verglichen, die an gesputterten NbC-Schichten /41/ gemessen wurden.

|   | Experiment | Theorie |
|---|------------|---------|
| $\frac{dE}{dz} \left[ \frac{\text{eV}}{\text{\AA}} \right]$ | 59         | 69      |

Bei dem theoretischen Wert beträgt der Anteil durch Stöße mit freien Elektronen ca. 14 % und der Anteil durch Anregung von Plasmonen ca. 28 %. Das bedeutet, daß Unsicherheiten in der Kenntnis der Dichte der freien Elektronen und in der Plasmaenergie nicht gravierend sind.

Für den Energieverlust der Teilchen, die nach einem Rückstreuprozess vom Streuort in Richtung Detektor laufen, wurde nicht (1.39) verwendet. Zur Berechnung des dabei auftretenden Energieverlustes wurden Werte von Ziegler und Chu /42/ unter Anwendung der Bragg'schen Regel verwendet.

Wurden Rechnungen für Deuteronen durchgeführt, so wurden die Energieverlustwerte nach /43/:

$$\left(\frac{dE}{dz}\right)_{Z_D, v} = \frac{Z_D^2}{Z_{\text{He}}^2} \cdot \left(\frac{dE}{dz}\right)_{Z_{\text{He}}, v} \quad (1.40)$$

$$Z_D = \text{Ladungszahl des Deuterons}$$

bei gleicher Geschwindigkeit  $v$  berechnet.

Zur Berechnung des Energieverlustes und auch des Streuwinkels wird

als wesentlicher Faktor die Ladungszahl  $Z_1$  des einfallenden Ions benötigt. Für die Ladungszahl von He gilt die empirische Abschätzung /43/:

$$(Z_{4\text{He}}^*)^2 = 4 - 3.04 \exp(-1.77 E_{4\text{He}}), \quad (1.41)$$

die für  $E_{4\text{He}} = 2\text{MeV}$  den Wert  $Z_{4\text{He}}^* = 1.98$  ergibt.

Für den Gültigkeitsbereich der angegebenen Energieverlustterme gilt /37/:

$$v_{\text{ion}} \gg Z_1^{2/3} e^2 / \hbar = Z_1^{2/3} \cdot v_{\text{Bohr}} \quad (1.42)$$

Dem entspricht, daß

$$E \gg 25 \cdot Z_1^{4/3} \cdot M_1 \text{ keV sein muß.}$$

Für He-Teilchen muß also gelten:

$$E \gg 252 \text{ keV .}$$

Stöße mit Elektronen vermindern nicht nur die Energie des einfallenden Teilchens. Der gleichzeitig stattfindende Impulsübertrag in der Querebene fächert den Ionenstrahl auf. Gerade beim Channeling-Effekt muß dieser Prozess in Betracht gezogen werden. Der Energieübertrag  $\Delta E$  bei einem Stoß mit einem gebundenen oder freien Elektron liefert den Impulsübertrag:

$$\Delta p = \sqrt{2m \Delta E} \quad .$$

Daraus folgt unmittelbar als transversale Ablenkung:

$$\langle \Delta \theta^2 \rangle = m/M_1 \cdot \Delta E/E \quad (1.43)$$

Für die Ablenkung in jede Raumrichtung ergibt sich:

$$\langle \Delta \theta_x^2 \rangle = \langle \Delta \theta_y^2 \rangle = \frac{1}{2} \frac{m}{M_1} \frac{\Delta E}{E} \quad (1.44)$$

wodurch eine Verknüpfung mit dem Energieverlust möglich geworden ist. Bei diesem Energieverlust muß jedoch der Term durch Plasmonenanregung ausgeschlossen werden, da durch Plasmonenanregung im wesentlichen nur eine Impulsänderung in Vorwärtsrichtung gegeben ist und nicht in der Querebene /37/. Es gilt:

$$\frac{\partial \langle \theta_x^2 \rangle}{\partial z} = \frac{\partial \langle \theta_y^2 \rangle}{\partial z} = \frac{1}{2} \frac{m}{M_1} \frac{1}{E} \frac{dE}{dz} \quad \Big| \quad \text{frei}$$

mit  $\frac{dE}{dz} \Big|_{\text{frei}} = \left(\frac{dE}{dz}\right)_{\text{gebunden}} + \left(\frac{dE}{dz}\right)_{\text{frei}}$

$\left(\frac{dE}{dz}\right)_{\text{gebunden}}$  ist in (1.32) und  $\left(\frac{dE}{dz}\right)_{\text{frei}}$  in (1.35) gegeben.

#### 1.2.4 Thermische Schwingungen und ihre Simulation im Monte-Carlo-Programm

Thermische Schwingungen der Kristallatome stellen Abweichungen vom idealen Kristall dar und sind deshalb wesentlich für die Berechnung der Stoßparameter beim Channeling-Effekt und den daraus resultierenden Größen. Die mittlere Geschwindigkeit eines eine thermische Schwingung ausführenden Targetatoms ist gegeben durch:

$$\frac{M_2}{2} v_G^2 = \frac{3}{2} kT$$

$k$  = Boltzmannkonstante

$T$  = absolute Temperatur

$v_G$  = Geschwindigkeit des Kristallatoms

$M_2$  = Masse des Kristallatoms.

Für Nb-Atome ergibt sich bei  $T = 295 \text{ K}$   $v_G \approx 2.6 \cdot 10^4 \text{ cm/sec}$ .

Im Vergleich dazu liegt die Geschwindigkeit von 2 MeV  $\text{He}^+$ -Teilchen bei  $10^9 \text{ cm/sec}$ . Die einlaufenden He-Teilchen sehen also zu jedem Zeitpunkt eine Momentaufnahme des Gitters. Dies bedeutet, daß man zur Simulation des Channeling-Effekts bei thermisch schwingenden Atomen nicht die einzelnen Phononenmoden kennen muß, sondern daß es genügt, über alle Moden zu mitteln. Dadurch ist es möglich, die Aufenthaltswahrscheinlichkeit thermisch schwingender Atome und ihre mittlere Auslenkung anzugeben. Im folgenden soll diese Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion kurz erläutert werden.

Die Wahrscheinlichkeitsdichte dafür, daß ein Atom  $i$  die momentane Auslenkung  $u$  in Richtung des Einheitsvektors  $\vec{n}$  hat, wenn die mittlere Auslenkung des Atoms  $\vec{u}_i$  gegeben ist, wird durch das thermische Mittel

$$W_i(u, \vec{n}) = \langle \delta(u - \vec{u}_i \cdot \vec{n}) \rangle \quad (1.47)$$

dargestellt. Setzt man die quantenmechanischen Auslenkungsoperatoren /44/ in die Gleichung (1.47) ein, schreibt die  $\delta$ -Funktion in die zugehörige

Integraldarstellung um und führt die thermische Mittelung in der harmonischen Näherung durch /45/, läßt sich  $W_i$  explizit angeben:

$$W_i(u, \vec{n}) = \frac{1}{2\pi} \cdot \frac{1}{\sqrt{\Gamma_{\vec{n}}}} \exp - \frac{u^2}{4\Gamma_{\vec{n}}} \quad (1.48)$$

mit

$$\Gamma_{\vec{n}} = \sum_{\vec{q}\lambda} \frac{\hbar |n_{\vec{q}\lambda}|^2}{2M_i \omega_{\vec{q}\lambda}} \left( n(\omega) + \frac{1}{2} \right)$$

$$n(\omega) = \text{Bose-Verteilung } (\exp \beta \omega_{\vec{q}\lambda} - 1)^{-1}$$

$$\beta = kT$$

$$M_i = \text{Masse des } i\text{-ten Atoms}$$

$$\omega_{\vec{q}\lambda} = \text{Dispersionsrelation}$$

$$e_{\vec{q}\lambda}^i = \text{Polarisationsvektor.}$$

Das wichtige Resultat ist, daß in der harmonischen Näherung die Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichte thermisch schwingender Atome durch die Gaußfunktion in (1.48) dargestellt wird; die mittlere quadratische Auslenkung ist durch  $\Gamma_{\vec{n}}$  gegeben und ist mit der Phononenzustandsdichte  $F(\omega)$  verknüpft:

$$\begin{aligned} \Gamma_{\vec{n}} &= \frac{1}{2} \langle u_i^{\vec{n}}(t) \cdot u_i^{\vec{n}}(t) \rangle \\ &= \int d\omega F(\omega) \left( n(\omega) + \frac{1}{2} \right) \frac{\hbar}{2M_i \omega} \end{aligned} \quad (1.49)$$

Die Bestimmung der mittleren Schwingungsamplituden aus Phononenzustandsdichten geschieht zweckmäßigerweise über Frequenzmomente. Durch Umformen und Entwicklung ergibt sich aus (1.49) für  $T \geq T_D/2\pi$  ( $T_D = \text{Debye-Temperatur} = \Theta_n$  für ein Debye-Frequenzspektrum):

$$\langle u_i^2 \rangle = 37.623 \frac{1}{M_i} \frac{T}{\Theta_n^2} \left\{ 1 + \frac{1}{36} \frac{\Theta_n^2}{T^2} - \frac{1}{3600} \frac{\Theta_n^4}{T^4} \dots \right\} \quad (1.50)$$

Zur Berechnung müssen  $M_i$  in atomaren Einheiten,  $T$  und  $\Theta_n$  in meV eingesetzt werden,  $\langle u_i^2 \rangle$  ergibt sich in  $\text{\AA}^2$ .  $\Theta_n$  ist definiert über  $k\Theta_n = \hbar\omega_n$  mit

$$(\hbar\omega_n)^n = \frac{n+3}{3} \langle (\hbar\omega)^n \rangle$$

und

$$\langle (\hbar\omega)^n \rangle = \int F(\omega) (\hbar\omega)^n d\omega .$$

Für tiefe Temperaturen gilt die Näherung:

$$\langle u_i^2 \rangle = 9.04057 \frac{1}{M_i \Theta^{-1}} . \quad (1.51)$$

Für NbC wurden mit Frequenzmomenten aus der Phononenzustandsdichte nach /6/ die in der Tabelle 1 dargestellten mittleren Auslenkungen berechnet.

|                     | 295 K                            |                               | 4 K                              |                               |
|---------------------|----------------------------------|-------------------------------|----------------------------------|-------------------------------|
|                     | $\langle u_{Nb}^2 \rangle^{1/2}$ | $\langle u_C^2 \rangle^{1/2}$ | $\langle u_{Nb}^2 \rangle^{1/2}$ | $\langle u_C^2 \rangle^{1/2}$ |
| NbC <sub>0.98</sub> | 0.051                            | 0.058                         | 0.031                            | 0.050                         |
| NbC <sub>0.89</sub> | 0.050                            | 0.058                         | 0.031                            | 0.051                         |

Tab. 1 Mittlere Schwingungsamplituden für NbC. Die Werte wurden mit Hilfe des Doppelschalenmodells berechnet /6/ und sind in Å angegeben.

Das Dechanneling-Verhalten geführter Teilchen wird im wesentlichen durch thermische und statische Auslenkungen verursacht. Deshalb ist die Simulation dieser Auslenkungen in einem Monte-Carlo-Programm von entscheidender Bedeutung und ist im folgenden beschrieben.

Sollen nur thermische Schwingungen berücksichtigt werden, so werden die Positionen der Targetatome bei der Simulation entsprechend der durch die Gaußverteilung (1.48) gegebenen Aufenthaltswahrscheinlichkeit gewählt, mit der mittleren Auslenkung als freiem Parameter.

Die Anpassung von theoretischen an experimentelle Ausbeutekurven liefert dann die mittlere thermische Auslenkung. Meistens genügt es hierbei, die Halbwertsbreite  $\psi_{1/2}$  zu vergleichen. Sind zusätzlich noch statische Auslenkungen vorhanden, wird ebenfalls die mittlere Auslenkung der Gaußverteilung angepaßt. Dadurch kann die Summe aus dynamischen und statischen Auslenkungen bestimmt werden.

Durch Channeling-Untersuchungen allein konnten die statischen Verlagerungen in NbC<sub>x</sub> durch Messung der winkelabhängigen Ausbeutekurven bei 4 K bestimmt werden. Unter der Annahme, daß bei x = 0.98 nur dynamische Auslenkungen vorhanden sind und diese im Bereich x = 0.98 - 0.82 sich nicht ändern, kann aus der Differenz der mittleren Auslenkungen bei einer festen Zusammensetzung x und bei x = 0.98 die mittlere statische Verlagerung bestimmt werden. Unter der Annahme, daß die statischen Verlagerungen temperaturunabhängig sind, können aus dem Vergleich des Temperaturverlaufs der mitt-

leren Auslenkungen Aussagen über Änderungen der dynamischen Komponenten als Funktion der C-Leerstellenkonzentration gemacht werden.

Die auf diese Weise bestimmten dynamischen Auslenkungen wurden mit den Werten aus Tabelle 1 verglichen. Wie später gezeigt wird, ergab sich hierbei, daß die Werte aus Tabelle 1 nur wenig kleiner als die aus den Channeling-Experimenten bestimmten thermischen Schwingungsamplituden waren.

Setzt man in der Computer-Simulation für die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Targetatome die Gaußfunktion (1.48) an, so werden damit Korrelationen der thermischen Auslenkungen benachbarter Atome vernachlässigt. In den Arbeiten /46-49/ wurden Abschätzungen der Größe dieser Korrelationen angegeben und ihre Auswirkungen auf den Channeling-Effekt untersucht. Im folgenden sollen diese Ergebnisse diskutiert werden.

Die Abschätzung der Geschwindigkeit der Kristallatome zu der der einfallenden  $\text{He}^+$ -Teilchen zeigt, daß die Korrelationsfunktion nur für den Zeitpunkt  $t = 0$  für den Channeling-Effekt von Bedeutung sein kann. Die Korrelationsfunktion zwischen einem Atom am Ursprung und einem Atom, das  $n$  Atomabstände  $d$  weiter in der Kette sitzt, ist gegeben durch:

$$\rho_n = \langle \vec{u}(0) \cdot \vec{u}(nd) \rangle / \langle \vec{u}(0) \cdot \vec{u}(0) \rangle \quad (1.52) .$$

mit  $\vec{u}$  = thermische Auslenkung des Atoms.

Für Nb und Mo wurde ein Born-von Karman Tensorkräftemodell, das Wechselwirkungen bis zum 7. Nachbarn erfaßte, an experimentelle Dispersionskurven angepaßt und damit die thermischen Schwingungsamplituden und die Korrelationsfunktion berechnet /46/. Zur Anwendung bei der Computer-Simulation von Wechselwirkungen zwischen Ionen und Festkörpern wurde von Jackson und Barrett /47/ ein Formalismus vorgestellt, der es erlaubt, die durch Korrelationen im Vergleich zur Verteilung ohne Korrelationen geänderte Wahrscheinlichkeitsverteilung von thermischen Auslenkungen der Targetatome zu berücksichtigen. Mit Hilfe dieses Formalismus wurden Channeling-Simulationsrechnungen für 2 MeV  $\text{He}^+$  in Mo durchgeführt /48,49/. Dabei wurde die Oberflächenrückstreurrate für Mo in der  $\langle 111 \rangle$ -Richtung untersucht. Hierbei ergab sich, daß die minimale Ausbeute  $\chi_{\min}$  bei Berücksichtigung der Korrelation etwa 10 % niedriger lag. Die Halbwertsbreite von winkelabhängigen Ausbeutekurven nahm bei korrelierten Schwingungen um 3 % zu, was einer Abnahme der Schwingungsamplitude von 8 % entsprach.

Die Analyse zeigt, daß dieser Wert bei den meisten Rechnungen nur wenig über der Nachweisgrenze liegt. Wichtig zu bemerken ist noch, daß

in den erwähnten Veröffentlichungen nicht unterschieden wurde zwischen radialer und transversaler Korrelationsfunktion. Für den Channeling-Effekt spielen aber nur Auslenkungen senkrecht zu einer Atomkette eine Rolle und dementsprechend auch nur die transversale Korrelationsfunktion. Diese liegt aber in ihrer Größe beträchtlich über den radialen Werten wie es in einer Arbeit von Nielsen und Weber für einige Halbleiter gezeigt wurde /50/. Daher sind also die Auswirkungen der Korrelationen in den Arbeiten von Jackson und Barrett /48,49/ vermutlich stark überschätzt. Da das Frequenzspektrum der in dieser Arbeit untersuchten Verbindung NbC höhere Frequenzen aufweist als die der reinen Übergangsmetalle Nb und Mo, wurde bei den Computer-Simulationsrechnungen die Rolle der Korrelationen der thermischen Schwingungen als zu gering erachtet, um einen sichtbaren Effekt auf die Ergebnisse ausüben zu können.

#### 1.2.5 Berechnung der Rückstreu- und Kernreaktionsausbeute

Ionen, die unter Bedingungen auf ein einkristallines Target geschossen werden, die das Auftreten des Channeling-Effekts zulassen, zeigen eine geänderte Stoßparameterverteilung gegenüber dem Einschub auf ein amorphes Target. Als Indikator für das Auftreten des Channeling-Effekts dienen Prozesse, die einen kleinen Stoßparameter im Vergleich zum Thomas-Fermi-Abschirmparameter verlangen, wie z.B. Rückstreu- oder Kernreaktionsprozesse. Um Ergebnisse eines Computer-Simulationsprogramms mit dem Experiment vergleichen zu können, muß demzufolge aus dem Verlauf der Teilchentrajektorien die Wahrscheinlichkeit für Rückstreu- oder Kernreaktionen berechnet werden. Die Rückstreausbeute im Energieintervall  $(E_{\min}, E_0)$  ist gegeben durch:

$$\dot{Y}(E_0) = \int_{E_{\min}}^{E_0} \int_{\Omega_1} \int_{\bar{\Omega}} \int_V \int_V W(E, \vec{r}, \theta') \sigma(E, \theta') b(|\vec{r} - \vec{r}'|) \cdot f(\vec{r}) d\vec{r}' d\vec{r} d\Omega d\Omega' dE \quad (1.53)$$

$V = \text{Kristallvolumen.}$

$W(E, \vec{r}, \theta')$  ist die Zahl der einfallenden Ionen am Ort  $\vec{r}'$ , im Volumenelement  $d\vec{r}'$  im Energieintervall  $(E, E+dE)$  und mit einem momentanen Bahnwinkel zur Detektorrichtung im Winkelintervall  $(\theta', \theta'+d\theta')$ .

$\sigma(E, \theta')$  bedeutet den Rutherford-Wirkungsquerschnitt bei der Energie  $E$  und dem Rückstreuwinkel  $\theta'$  oder einen Kernreaktionswirkungsquerschnitt.  $b(|\vec{r} - \vec{r}'|)$  beschreibt die Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts vom Betrag des Abstands  $\vec{r} - \vec{r}'$ .



$\sigma(E, \theta')$  und  $b(|\vec{r}-\vec{r}'|)$  sind also nicht voneinander unabhängig.

$f(\vec{r})$  stellt die Ortsverteilung der Kristallatome dar.

Das Integral  $\int_{\bar{\Omega}} d\Omega$  erstreckt sich über den endlichen Detektorraumwinkel  $\bar{\Omega}$

und das Integral  $\int_{\Omega_1} d\Omega$  berücksichtigt, daß die einfallenden Teilchen zum

Zeitpunkt eines Stoßes mit einem Kristallatom jeweils unter ganz ver-

schiedenen Winkeln zum Detektor laufen.  $\Omega_1$  umfaßt alle dabei auftre-

tenden Winkel zwischen Teilchenbahnrichtung und Detektor.  $E_{\min}$  ist die

minimale Teilchenenergie, die ausreicht, einen Rückstreuprozess zu be-

wirken und in den Detektor zu gelangen.  $\Theta_L = 165^\circ$  in den Raumwinkel  $\bar{\Omega} = 4.6$  msterad gestreut werden, beträgt  $\sigma = 1 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^2$ , dazu gehört ein Stoßdurchmesser von  $6 \cdot 10^{-4} \text{ \AA}$ .

Im Vergleich dazu beträgt der Thomas-Fermi-Abschirmparameter etwa  $0.13 \text{ \AA}$ .

Deshalb kann  $b(|\vec{r}-\vec{r}'|)$  durch die Dirac'sche  $\delta$ -Funktion ersetzt werden:

$\delta(|\vec{r}-\vec{r}'|)$ . Die Änderung des Rückstreuwinkels  $\Theta_L$  durch den endlichen Raumwinkel  $\bar{\Omega}$  ist gering, so daß sich die Integration über  $\bar{\Omega}$  nach dem Mittelwertsatz der Integralrechnung ausführen läßt, wobei man den mittleren Rückstreuwinkel  $\bar{\theta}'$  einführt. So ergibt sich:

$$\frac{\partial Y(E)}{\partial E} = \bar{\Omega} \int_{\Omega_1} \int_V W(E, \vec{r}, \bar{\theta}') \sigma(E, \bar{\theta}') f(\vec{r}) d\vec{r} d\Omega \quad (1.54)$$

für die Anzahl rückgestreuter Teilchen pro Energieintervall. Bei der Simulationsrechnung wird zweckmäßigerweise bei jedem Stoß eines einfallenden Teilchens mit einem Gitteratom die Wahrscheinlichkeit für einen Rückstreuprozess ausgerechnet:

$$P(E, \vec{r}) = \bar{\Omega} \sigma(E, \bar{\theta}') f(\vec{r}) \quad (1.55)$$

wobei für  $f(\vec{r})$  jetzt die in Gleichung (1.48) angegebene Gaußfunktion für die Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichte des Atoms am Ort  $\vec{r}$  eingesetzt wird. Diese Rückstreuwahrscheinlichkeiten werden im Energieintervall  $(E_K, E_K + dE)$  und dem Tiefenintervall, in dem das Teilchen sich gerade aufhält, abgespeichert und aufsummiert, wobei  $E_K$  die Energie nach dem Rückstreuprozess ist:

$E_K = K \cdot E$  ( $K$  = kinematischer Faktor, siehe 2.3).

Zum Vergleich des berechneten Rückstreuspektrums mit dem gemessenen Spektrum wird nach der Trajektorienberechnung die endgültige Austrittsenergie durch Abzug des Energieverlusts, der auf dem Weg vom Streuort zum Detektor auftritt, bestimmt.

### 1.2.6 Berechnung des statistischen Fehlers

Da aus Gründen der Rechenzeit nur eine begrenzte Zahl von Teilchenbahnen im Monte-Carlo-Programm berechnet werden konnte, trat bei den in dieser Arbeit durchgeführten Rechnungen ein statistischer Fehler auf, der im folgenden abgeschätzt wird (nach /51/).

Die Gesamtzahl der eingeschossenen Teilchen  $N \cdot M$  für eine Simulationsrechnung wird in  $N$  Läufe zu jeweils  $M$  Teilchen unterteilt. Bei jedem Lauf wird eine physikalische Größe  $x$  mit dem Wert  $x_n$  ausgerechnet ( $n = 1 \dots N$ ). Daraus wird der Mittelwert  $\bar{x}$  und die Standardabweichung  $\sigma$  bestimmt /52/:

$$\bar{x} = \frac{\sum_{n=1}^N x_n}{N} \quad (1.56)$$

$$\sigma^2 = \frac{\sum_{n=1}^N (\bar{x} - x_n)^2}{N(N-1)} \quad (1.57)$$

Wenn die Zahlenwerte  $x_n$  normalverteilt sind, dann folgt  $\sigma^2$  einer  $\chi^2(N-1)$ -Verteilung /53/. Daraus folgt dann, daß für  $N > 10$  der Mittelwert mit einer Wahrscheinlichkeit von 65 % weniger als eine Standardabweichung  $\sigma$  vom exakten Wert entfernt ist und 93 %, daß er innerhalb von 2 Standardabweichungen um  $\bar{x}$  liegt. Da  $\sigma$  für kleine Werte von  $N$  stark variiert, sollte die Zahl der Läufe wenigstens  $N = 10$  betragen.

Der Wert für  $\sigma$  hängt von der Anzahl von Teilchen pro Lauf,  $M$ , ab, wenn  $N$  festgehalten wird. Um eine vorgegebene Fehlergrenze zu erreichen, muß also die Zahl von Teilchen pro Einzellauf entsprechend gewählt werden.

Im folgenden soll nun ein Zahlenbeispiel für den bei den Rechnungen aufgetretenen typischen statistischen Fehler gegeben werden. Es wurde mit 2 MeV  $\text{He}^+$ -Teilchen auf NbC und mit Auslenkungsamplituden für Nb von 0.07 Å und für C von 0.057 Å gerechnet. Es wurden 10 Läufe mit je 42 Teilchen durchgeführt. Die Einschußrichtung war um  $0.9^\circ$  gegen die  $\langle 110 \rangle$ -Richtung des Kristalls verkippt. Die auf Random-Einschuß normierte Rückstreausbeute betrug  $\chi_{\min} = 0.43$ . Die Standardabweichung ergab dabei den Wert 0.08.

## 2. EXPERIMENTELLE TECHNIK

### 2.1 Herstellung der NbC<sub>x</sub>-Proben

#### 2.1.1 Herstellung der NbC<sub>x</sub>-Einkristalle durch Zonenschmelzen

Die NbC<sub>x</sub>-Einkristalle wurden durch tiegelfreies Zonenschmelzen in der 50 kW-HF-Induktionsanlage des Kristallziehlabors im Institut für Angewandte Kernphysik hergestellt (Scheerer et al. /54/). Als Ausgangsmaterial wurden aus NbC-Pulver gesinterte Rundstäbe der Firma CERAC, USA, mit einem Durchmesser von 12.5 mm und einer Länge von 150 mm verwendet. Es wurden Stäbe mit einem C/Nb-Verhältnis zwischen 1.04 und 0.85 gezont. Ein zu starkes Abdampfen des Kohlenstoffs wurde durch eine Gasatmosphäre von 95 % Ar und 5 % He bei einem Druck von 10 atm verhindert. Der in Graphithalterungen eingespannte Stab wurde mit einer Geschwindigkeit von 11 mm/h durch die feststehende HF-Spule geführt. Ein Graphitnachheizer sorgte für eine gleichmäßige Temperaturverteilung im gezonten Teil. Strahlungsverluste wurden durch einen Mo-Reflektor vermindert. Die beiden Stabenden wurden gegenläufig gedreht, um eine gute Durchmischung und eine isotrope Temperaturverteilung in der Schmelzzone zu erhalten. Die Länge des gezonten Teils betrug ungefähr 50 mm. Der gesamte Prozess wurde an jedem Stab zweimal durchgeführt. Eine genaue Beschreibung der Apparatur ist in /54/ zu finden.

Die Schmelzlinge bestanden aus einkristallinen Bereichen mit Durchmessern von 5 - 8 mm. Am Umfang der Proben war eine Randschicht von etwa 0.5 - 1 mm Dicke aus sehr kleinen Körnern zu finden, die sehr viel mehr Kohlenstoff enthielten als der Innenteil. Die Zusammensetzung der Einkristalle betrug je nach Ausgangsmaterial 0.925 bis 0.82.

#### 2.1.2 Bestimmung der Zusammensetzung

Die Zusammensetzung der durch Zonenschmelzen hergestellten Proben wurde auf drei verschiedenen Wegen bestimmt. Erstens wurde die Zusammensetzung direkt durch eine chemische Analyse bestimmt, zweitens wurde der Gitterparameter und drittens die Übergangstemperatur zur Supraleitung,  $T_c$ , gemessen.

In der chemischen Analyse wurden die Kristalle auf den Gesamtgehalt an C, auf ihren Gehalt an freiem C und auf ihren Gehalt an O

untersucht.

Die chemischen Analysen wurden durch die Firma Dr. F. Pascher in Bonn durchgeführt und ergaben Werte für den Gehalt an freiem C, die zwischen 0.05 und 0.1 at. % lagen. Der Gehalt an O war etwa 0.01 at. %

Die Bestimmung der Zusammensetzung der  $NbC_x$ -Einkristalle durch Röntgenbeugung beruht auf der starken Abhängigkeit der Gitterparameter von der C-Konzentration, die in Abb. 7 dargestellt ist. Zur Messung wurde der Einkristall pulverisiert und auf ein Quarzsubstrat aufgebracht. Es wurde eine Guinier-Dünnschichtkammer unter Verwendung eines Monochromators nach dem Fokussierungsprinzip von Seemann-Bohlin /61/ verwendet. Nähere Einzelheiten zur Röntgenanlage sind z.B. in /62/ beschrieben. Die Auswertung erfolgte nach einem Verfahren von Feder und Berry /63/.

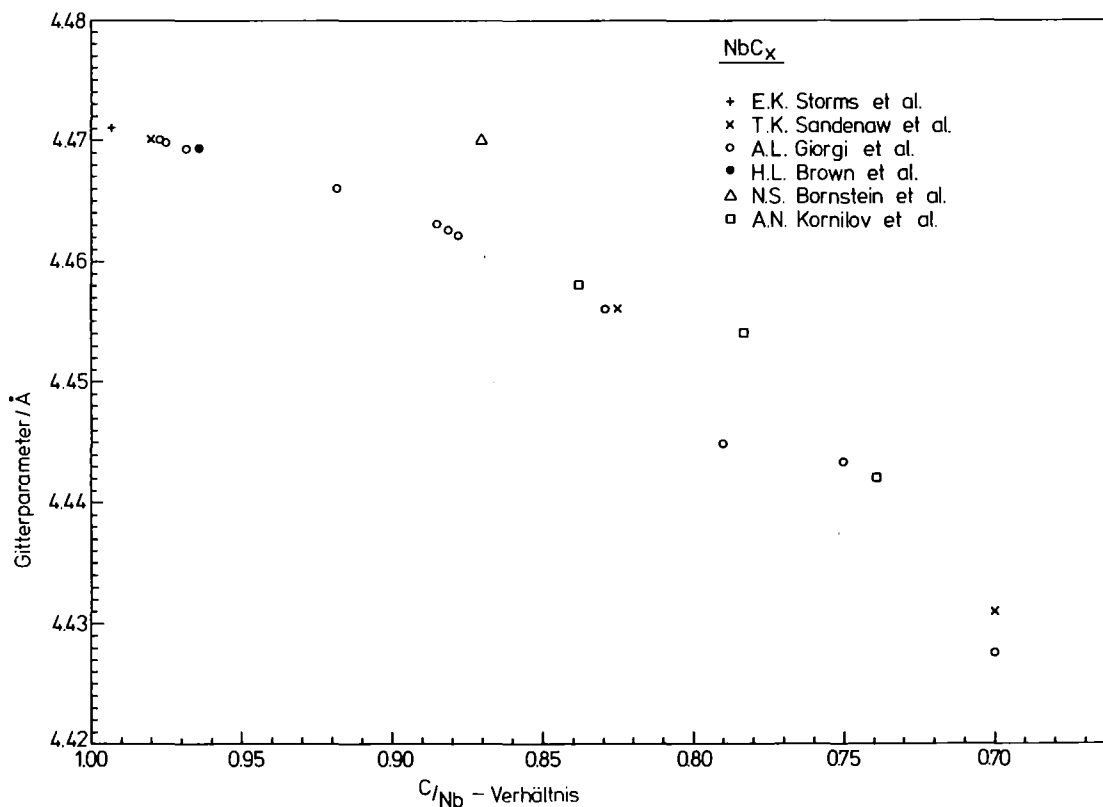


Abb. 7 Abhängigkeit des Gitterparameters in  $NbC_x$  vom C/Nb-Gehalt /55-60/.

Die Abhängigkeit der Übergangstemperatur zur Supraleitung,  $T_c$ , von der Zusammensetzung ist in Abb. 8 dargestellt /3,64,65,54,4/. In dieser Arbeit wurde die Übergangstemperatur mit der induktiven Methode gemessen, wobei ein für dünne Schichten konstruierter Probenhalter /66/ verwendet wurde.

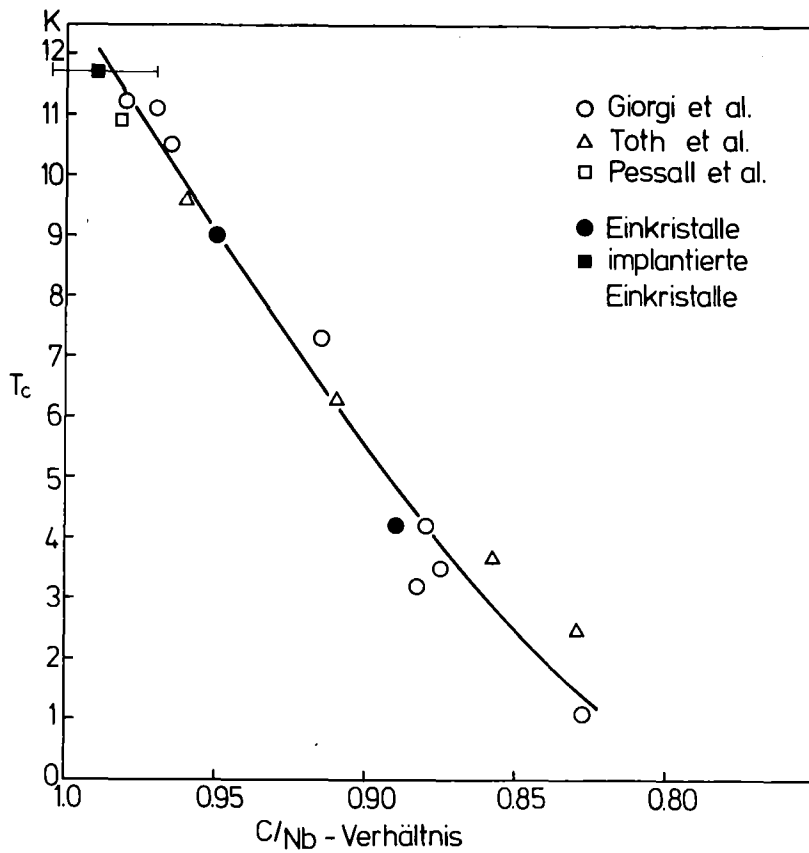


Abb. 8 Abhängigkeit der Übergangstemperatur zur Supraleitung  $T_c$  in  $NbC_x$  von der Zusammensetzung /3,64,65,54,4/

Für die Channeling-Untersuchungen wurden fünf verschiedene Einkristalle hergestellt, von denen jeder in 2 - 3 Scheiben geschnitten wurde, an denen die Channeling-Experimente durchgeführt wurden. Die Ergebnisse der einzelnen Analysenmethoden sind in Tabelle 2 dargestellt. Die durch Messungen der Übergangstemperatur  $T_c$  bestimmten Zusammensetzungen lagen maximal 2 % unter den Ergebnissen der chemischen Analysen. Die durch Gitterparametermessungen bestimmten Zusammensetzungen lagen maximal 3 % unter den Werten der chemischen Analysen. Dies deutet darauf hin, daß bei der Pulverisierung der Einkristalle Verspannungen in den einzelnen Körnern auftraten, die die Gitterparametermessung verfälschten. Die Zusammensetzung der durch Implantation und Diffusion hergestellten ( $x = 0.95 - 0.98$ ; wie in 2.1.3 und 2.1.4 beschrieben) Proben konnte nur durch ihre Übergangstemperatur  $T_c$  bestimmt werden.

| Probe           | Gitterparameter/ $\text{\AA}$ | C/Nb  | $T_c$ /K | C/Nb  | chem. Analyse<br>C/Nb |
|-----------------|-------------------------------|-------|----------|-------|-----------------------|
| 379             | 4.451                         | 0.79  | <1.5     | <0.83 | 0.82                  |
| 200             | 4.462                         | 0.88  | 5.3      | 0.90  | 0.915                 |
| 202             | 4.463                         | 0.885 | 3.3      | 0.885 | 0.89                  |
| 372             | 4.463                         | 0.885 | 3.4      | 0.89  | 0.91                  |
| 376             | 4.468                         | 0.925 | 7        | 0.925 |                       |
| 202 I<br>impl.  |                               |       | 9.3      | 0.95  |                       |
| 200 I<br>diff.  |                               |       | 11.1     | 0.98  |                       |
| 376 I<br>diff.  |                               |       | 10.5     | 0.97  |                       |
| 200 II<br>diff. |                               |       | 11.1     | 0.98  |                       |

Tabelle 2 Zusammensetzungen der für die Channeling-Untersuchungen hergestellten NbC-Einkristalle

### 2.1.3 Erhöhung des C-Gehalts durch Ionenimplantation

Die NbC-Einkristalle konnten durch Zonenschmelzen nur bis zu einem C/Nb-Verhältnis von 0.925 hergestellt werden. Aus diesem Grund wurde versucht, über einen Tiefenbereich von etwa  $4000 \text{ \AA}$  zusätzlich C in die Einkristalle einzubringen. Um eine hinreichende Genauigkeit in den Ergebnissen der Kernreaktionsexperimente zu erreichen, war wegen der begrenzten Tiefenauflösung von etwa  $1500 \text{ \AA}$  eine Tiefe von mindestens  $3000 \text{ \AA}$  erforderlich. Zunächst wurde zu diesem Zweck das Verfahren der Heißimplantation herangezogen, das bereits früher erfolgreich angewandt worden war, um eine hohe Übergangstemperatur  $T_c$  von 11.5 K in NbC zu erreichen /4/.

Die Verteilung der C-Ionen über den Tiefenbereich von  $4000 \text{ \AA}$ , das sogenannte Implantationsprofil, muß möglichst homogen sein, um wirklich einen einkristallinen Bereich mit einer definierten Konzentration zu erreichen. Da aber die Einzelverteilung bei einer festen Ionenenergie annähernd ein Gauß-Profil darstellt, wurde eine Methode zur Berechnung homogener Implantationsprofile mit mehreren Einschußenergien angewandt, das in /62/ angegeben ist. Dieses Verfahren wurde auf die Implantation von C-Ionen in NbC<sub>0.89</sub> mit 4 verschiedenen Energien angewandt. Die errechneten Fluenzen für eine Gesamtkonzentration von 19 % At sind in der

Tabelle 3 zusammen mit den Werten für die Reichweite  $R_p$  und die Streuungen der Reichweiten  $\Delta R_p$ , die mit Hilfe eines Programms von Johnson und Gibbons /67/ bestimmt wurden, aufgelistet.

Die Konzentration von 19 % wurde gewählt, um einen Ausgleich zu den bei der Diffusion beteiligten C-Atomen zu haben. Die Überlagerung der Einzelprofile ist in Abb. 9 dargestellt.

| Energie<br>keV | $R_p$<br>Å | $\Delta R_p$<br>Å | Fluenz<br>Ionen/cm <sup>2</sup> |
|----------------|------------|-------------------|---------------------------------|
| 30             | 447        | 244               | $3.7 \cdot 10^{16}$             |
| 70             | 1050       | 454               | $7.4 \cdot 10^{16}$             |
| 140            | 2078       | 696               | $1.3 \cdot 10^{17}$             |
| 280            | 3862       | 962               | $2.2 \cdot 10^{17}$             |

Tabelle 3 Energien und Fluenzen zur Erzeugung eines homogenen Implantationsprofils von 19% At C über einen Tiefenbereich von 4000 Å.

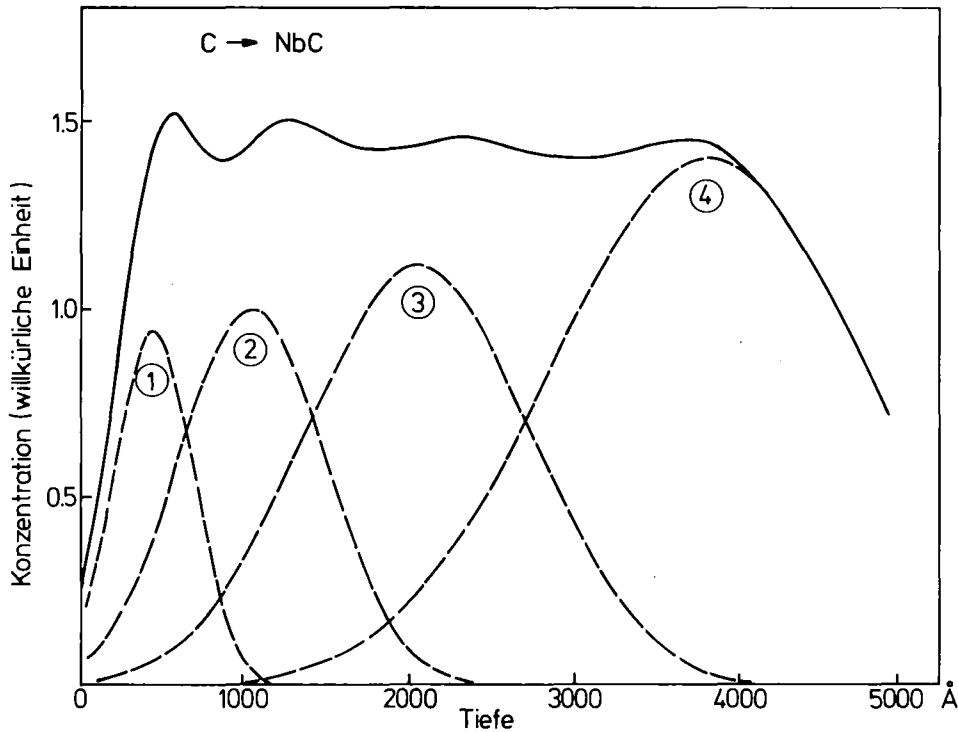


Abb. 9 Berechnetes Ionenprofil für C in NbC. Die Fluenzen für eine Konzentration von 19 % At sind in Tabelle 3 aufgeführt.  
1 = 30 keV, 2 = 70 keV, 3 = 140 keV, 4 = 280 keV

Die Implantation wurde an der Ionenimplantationsanlage des Instituts für Angewandte Kernphysik vorgenommen, deren Aufbau z.B. in /68/ beschrieben ist. Das Experiment wurde bei einer Temperatur von  $830^{\circ}\text{C}$  durchgeführt. Anschließend wurde die implantierte Probe bei einer Temperatur von  $1190^{\circ}\text{C}$  4 min lang in einem UHV-System getempert. Die Temperatur  $1190^{\circ}\text{C}$  wurde gewählt, weil in einer Arbeit von Geerk et al. /4/ sich ein scharfer Abfall von  $T_c$  bei Tempern oberhalb von  $1200^{\circ}\text{C}$  zeigte, der durch die Diffusion von C erklärt wurde. Die Übergangstemperatur  $T_c$  betrug darauf 10.5 K. Channeling-Experimente deuteten jedoch auf einen hohen Störgrad des Kristalls hin. Deshalb wurde der Kristall nochmals bei  $1350^{\circ}\text{C}$  4 min lang getempert. Daraufhin war  $T_c$  auf 8.8 K gesunken, was einem C/Nb-Verhältnis von 0.95 entspricht. Die Rückstreu- und Kernreaktionsspektren der Ausbeute an Nb- und C-Atomen bei orientiertem und bei nicht orientiertem Kristall nach dem zweiten Temperschnitt zeigt Abb. 10. Der Anstieg der Spektren bei orientiertem Kristall in Abb. 10a verläuft wie beim ungestörten Kristall. Die Kernreaktionsausbeute in Abb. 10b bei orientiertem Kristall ist etwa um einen Faktor 3 größer (nach dem ersten Temperschnitt erreichte sie das Random-Spektrum) als bei ungestörtem Kristall. Die Ursachen für dieses Verhalten von NbC bei der Heiimplantation von C wurde bereits frher untersucht /69,70/. Es wurden Computer-Simulationen des Channeling-Experiments mit unterschiedlichen Defektmodellen durchgefhrt. Die Untersuchung ergab als Defektstruktur Stapelfehler mit einem Burger's Vektor von  $\vec{b} = a/6 [11\bar{2}]$ . Auf Stapelfehler wurde auch durch energieabhngige Channeling-Messungen geschlossen /69/.

Auf Grund der Schwierigkeiten des Ausheilverfahrens nach der Implantation wurde nur ein Kristall (Nr. 202 I) nach diesem Verfahren hergestellt und zur Untersuchung herangezogen.

#### 2.1.4 Erhhung des C-Gehalts durch Nachdiffusion

Als eine geeignete Methode zur Herstellung faststchiometrischer ( $x=0.97-0.98$ ) NbC-Einkristalle bot sich ein Verfahren an, das ebenfalls in /4/ beschrieben ist. Dieses Verfahren beruht auf der Diffusion von C aus einer aufgedampften Schicht. Zuerst wurde bei Raumtemperatur eine  $600 \text{ \AA}$  dicke C-Schicht auf einen Einkristall der Zusammensetzung  $\text{NbC}_{0.90}$  aufgedampft. Anschließend wurde der Kristall zur Diffusion in einer ausheiz-



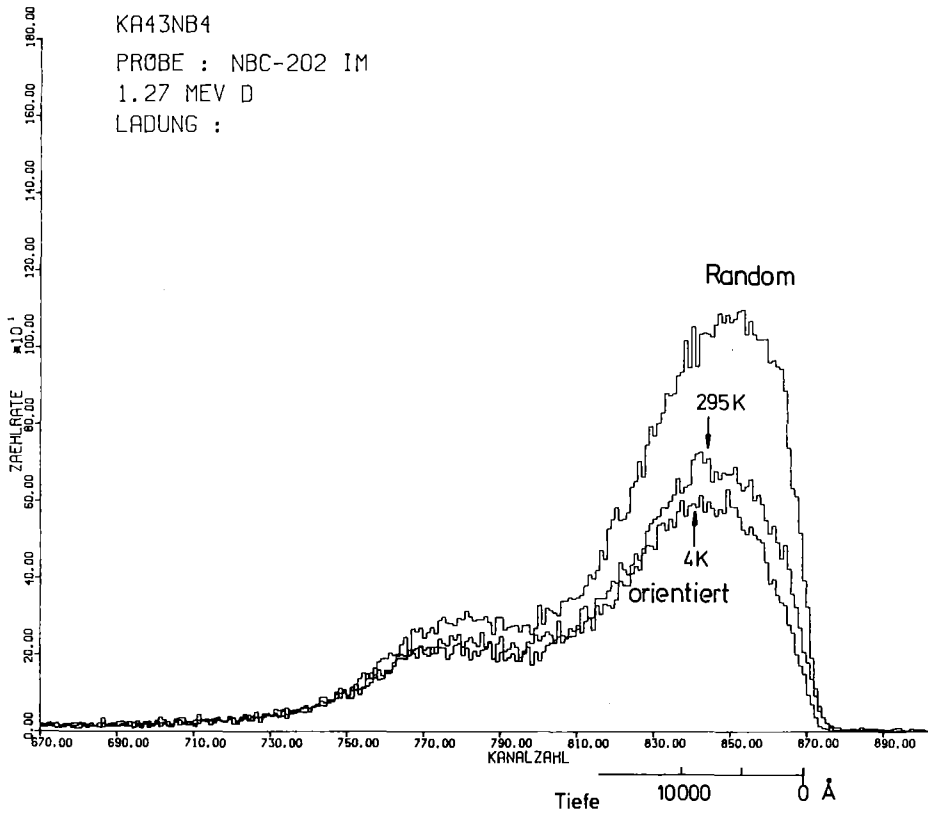
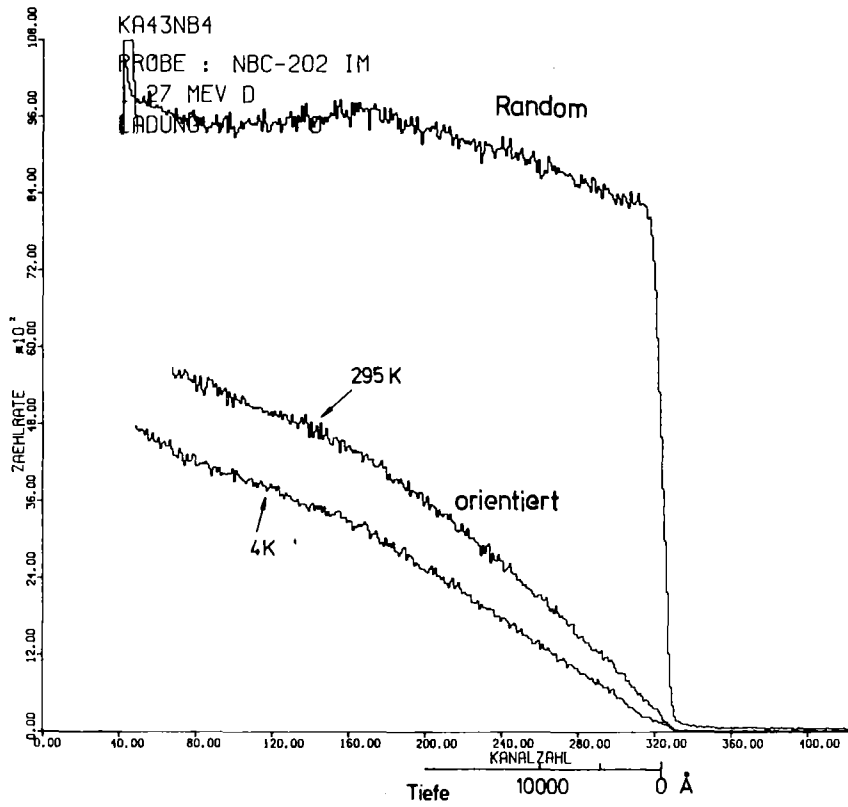


Abb. 10a Rückstreuungsspektren (Nb-Signale) bei nicht-orientiertem und orientiertem NbC-Kristall nach der Implantation von C und Ausheilen bei 1350°C

b Kernreaktionsspektren (C-Signale)

baren UHV-Anlage auf eine Temperatur von  $1450^{\circ}\text{C}$  gebracht. Die Temperatur betrug 4 min. Durch diesen Temperprozess wurde eine Übergangstemperatur  $T_c$  von 11.1 K erreicht, was einer Zusammensetzung von  $\text{NbC}_{0.98}$  entspricht. Bei Diffusionstemperaturen oberhalb von  $1500^{\circ}\text{C}$  wird die  $600 \text{ \AA}$ -C-Schicht erschöpft und als Folge fällt  $T_c$  sehr rasch ab. Für eine Diffusionstemperatur von  $1450^{\circ}\text{C}$  wurde das Diffusionsprofil mit einem von der Leerstellenkonzentration unabhängigen Diffusionskoeffizienten /71/ für eine konstante Quelle nach /72/ ausgerechnet. Dieses Verfahren scheint an sich nicht gerechtfertigt zu sein, da der Frequenzfaktor stark von der Leerstellenkonzentration abhängt. Durch eine gleichzeitige Änderung der Aktivierungsenergie wird dies im Temperaturbereich von  $1400^{\circ}\text{C} - 1600^{\circ}\text{C}$  gerade aufgehoben. Das Ergebnis der Berechnung des Diffusionsprofils ist in Abb. 11 dargestellt. Man erkennt, daß bei einer Diffusionszeit von 4 min das Profil der eindiffundierten C-Atome über eine Tiefe von  $3000 \text{ \AA}$  um etwa 1 % abfällt, so daß der im Channeling-Experiment erfaßte Tiefenbereich als genügend homogen angesehen werden kann. Es ist nicht möglich, aus dem Rückstreupektrum die Absolutkonzentration der eindiffundierten C-Atome genügend genau zu bestimmen, da der

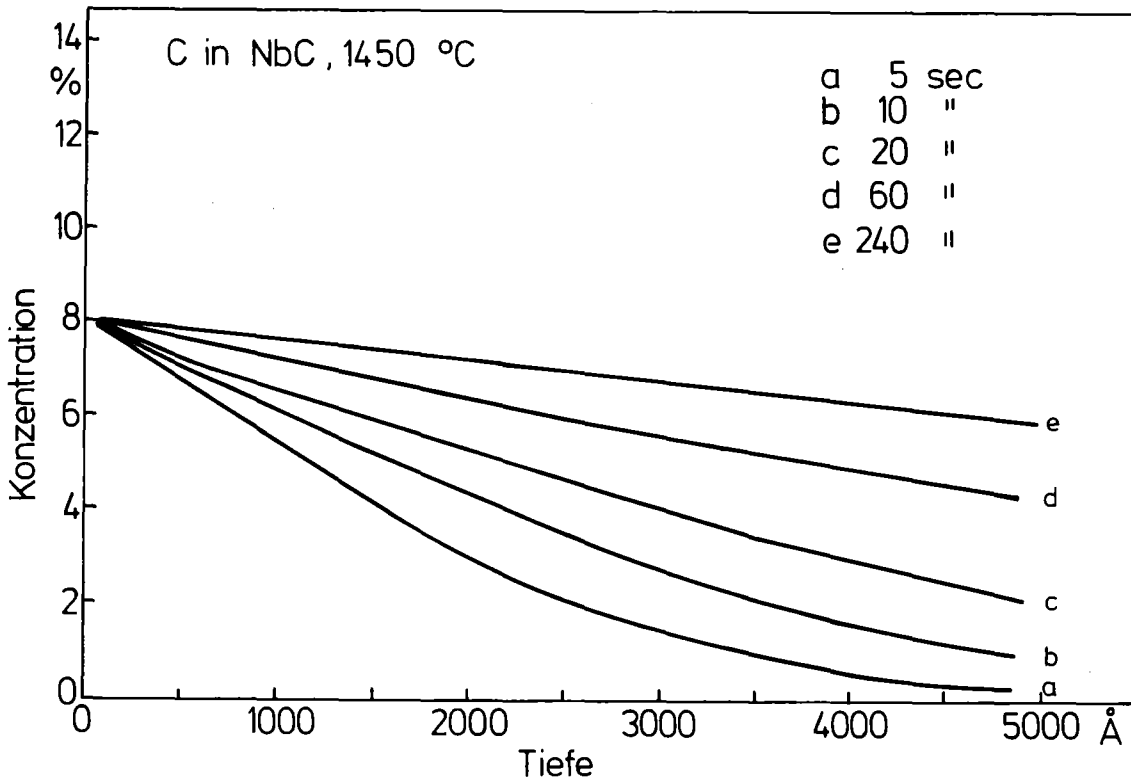


Abb. 11 Diffusionsprofile für den einzudiffundierenden C-Überschuß in NbC für eine konstante Quelle bei einer Temperatur von  $1450^{\circ}\text{C}$

Verlauf des Diffusionsprofils sehr flach ist und die Absolutkonzentration relativ klein ist. Deshalb muß man sich bei der Konzentrationsbestimmung auf die Messung des  $T_c$ -Wertes verlassen.

Sämtliche Einkristalle dieser Arbeit mit faststöchiometrischer ( $x=0.97-0.98$ ) Zusammensetzung wurden mit diesem Diffusionsverfahren hergestellt.

#### 2.1.5 Präparation der Einkristalloberflächen

Die durch Zonenschmelzen hergestellten Einkristalle wurden mit Hilfe von Laue-Aufnahmen in  $\langle 110 \rangle$ -Richtung orientiert und danach mit einer Diamantsäge in Scheiben von 1 - 2 mm Dicke geschnitten. Der Kristall war beim Schneiden so montiert, daß die  $\langle 110 \rangle$ -Richtung wenige Grade gegen die Oberflächennormale verkippt war. Die Schnittfläche wurde anschließend mit Diamantpaste der Korngröße 30  $\mu\text{m}$  und 1  $\mu\text{m}$  spiegelnd poliert.

Nach Reinigen in Methanol wurde die vom mechanischen Polieren beschädigte Oberflächenschicht nach einem von Geerk /73/ beschriebenen elektrolytischen Ätzverfahren entfernt. Es wurde so lange geätzt, bis die Probe völlig von einem schwarzen Überzug bedeckt war, was in der Regel 1 - 2 sec dauerte. Wie von Geerk /73/ untersucht wurde, ist dieser Überzug in elektrolytischer Lösung nicht leitend und besteht, wie durch Rückstreuung festgestellt wurde, hauptsächlich aus C. Die C-Schicht ist in den meisten der üblichen Säuren unlöslich. Als Lösungsmittel hat sich ein frisch angesetztes Gemisch aus 70 %  $\text{H}_2\text{SO}_4$  und 30 %  $\text{H}_2\text{O}_2$  bewährt, das als sehr starkes Oxidationsmittel wirkt. Nach Beendigung des Lösungsvorgangs wurden die Proben in Methanol gereinigt und mit Stickstoff trockengeblasen. Unter dem Lichtmikroskop zeigte sich bei 40-facher Vergrößerung eine metallisch spiegelnde Oberfläche.

## 2.2 Das Tieftemperaturgoniometer

### 2.2.1 Der He-Kryostat

Für die Channeling-Experimente wurde ein Tieftemperaturgoniometer verwendet, mit dem bis zu 4 K gemessen wurde. Dazu wurde der Einsatz eines Implantationskryostaten, wie er z.B. in [74] beschrieben ist, abgeändert<sup>+</sup>.

Das Kryostatenteil besteht aus 3 Teilen, Flansch (1), Zwischenstück (2) und He-Tank (3) (siehe Abb. 12). Der He-Tank ist am unteren Ende des Zwischenstückes, einem dünnwandigen Edelstahlrohr, angeschraubt. Das Zwischenstück wiederum ist mit dem oberen Flansch verschweißt. Der angeordnete Bund dieses Flansches dient als zentrische Führung und zur axialen Abdichtung des Flansches während der Drehung um die Vertikalachse. Die Lagerung des Flansches erfolgt durch gehärtete Stahlkugeln, die in einer dafür eingedrehten Nut nebeneinander eingelegt sind. Eine weitere Dichtungsnut dient zur radialen Abdichtung des Flansches. Die Abdichtung erfolgt mittels Viton-Rundschnurringen. An dem Flansch ist außen ein Zahnkranz aufgeschraubt, sodaß mittels Schrittmotor und Winkelcodierer die Drehung der vertikalen Achse gesteuert werden kann. An diesem Flansch sind die entsprechenden Durchführungen zum He-Tank befestigt, wie z.B. für den He-Heber, die He-Standanzeige, die He-Abgasleitung und die UHV-Drehdurchführung für den Schneckenantrieb.

Der He-Tank besteht aus einem Edelstahlflansch, auf den ein Cu-Rechteckblock hart gelötet ist. Durch den Flansch und in den Cu-Block ist ein Hohlraum ausgefräst, der mit flüssigem He gefüllt werden kann. Am unteren Teil dieses Cu-Blocks ist ein UHV-Kugellager eingesetzt, mit dem die Probenhalteraufnahme, ein Röhrchen, mittels Schneckengetriebe gedreht werden kann. Der Antrieb der Schnecke erfolgt über eine dünne Edelstahlstange, die über eine Kupplung mit der UHV-Drehdurchführung am oberen Flansch verbunden ist. Diese wiederum wird mit einem Schrittmotor, an den ein Winkelcodierer angeflanscht ist, angetrieben.

Die Probe ist auf einem Cu-Probenhalter befestigt. Dieser Probenhalter besteht aus einem Teller zur Probenbefestigung und einer Achse. Diese Achse wird in die Probenhalteraufnahme eingesetzt und mit einer Klemmvorrichtung auf der Rückseite fest verbunden. Der thermische Kontakt zwischen Cu-Block (He-Tank) und Probenteller wird über den Anpreßdruck zweier Druckfedern erreicht, die unter Vorspannung zwischen der Klemmvorrichtung und dem Schneckenrad eingesetzt sind.

---

<sup>+</sup>Der Kryostat wurde von Dr. J. Geerk, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Institut für Angewandte Kernphysik, konstruiert.

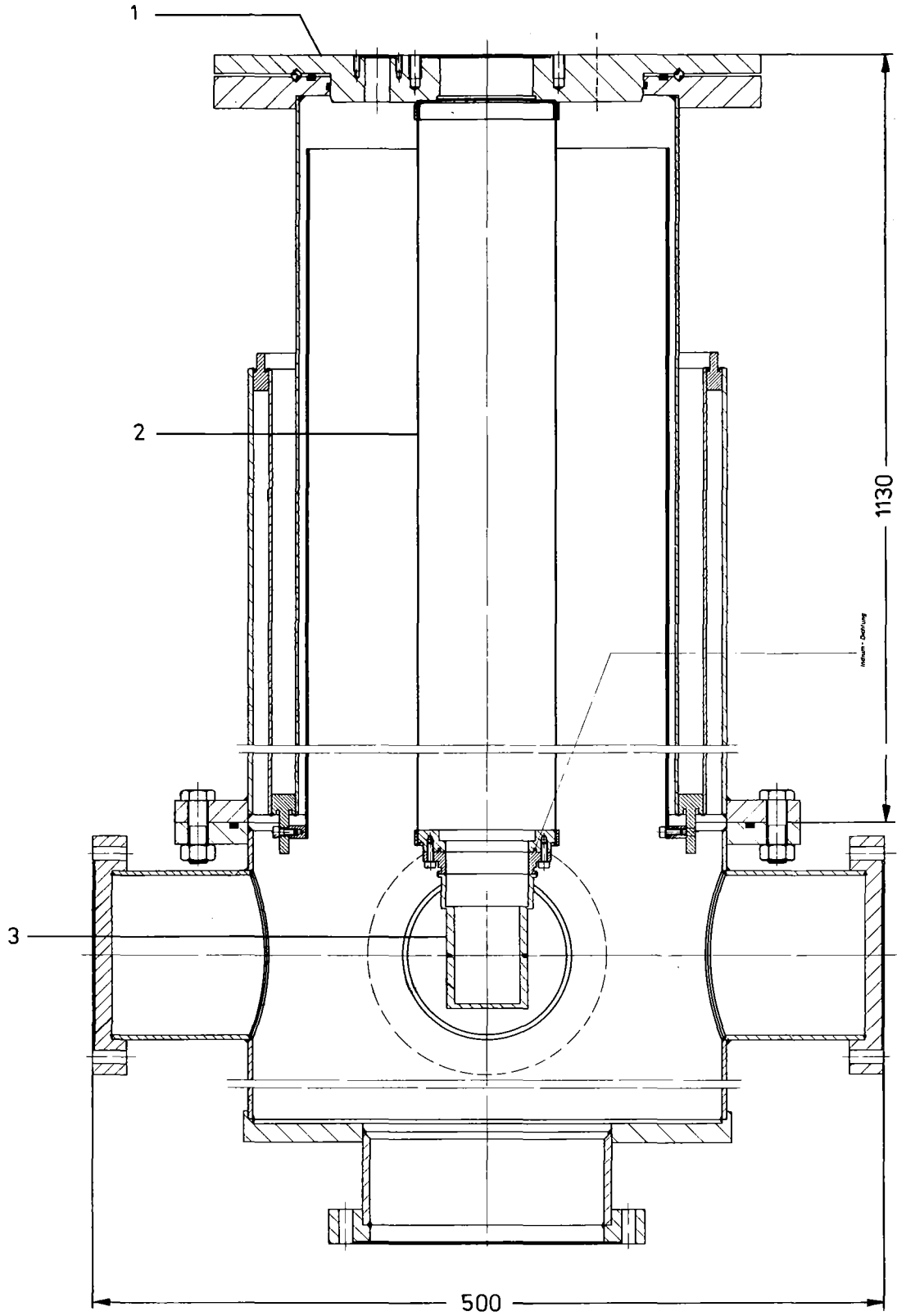


Abb. 12 Kryostateinsatz des Tieftemperaturzweiachsengoniometers mit Außenmantel und Streukammer

Das Gleiten des Tellers bei der Rotation und sein thermischer Kontakt mit dem Meßtank wird über eine Indium-Folie erreicht. Auf diese Weise kann die Probe um die Oberflächennormale gedreht werden. Abb. 13 zeigt das Oberteil des Kryostats mit dem Zahnkranz zur Rotation um die vertikale Achse. Auf diesem Bild ist die Anordnung der Schrittmotoren und Winkelcodierer zu erkennen. Abb. 14 zeigt den He-Tank mit der Getriebeanordnung zur Rotation der Probe um die Oberflächennormale. Das Außenteil des Kryostaten wird mit flüssiger Luft gekühlt. Zur Abschirmung von thermischer Einstrahlung auf den He-Tank ist am Außenteil eine Cu-Abschirmung befestigt. Am He-Tank selbst ist ebenfalls ein Cu-Abschirmbecher befestigt.

Die Genauigkeit der Rotation um die vertikale Achse beträgt  $0.02^\circ$ , die Rotation um die Probenoberflächennormale ist reproduzierbar auf  $0.2^\circ$ , sofern die Bewegung in derselben Richtung bleibt.

Die Kontrolle der Temperatur erfolgt durch einen geeichten Ge-Widerstand, der an der Seite des He-Tanks angebracht ist.

Da der drehbare Probesteller in Bezug auf die thermische Ankopplung an den He-Tank sicherlich noch keine optimale technische Lösung darstellt, wurde die Temperatur mit einem am Ort der Probe angebrachten Ge-Widerstand gemessen. Unter den gegebenen experimentellen Bedingungen einer Rückstreuung wurde eine Temperatur von 5.5 K am Probenort mit He-Strahl gemessen.

Das Vakuum in der Meßkammer wird durch eine Turbomolekularpumpe erzeugt. Es beträgt bei Raumtemperatur etwa  $10^{-6}$  Torr und liegt bei abgekühltem Zustand des Kryostaten bei  $10^{-7}$  Torr.

Der Ionenstrom wird direkt durch Stromintegration auf der Probe gemessen. Dies wird dadurch ermöglicht, daß die Probe mittels einer Glimmerscheibe isoliert auf dem Probenhalter sitzt. Zu beiden Seiten der Glimmerscheibe ist wiederum Indium-Folie angebracht, um einen guten thermischen Kontakt zu gewährleisten. Die Unterdrückung der bei Beschuß mit hochenergetischen Ionen entstehenden Sekundärelektronen wird durch eine an der Innenseite des He-Abschirmbechers angebrachten Blende erreicht, die isoliert befestigt ist und auf einem negativen Potential von -300 V liegt.

### 2.2.2 Steuerung durch einen NOVA-Computer

Die Rotationsbewegungen des Tieftemperaturgoniometers werden durch Vierphasenschrittmotoren mit Untersetzungsgetrieben ausgeführt. Bei Rotation um die Vertikale, als  $\Theta$  bezeichnet, wird  $0.005^\circ$  pro Schritt und bei

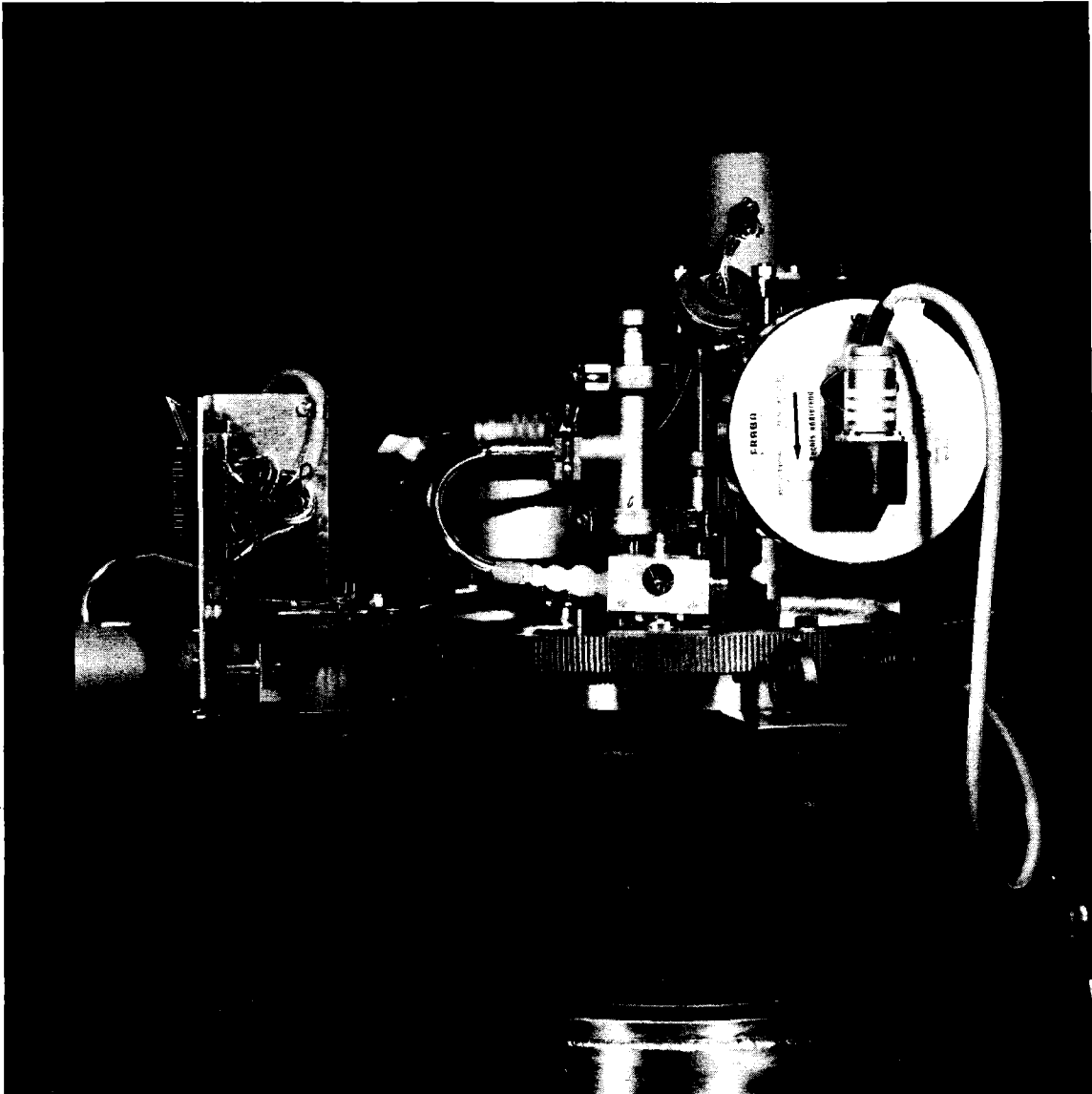


Abb. 13 Kryostatoberteil mit Zahnkranz zur Rotation um die vertikale Achse

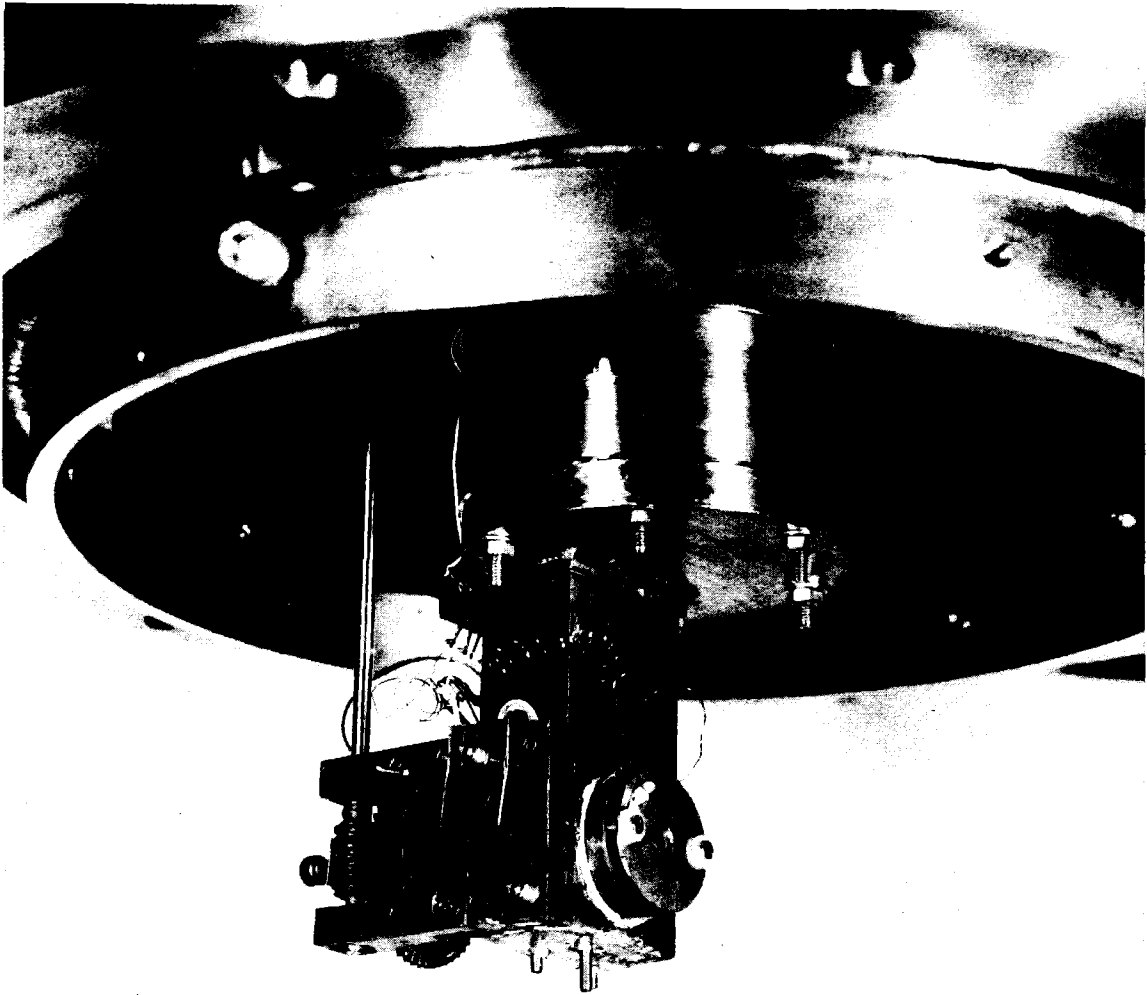


Abb. 14 He-Tank mit Getriebe zur Rotation der Proben um die Oberflächennormale



Rotation um die Probenoberflächennormale, als  $\phi$  bezeichnet,  $0.01^\circ$  pro Schritt gefahren. Die momentane Stellung des Goniometers wird durch zwei absolute Winkelcodierer angezeigt, die eine volle  $360^\circ$ -Drehung mit einer Auflösung von  $0.25^\circ$  codieren. Der Winkelcodierer für den Winkel  $\Theta$  ist so untersetzt, daß die tatsächliche Auflösung  $0.05^\circ$  beträgt. Um trotzdem Positionen zwischen den einzelnen Marken des Winkelcodierers anfahren zu können, werden die Schritte der Motoren gezählt.

Die Steuerung und Kontrolle des Goniometers sowie die Meßdatenaufnahme bei Rückstreu- und Kernreaktionsmessungen geschieht durch einen NOVA 3 Minicomputer, der über 128 KByte Speicher und zwei 10 MByte-Magnetplattenlaufwerke verfügt. Die Ausführung der Meßdatenaufnahme ist in / 75 / beschrieben. Das bereits bestehende Meßprogrammsystem LOLA wurde zur Anpassung an die besonderen Anforderungen eines Channeling-Experiments verändert und ausgebaut. Die Kommunikation zwischen Rechner und Experiment geschieht über ein CAMAC-Datenerfassungssystem. Die Schrittmotoren werden durch Schrittmotortreiber über eine anschließende Leistungsstufe gesteuert. Die Winkelcodierer, deren Winkelinformation im 13 bit-Petherick-Code verschlüsselt ankommt, werden über einen Multiplexer und einen anschließenden Line Driver, der die schwachen Signale für den langen Weg zum Rechner verstärkt, mit einem CAMAC-Input/Output-Register verbunden. Der Input-Teil des Registers gibt die Winkelinformation an den Rechner weiter, der Output-Teil gibt dem Multiplexer das entsprechende Signal, welcher Codierer gerade ausgelesen werden soll. Der entsprechende Schaltplan ist in Abb. 15 gezeigt. Die elektronische Steuerung wurde zur Kontrolle eines Dreiaxengoniometers gebaut, bei dem hier beschriebenen Tieftemperaturgoniometer sind nur die Einheiten mit der Bezeichnung  $\phi$  und  $\Theta$  in Betrieb. In Abb. 16 und 17 sind die Einzelheiten der Leistungsstufe für die Schrittmotoren und den Multiplexer mit anschließendem Line-Driver gesondert herausgezeichnet.

Zur Kontrolle des Goniometers und zur automatischen Aufnahme von winkelabhängigen Ausbeutekurven wurde eine Reihe von Programm-Routinen entwickelt, die nachstehend kurz aufgelistet sind:

- I. Positionierung des Goniometers über die Schalter der Einzelbitsteuerung und Anzeige der Position sowie des momentanen Spektrums auf dem Fernsehschirm

- II. Bestimmung der absoluten Position nach Justierung des Goniometers mittels eines Lasers
- III. Positionierung des Goniometers durch Eingabe der Zielwinkel an der Fernschreibkonsole
- IV. Routine zur Aufnahme von winkelabhängigen Ausbeutekurven. Parameter sind das Winkelinkrement, die Anzahl der Schritte, die Zahl und Werte der Energiefenster. Die gemessenen Werte werden auf dem Fernsehschirm geplottet und auf dem Drucker gelistet
- V. Routine zur Aufnahme von winkelabhängigen Ausbeutekurven, wenn die Position des axialen Kanals angegeben wird. Weitere Parameter: Winkel zwischen Kippebene und der Ebene aus Strahlrichtung und Detektorrichtung
- VI. Aufnahme von Spektren bei vorgegebenen Winkelpositionen und Ladungen
- VII. Aufnahme von Spektren bei nicht orientiertem Kristall durch Rotation um die Oberflächennormale. Eingabeparameter ist der Kippwinkel und der Winkelbereich für die Rotation. Während der Drehung nimmt das Goniometer an 100 Positionen Spektren bei vorgegebener Ladung auf
- VIII. Gleichzeitiges Darstellen von mehreren winkelabhängigen Ausbeutekurven auf dem Fernsehschirm
- IX. Plotten mehrerer winkelabhängiger Ausbeutekurven auf einem CALCOMP-565-Plotter



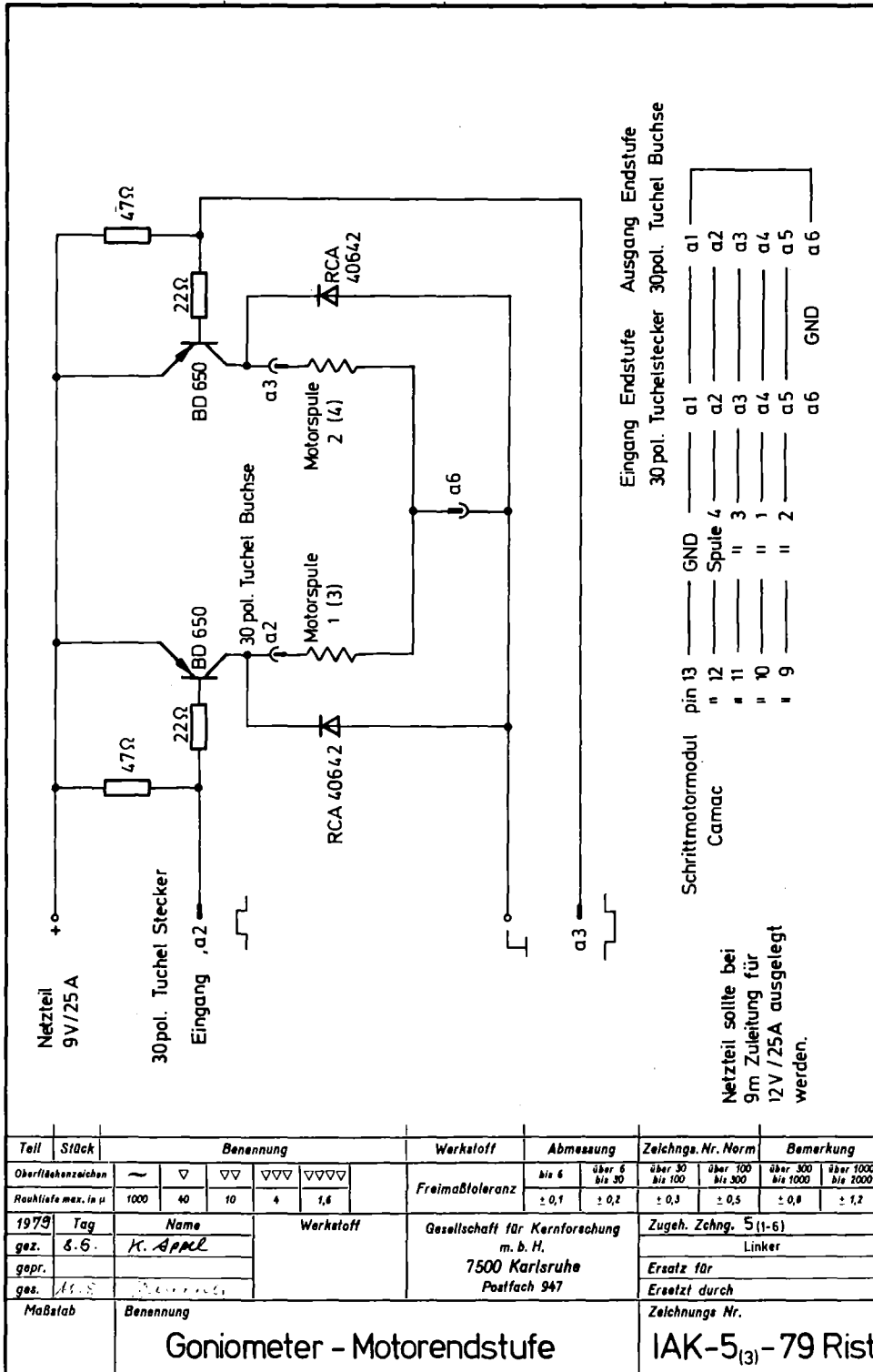
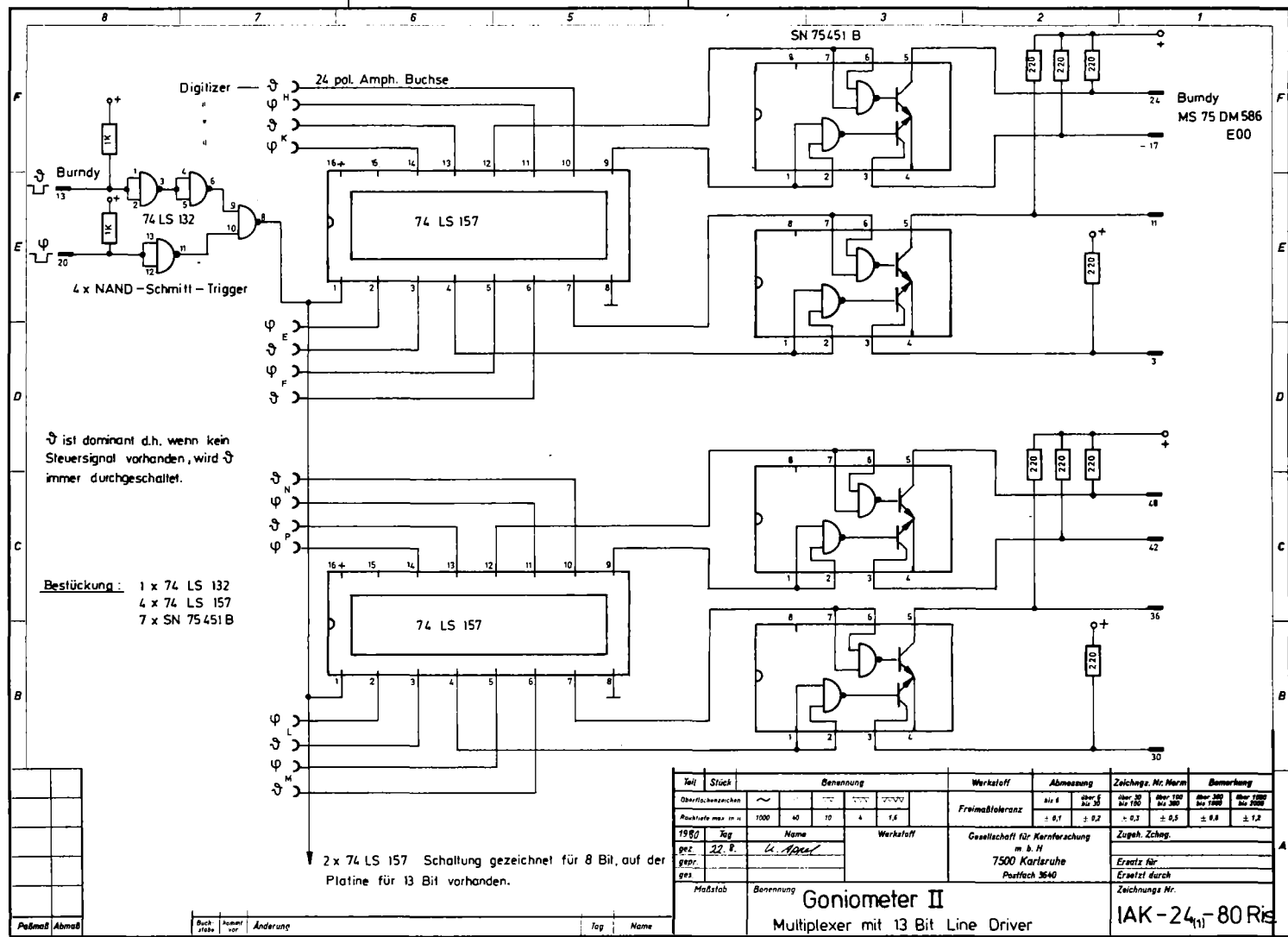


Abb. 16 Schaltplan einer Einheit der Leistungsstufe

Abb. 17 Schaltplan des 13 bit Multiplexers mit Line-Driver



## 2.3 Rückstreu- und Kernreaktionsexperimente

### 2.3.1 Beschreibung der Analyse-methode

Eine Übersicht über die physikalischen Prozesse, die beim Rückstreuexperiment eine Rolle spielen, ist z.B. in [76] gegeben. Hier sollen nur die wichtigsten Analysenschritte dargelegt werden.

Treffen Ionen auf einen Festkörper, so wird ein Teil des einfallenden Strahles zurückgestreut, wobei die Energie der rückgestreuten Teilchen außer von der Einfallenergie, von der Masse der Targetatome, vom Streuwinkel, aber auch von der Tiefe abhängt, in der der Streuprozess stattfand. Beim elastischen Stoß des Ions mit einem Targetatom gilt:  $E = K \cdot E_1$ , wenn  $E_1$  die Energie des Teilchens vor dem Stoß und  $E$  die Energie des gestreuten Teilchens darstellt. Der kinematische Faktor  $K$  läßt sich aus Energie- und Impulserhaltung beim elastischen Stoß berechnen:

$$K = \left[ \frac{M_1 \cos\theta + (M_2^2 - M_1^2 \sin^2\theta)^{1/2}}{M_1 + M_2} \right]^2 \quad (2.1)$$

$\theta$  = Streuwinkel im Laborsystem

$M_1$  = Masse des einfallenden Ions

$M_2$  = Masse des Targetatoms.

Auf ihrem Weg durch den Festkörper vor und nach dem Streuprozess verlieren die Ionen Energie durch Wechselwirkung mit den Elektronen. Die Energie des in einer Tiefe  $t$  gestreuten Teilchens,  $E_1$ , bei senkrechtem Einfall ergibt sich nach dem Verlassen des Festkörpers:

$$E_1(t) = K \cdot \left[ \underbrace{E_0 - \int_0^t \frac{dE}{dx}(E) dx}_{\text{Energie vor dem Streuprozess}} - \underbrace{\int_0^{t/\cos\theta} \frac{dE}{dx}(E) dx}_{\text{Energieverlust nach dem Streuprozess beim Herauslaufen}} \right] \quad (2.2)$$

Energie nach dem Streuprozess

$\frac{dE}{dx}(E)$  = differentieller Energieverlust als Funktion der Energie

$E_0$  = Einschußenergie der Teilchen.

Durch diese Beziehung läßt sich die Energieskala eines Rückstreuspektrums in eine Tiefenskala umrechnen.

Eine schematische Übersicht der beschriebenen Vorgänge ist in Abb. 18 dargestellt. Die für den Rückstreuprozess verantwortliche Wechselwirkung kann in dem hier betrachteten Energiebereich durch ein reines Coulomb-Potential beschrieben werden. Der differentielle Streuquerschnitt ist im Laborsystem durch die Rutherford-Streuformel gegeben:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left[ \frac{Z_1 Z_2 e^2}{2E \cdot \sin\theta} \right]^2 \frac{[\cos\theta + [1 - (M_1/M_2 \sin\theta)^2]^{1/2}]^2}{[1 - (M_1/M_2 \sin\theta)^2]^{1/2}} \quad (2.3)$$

$e$  = Elementarladung

$Z_1$  = Ladungszahl des einfallenden Teilchens

$Z_2$  = Ladungszahl der Targetatome

$E$  = Energie am Streuort vor dem Streuprozess.

Die Rückstreurrate, also die Zahl rückgestreuter Teilchen mit der Energie  $E_1$  pro Energieintervall  $\delta E_1$  kann berechnet werden mit der Formel /76/:

$$H(E_1) = Q \cdot \sigma(E) \bar{\Omega} \delta(kE) / [\varepsilon(E)] \quad (2.4)$$

$Q$  = auf die Probe geflossene Ladung

$E_1$  = Energie des nachgewiesenen Teilchens

$\bar{\Omega}$  = vom Detektor aufgespannter Raumwinkel.

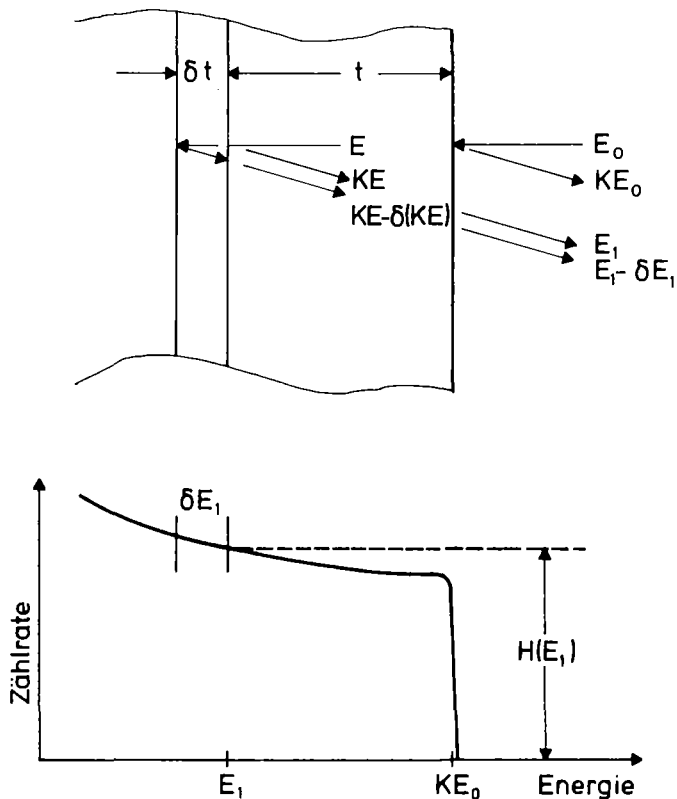


Abb. 18 Schematische Darstellung des Rückstreuprozesses und des dabei erhaltenen Rückstreupektrums

Der Abbremsquerschnitt  $[\varepsilon(E)]$  ist gegeben durch:

$$[\varepsilon(E)] = K \cdot \frac{1}{N} \cdot \frac{dE}{dx} \Big|_E + \frac{1}{|\cos \Theta|} \frac{1}{N} \frac{dE}{dx} \Big|_{kE} \quad (2.5)$$

$\frac{dE}{dx}$  ist der bereits in 1.2.3 erläuterte elektronische Energieverlust

$N$  = atomare Dichte.

$\delta(kE)$  kann nicht direkt gemessen werden, ist aber näherungsweise gegeben durch:

$$\delta(kE) \approx \frac{\varepsilon(kE)}{\varepsilon(E_1)} \cdot \delta E_1 \quad (2.6)$$

wobei  $\varepsilon(E) = \frac{1}{N} \frac{dE}{dx} \Big|_E$   
 $\delta E_1$  = Energie pro Kanal.

Damit ergibt sich aus (2.4):

$$H(E_1) = Q \cdot \sigma(E) \bar{\Omega} \delta E_1 / [\varepsilon(E)] \cdot \varepsilon(kE) / \varepsilon(E_1). \quad (2.7)$$

Die bisherigen Überlegungen galten für Targets, die nur aus einer Atomsorte bestehen. Bei mehrkomponentigen Systemen entsteht das Rückstreuungsspektrum als eine Überlagerung der Rückstreusignale der einzelnen Atomsorten, die entsprechend den unterschiedlichen kinematischen Faktoren auf der Energieskala gegeneinander verschoben sind. Die Höhen der Rückstreusignale der einzelnen Atomsorten variieren entsprechend der Zusammensetzung und damit des zusammengesetzten Abbremsquerschnitts und der unterschiedlichen Streuquerschnitte. Der zusammengesetzte Abbremsquerschnitt kann unter der Voraussetzung der Bragg'schen Regel, die besagt, daß die Abbremsquerschnitte der Einzelkomponenten sich additiv verhalten, berechnet werden. Für den Gesamtbremsquerschnitt einer Verbindung gilt dann:

$$\varepsilon_{mBn}^A = m\varepsilon^A + n\varepsilon^B \quad (2.8)$$

In Abb. 19 sind Rückstreuungsspektren von 2 MeV  $He^+$ -Teilchen an einer NbC-Probe bei orientiertem und nicht-orientiertem Einschuss gezeigt.

Mit Hilfe eines Einkanalanalysators werden die Rückstreusignale über einen vorgegebenen Energiebereich integriert. Wird der Inhalt dieses sogenannten "Energiefensters" als Funktion des Einschusswinkels registriert, so ergibt sich die "winkelabhängige Ausbeutekurve". Solche Kurven sind in



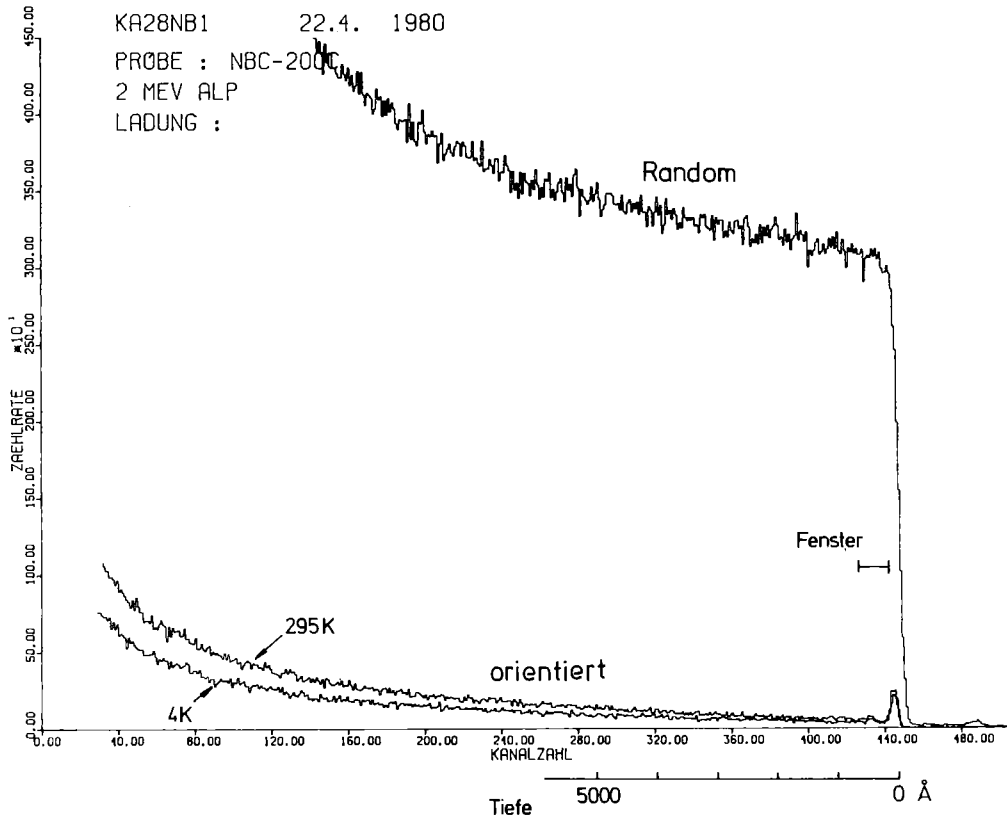


Abb. 19 Rückstreuungsspektrum (Nb-Signale) bei nicht-orientiertem Kristall (Random) und bei orientiertem Einschuss parallel zur  $\langle 110 \rangle$ -Richtung für 2 MeV  $\text{He}^+$  auf NbC

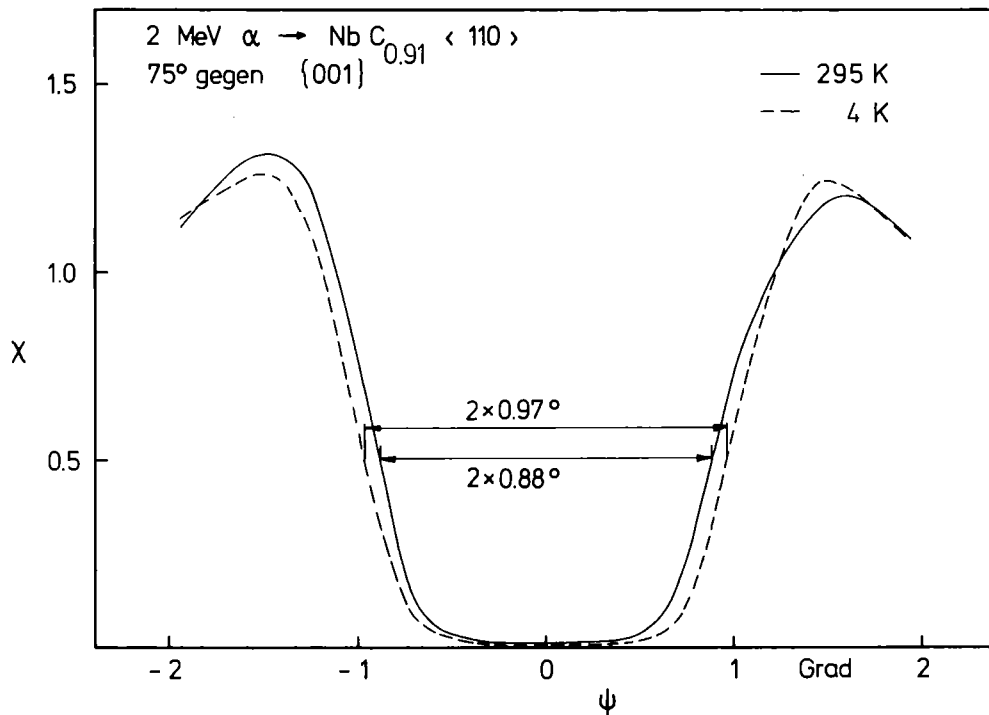


Abb. 20 Winkelabhängige Ausbeutekurve (Nb-Signale) für 2 MeV  $\text{He}^+$ -Teilchen bei verschiedenen Temperaturen

Abb. 20 für verschiedene Temperaturen aufgetragen.

Die Ausbeute durch Rückstreuung an den C-Atomen läßt sich wegen der geringen Masse des C-Atoms im Vergleich zu der des Nb-Atoms nicht messen. Die selektive Registrierung der C-Signale ist jedoch z.B. mit Hilfe von Kernreaktionen möglich, wenn das Reaktionsprodukt eine höhere Energie besitzt als die an Nb gestreuten Teilchen. Der Nachteil der Kernreaktionsmethode ist, daß die Wirkungsquerschnitte für Kernreaktionen meistens wesentlich kleiner sind als für Rutherford-Rückstreuung, so daß mit schlechter Statistik gemessen wird.

Die kinetische Energie der Reaktionsprodukte läßt sich auf Grund von Energie- und Impulserhaltungssatz berechnen, wobei der Q-Wert der Reaktion sich aus der Massendifferenz der Reaktionsprodukte ergibt /77/.

Für die Untersuchung der Ausbeute an den C-Atomen in NbC wurde die  $^{12}\text{C}(\text{d},\text{p})^{13}\text{C}$ -Kernreaktion verwendet. Der Wirkungsquerschnitt dieser Reaktion für einen Laborwinkel von  $150^\circ$  steigt im Energiebereich von 1.275 MeV bis 1.20 MeV von einem Wert von 148 mb/sr auf 180 mb/sr nahezu linear an /77/. Daher wurde mit einer Einfallenergie von 1.27 MeV gemessen, wobei die Energieabhängigkeit durch den linearen Anstieg korrigiert werden kann. Bei Energien unterhalb von 1.2 MeV fällt der Wirkungsquerschnitt auf Werte von 60 mb/sr scharf ab. Der Q-Wert der Reaktion beträgt 2.723 MeV. Die Energie des auslaufenden Protons beträgt, bei einer d-Energie von 1.2 MeV und bei einem Laborwinkel von  $165^\circ$  3.09 MeV. Ausbeutespektren für diese Reaktion sind in Abb. 21 dargestellt.

Auf Grund des niedrigen elektronischen Energieverlusts der einlaufenden Deuteronen und auslaufenden Protonen beträgt die Tiefenauflösung nur etwa  $1500 \text{ \AA}$ . Winkelabhängige Ausbeutekurven sind in Abb. 22 dargestellt.

### 2.3.2 Ergänzende Angaben zum Experiment

Eine ausführliche Beschreibung der Rückstreumeßapparatur mit zugehöriger Elektronik ist z.B. in /68/ gegeben. Deshalb werden hier nur einige für die Experimente in dieser Arbeit wichtige Größen angegeben.

Die Rückstremessungen wurden mit  $2 \text{ MeV } ^4\text{He}^+$ -Teilchen, die von einem Van-de-Graaff-Beschleuniger geliefert wurden, ausgeführt. Der Fehler in der Bestimmung der Absolutenergie der einfallenden Teilchen liegt bei  $\pm 5 \text{ keV}$ , die Konstanz der Beschleunigungsspannung beträgt  $\pm 2 \text{ keV}$ . Der Strahlquerschnitt auf der Probe beträgt  $1 \text{ mm}^2$ , die Divergenz des Strahls

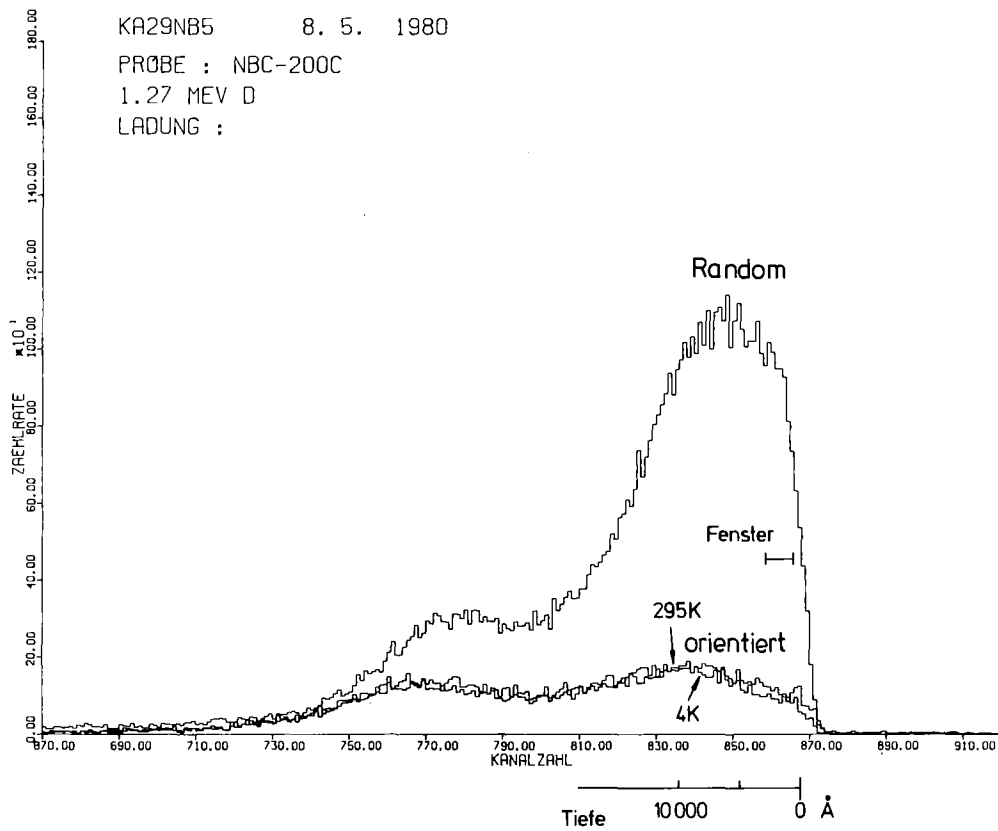


Abb. 21 Reaktionsausbeutespektren (C-Signale) für 1.27 MeV d an NbC bei nicht-orientierter und in  $\langle 110 \rangle$ -Richtung orientierter Probe.

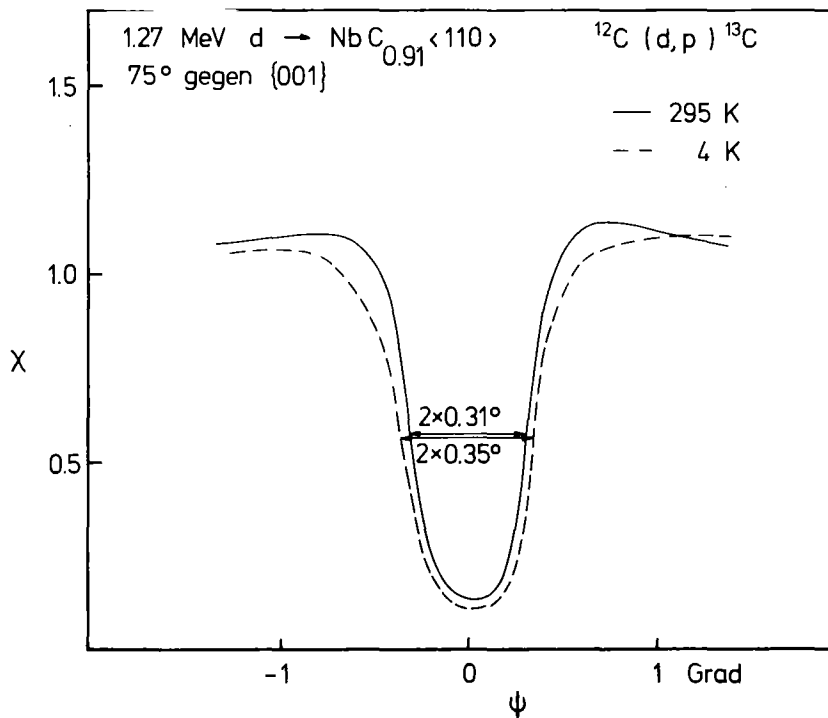


Abb. 22 Winkelabhängige Ausbeutekurve (C-Signale) für die  $^{12}\text{C}(d,p)^{13}\text{C}$ -Kernreaktion an NbC bei verschiedenen Temperaturen.

ist  $<0.01^\circ$ . Der Strahlstrom betrug zwischen 15 und 20nA, die integrierte Ladung pro Meßpunkt einer winkelabhängigen Ausbeutekurve war  $2-3 \cdot 10^{-7}$  Cb, die gesamte Ladung für ein Rückstreupektrum  $10^{-5}$  Cb. Der Nachweis der unter einem Winkel von  $165^\circ$  rückgestreuten Teilchen erfolgte durch einen Silizium-Oberflächensperrschichtzähler in einem Raumwinkel von 4,6 msterad. Die Energieauflösung des gesamten Meßsystems betrug etwa 20 keV.

Bei den Kernreaktionsexperimenten wurde mit 1,27 MeV Deuteronen gearbeitet. Alle übrigen Größen waren diesselben wie bei den Rückstreuexperimenten.

### 3. ERGEBNISSE UND DISKUSSION

#### 3.1 Testuntersuchungen an einem Mo-Einkristall

Als Testsubstanz für die Channeling-Messungen mit dem Tieftemperaturzweiachsengoniometer wurde ein Mo-Einkristall gewählt. Mo war deshalb als Testsubstanz gut geeignet, weil alle für die Computer-Simulation wesentlichen Parameter wie thermische Schwingungsamplituden und elektronischer Energieverlust bekannt sind. Es wurden 2 MeV He<sup>+</sup>-Teilchen verwendet. Der Kristall wurde bei Raumtemperatur in <100>-Richtung orientiert. Die Kippebene wurde 21° gegen die {001}-Ebene gewählt, da hier der störende Einfluß von Gitterführung entlang von höher indizierten Gitterebenen vermieden wurde. Das Energiefenster entsprach einer Tiefe von 250 - 850 Å. Zunächst wurde eine winkelabhängige Ausbeutekurve aufgenommen, danach wurde das Spektrum bei in <100> orientiertem Einschub gemessen, um die minimale Ausbeute  $\chi_{\min}$  mit großer Genauigkeit zu bestimmen.  $\chi_{\min}$  betrug 0.026, die Halbwertsbreite  $\psi_{1/2}$  war 0.99°. Die Messungen bei einer Temperatur von 78 K ergaben  $\chi_{\min} = 0.017$  und  $\psi_{1/2} = 1.18^\circ$ . Bei 4 K ergaben sich  $\chi_{\min} = 0.017$  und  $\psi_{1/2} = 1.20^\circ$ . Dieses Verhalten entspricht der Tatsache, daß die thermische Schwingungsamplitude von 78 K nach 4 K sich nur sehr wenig ändert /78/ (siehe Tabelle 4).

Die experimentellen Ergebnisse wurden mit Computer-Simulationsrechnungen verglichen. Es wurden winkelabhängige Ausbeutekurven für dieselbe Tiefe, wie sie im Experiment gewählt wurde, gerechnet. Ein Vergleich von gerechneten und gemessenen Werten für die minimale Ausbeute  $\chi_{\min}$  und die Halbwertsbreite  $\psi_{1/2}$  ist in Tabelle 4 dargestellt.

| Temperatur<br>K | u<br>Å | $\chi_{\min}$ Exp. | $\chi_{\min}$ Theor. | $\psi_{1/2}$ Exp.<br>o | $\psi_{1/2}$ Theor.<br>o |
|-----------------|--------|--------------------|----------------------|------------------------|--------------------------|
| 295             | 0.057  | 0.026±0.005        | 0.017±0.005          | 0.99±0.02              | 0.97±0.02                |
| 78              | 0.035  | 0.017±0.005        | 0.007±0.005          | 1.18±0.02              | 1.17±0.02                |
| 4               | 0.032  | 0.017±0.005        | 0.006±0.005          | 1.20±0.002             | 1.21±0.02                |

Tabelle 4 Vergleich von gemessenen und gerechneten Werten der minimalen Ausbeute  $\chi_{\min}$  und der Halbwertsbreite  $\psi_{1/2}$  für 2 MeV He<sup>+</sup> auf Mo <100>.

Bei  $\psi_{1/2}$  zeigt sich eine gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment. Bei  $\chi_{\min}$  wurde eine von der Temperatur unabhängige Differenz von etwa 0.01 zwischen Theorie und Experiment gefunden. Der Grund liegt vermutlich darin, daß die Simulation für einen perfekten Kristall durchgeführt wurde, während der reale Kristall immer mit einer geringen Zahl an Fehlstellen oder langreichweitigen Defekten wie Stapelfehler behaftet ist. Dies kann zu einem zusätzlichen Beitrag in  $\chi_{\min}$  führen.

Gemessene und gerechnete winkelabhängige Ausbeutekurven sind in Abb. 23 für Temperaturen von 295 K und 4 K dargestellt. Die Übereinstimmung der Kurven in der Halbwertsbreite ist sehr gut. Für Ausbeutewerte  $\chi < 0.5$  liegen die theoretischen Werte unter den experimentellen, für  $0.5 < \chi < 1.0$  liegen die theoretischen Werte über den experimentellen. Dies kann auf eine Mosaikverteilung des Kristalls von etwa  $0.2^\circ$  zurückzuführen sein. Für  $\chi > 1.0$  liegt die experimentelle Ausbeute etwa 10 % über der theoretischen. Der Grund hierfür ist vermutlich, daß die Kippebene im Experiment nur auf  $\pm 2^\circ$  bestimmt werden konnte und deshalb nicht genau mit der in der Rechnung verwendeten Kippebene übereinstimmt. Es hat sich jedoch gezeigt, daß Änderungen der Kippebene im Experiment um  $\pm 2^\circ$  die Halbwertsbreite nur geringfügig beeinflussen.

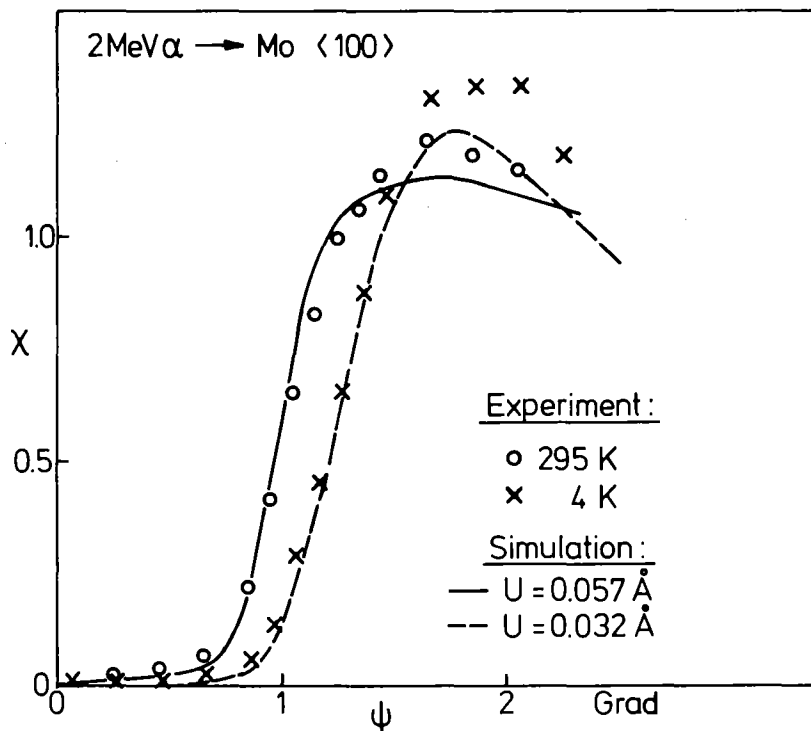


Abb. 23 Winkelabhängige Ausbeutekurven für 2 MeV  $\text{He}^+$  auf Mo  $\langle 100 \rangle$

In Abb. 24 sind die Rückstreuenspektren für den orientierten und den nicht-orientierten Einschuss von  $\text{He}^+$ -Teilchen auf den Mo-Einkristall bei verschiedenen Temperaturen gezeigt. Bei Abkühlen von 295 K auf 4 K nimmt die Rückstreuerausbeute bei orientiertem Einschuss deutlich ab, da die Aufstreuung der geführten Teilchen, das sogenannte Dechanneling, durch die kleine Schwingungsamplitude ebenfalls abnimmt.

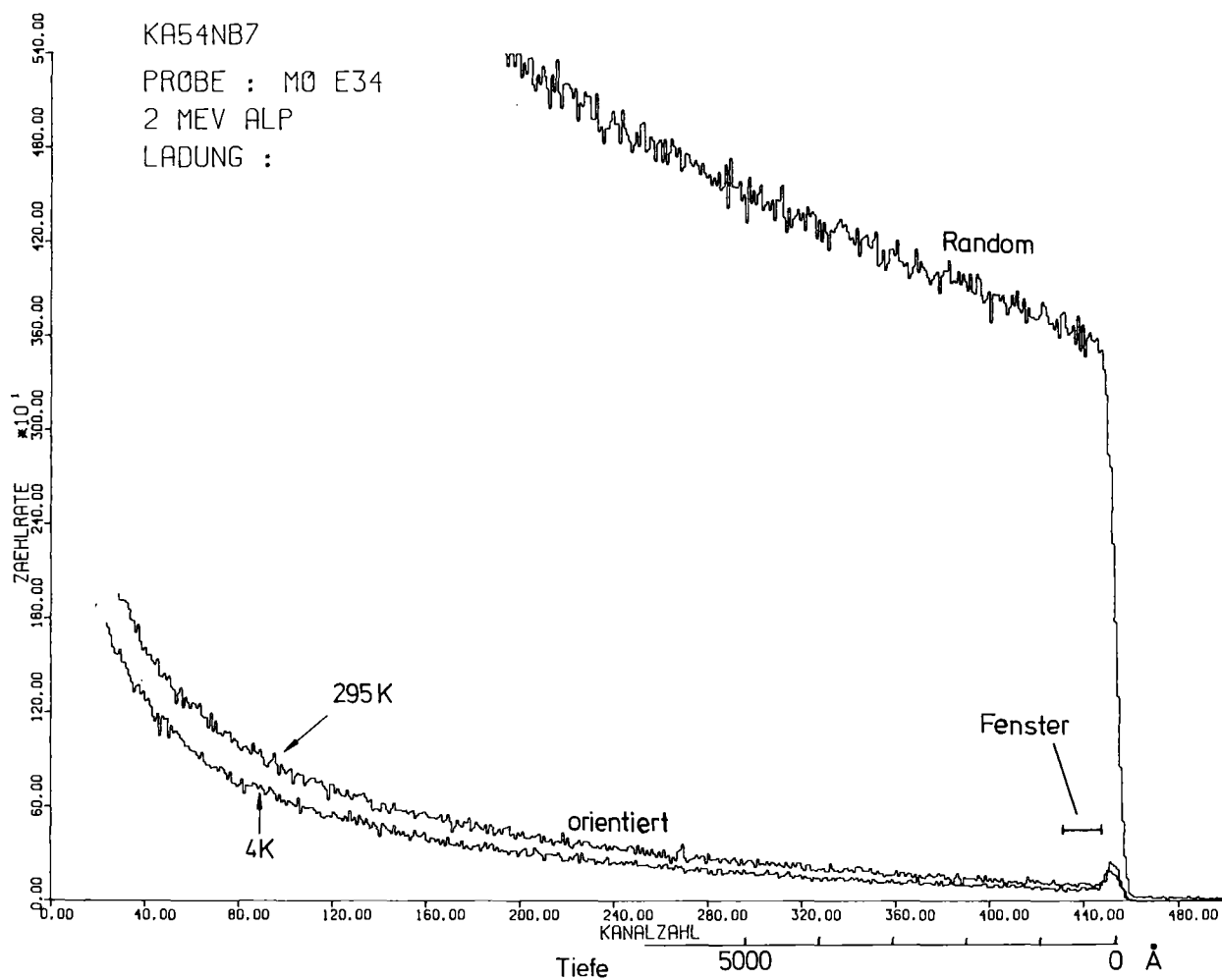


Abb. 24 Rückstreuenspektren von 2 MeV- $\text{He}^+$ -Teilchen an einem Mo-Einkristall. Gezeigt sind Spektren bei nicht-orientiertem und bei orientiertem Kristall für verschiedene Temperaturen.

### 3.2 Channeling-Messungen an NbC<sub>x</sub>-Einkristallen als Funktion der Temperatur

#### 3.2.1 Ausbeute durch Streuung an Nb-Atomen

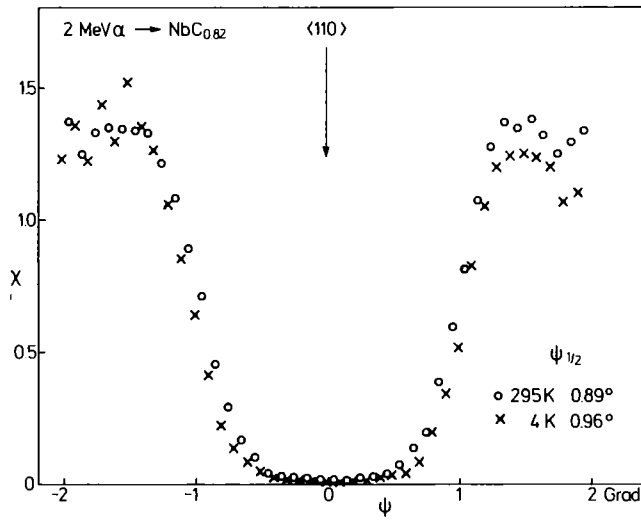
Die Channeling-Messungen wurden an den NbC-Einkristallen durchgeführt, die in Tabelle 2 aufgeführt sind. Die Messungen der Ausbeute durch Streuung an Nb-Atomen wurden mit 2 MeV-He<sup>+</sup>-Teilchen vorgenommen. Auf Grund verschiedenen Schnitts der Kristalle wurden bei den Experimenten an verschiedenen Kristallen auch unterschiedliche Kippebenen gewählt. Gemessene Halbwertsbreiten von winkelabhängigen Ausbeutekurven an einem NbC-Kristall variierten um 0.04° bei unterschiedlichen Kippebenen. Dies muß beim Vergleich von Ausbeutekurven, die unter verschiedenen Kippebenen gemessen wurden, berücksichtigt werden. Diese Schwierigkeit wird bei der Analyse der experimentellen Ausbeutekurven mit Computer-Simulationsergebnissen aufgehoben.

In den Abb. 25a,b,c sind winkelabhängige Ausbeutekurven für drei verschiedene Zusammensetzungen a) x = 0.82 b) x = 0.91 c) x = 0.98 als Funktion der Temperatur dargestellt. Die Kippebenen für die drei Kristalle lagen bei a)  $\phi = 20^\circ$  b)  $\phi = 15^\circ$  c)  $\phi = 75^\circ$ . Bei x = 0.82 nahm die Halbwertsbreite bei Abkühlung von 295 K auf 4 K von 0.89° auf 0.96° zu, bei x = 0.91 von 0.89° auf 0.98° und bei x = 0.98 von 1.03° auf 1.18°.

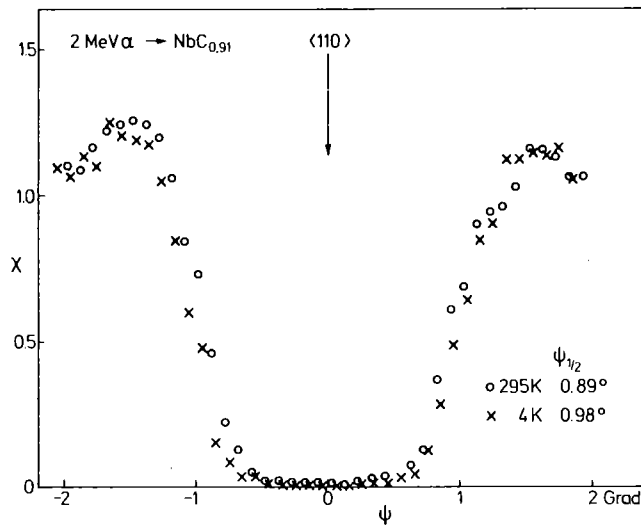
In Abb. 26 sind die Halbwertsbreiten  $\psi_{1/2}$  (Nb-Signale) für 295 K (+) und 4 K (o) als Funktion der Zusammensetzung x dargestellt. Die Werte sind für beide Temperaturen im Konzentrationsbereich x = 0.82 - 0.91 nahezu konstant und steigen im Bereich x = 0.91 - 0.98 um etwa 0.2° an. Diese Zunahme der Halbwertsbreite weist darauf hin, daß die Nachdiffusion von C in die NbC-Kristalle gelungen ist. Die Streuung der Halbwertsbreiten kommt hauptsächlich durch die Wahl unterschiedlicher Kippebenen bei der Aufnahme winkelabhängiger Ausbeutekurven zustande. Die Meßpunkte streuen auch, weil zu den Untersuchungen verschiedene Kristalle mit unterschiedlichem Gehalt an Kristallfehlern wie z.B. Versetzungen oder Stapelfehler herangezogen wurden.

Die Differenz der Halbwertsbreiten  $\psi_{1/2}$  der winkelabhängigen Ausbeutekurven bei 4 K und 295 K ist in Abb. 27 als Funktion der Zusammensetzung x aufgetragen. Es wurde dazu die Ausbeute durch Streuung an Nb-Atomen mit He<sup>+</sup>-Teilchen und Deuteronen herangezogen. Die Streuung der

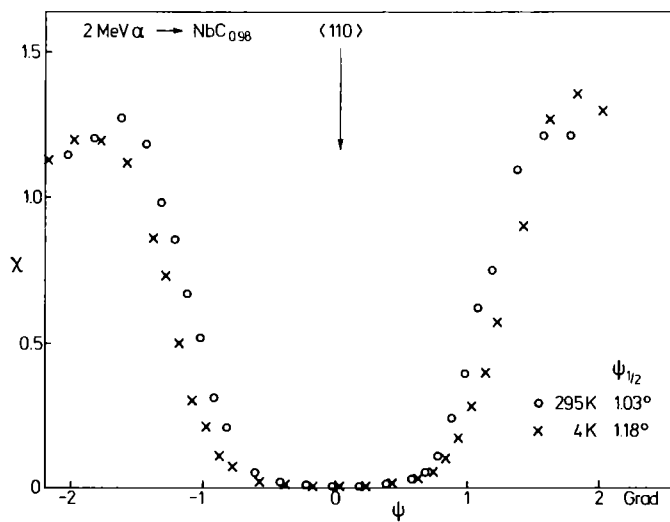




a



b



c

Abb. 25 Winkelabhängige Ausbeutekurven (Nb-Signale) für  $\text{NbC}_x$  mit 2 MeV  $\text{He}^+$ -Teilchen bei Raumtemperatur und 4 K.  
 a)  $x = 0.82$  b)  $x = 0.91$  c)  $x = 0.98$ .  
 Die Kippebenen lagen bei a)  $\phi = 20^\circ$  b)  $\phi = 15^\circ$  c)  $\phi = 75^\circ$ .

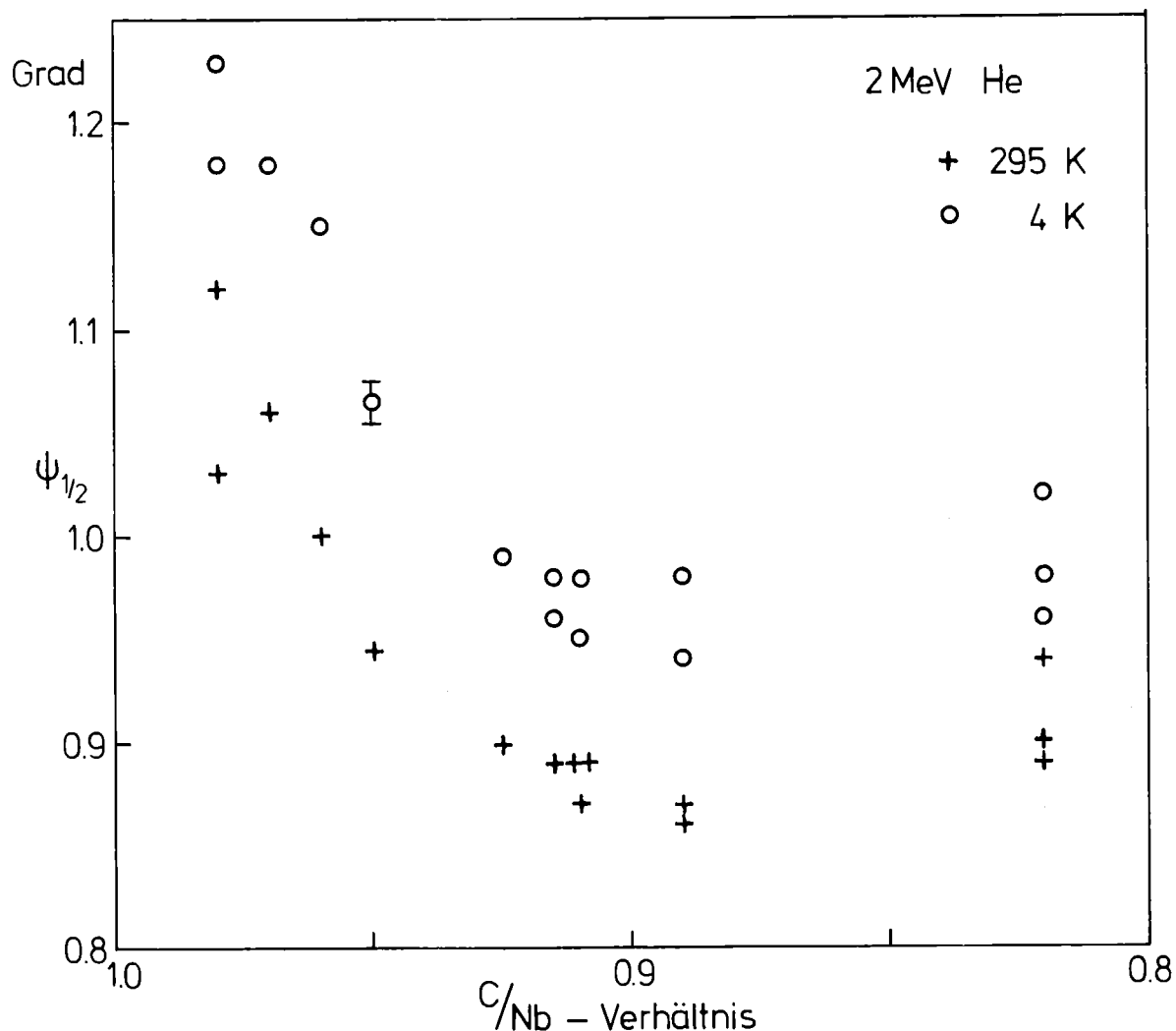


Abb. 26 Halbwertsbreiten von winkelabhängigen Ausbeutekurven (Nb-Signale) für 295 K (+) und 4 K (o) als Funktion der Zusammensetzung der NbC<sub>x</sub>-Kristalle.

Meßwerte ist ebenso wie in Abb. 26 wegen der unterschiedlichen Kippebenen der einzelnen Experimente größer als rein statistische Streuung. Die Kurven für He<sup>+</sup>-Teilchen und Deuteronen unterscheiden sich praktisch nicht.

Die minimale Ausbeute  $\chi_{\min}$  ist in einfacher Näherung proportional dem Quadrat der atomaren Auslenkung /79/. Die Abnahme der mittleren Auslenkung der Nb-Atome beim Übergang vom unterstöchiometrischen zum faststöchiometrischen NbC sollte daher auch in  $\chi_{\min}$  deutlich zu sehen sein. Allerdings bringt die Messung von  $\chi_{\min}$  auch einige Nachteile.  $\chi_{\min}$  reagiert sehr empfindlich auf Kristallfehler wie z.B. Versetzungen oder Stapelfehler. Auch machen sich kleine Ungenauigkeiten bei der Orientierung der Kristalle in  $\chi_{\min}$  stark bemerkbar. Die minimale Ausbeute ist deshalb zur Bestimmung der mittleren Auslenkungen durch den Vergleich der Meßergebnisse von verschiedenen Kristallen nur bedingt brauchbar.

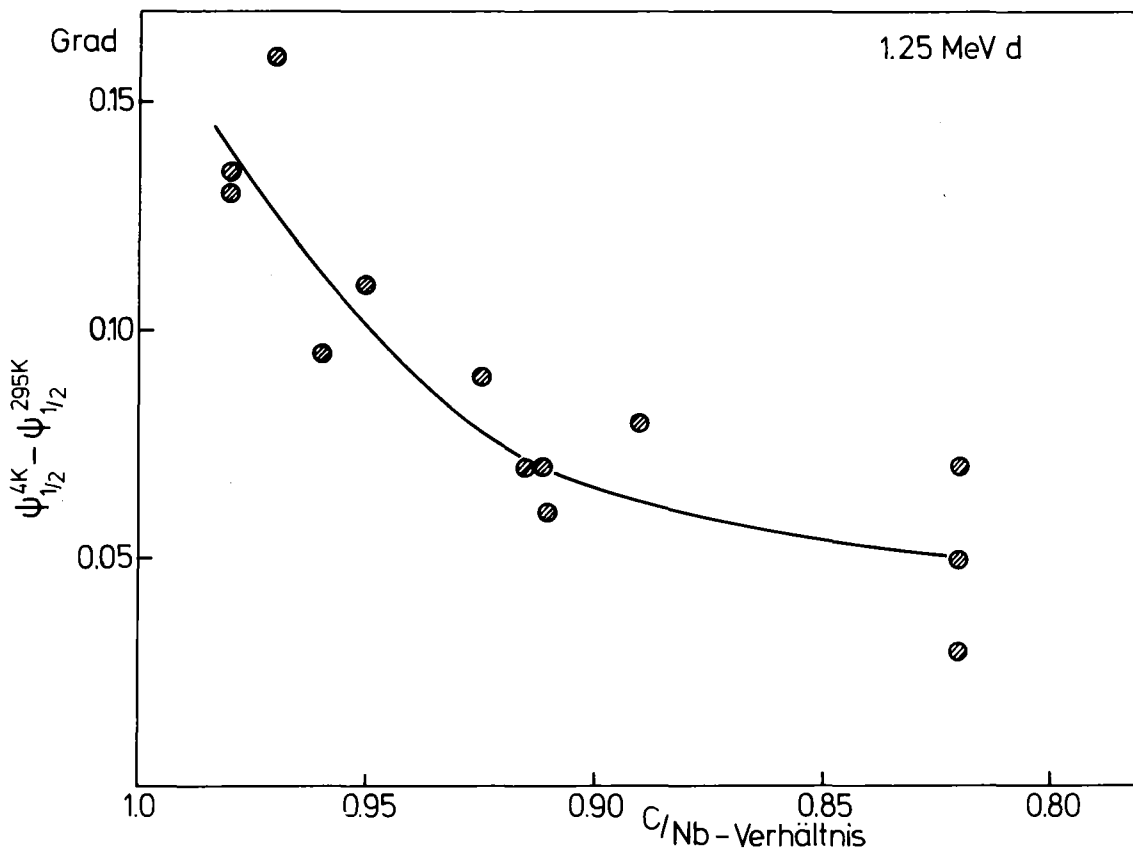
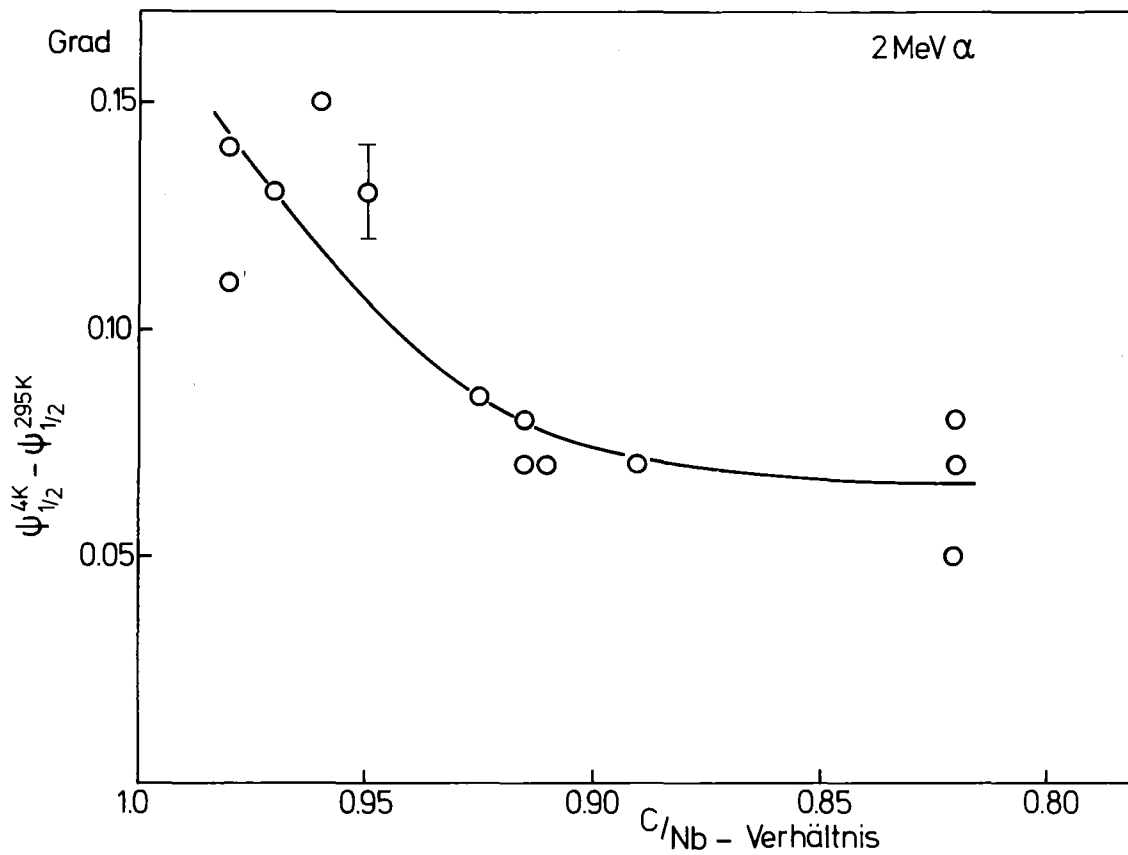


Abb. 27 Differenz der Halbwertsbreiten (Nb-Signale) bei 4 K und 295 K für 2 MeV  $\text{He}^+$  und 1.27 MeV d als Funktion der Zusammensetzung. Die durchgezogene Kurve soll den Trend verdeutlichen.

Die Halbwertsbreite  $\psi_{1/2}$  reagiert auf die angegebenen Kristallfehler und Ungenauigkeiten der Orientierung weit weniger empfindlich.

Abb. 28 zeigt die minimale Ausbeute als Funktion der Temperatur zwischen 295 K und 4 K für verschiedene C-Konzentrationen. Die Werte sind mit  $\text{He}^+$ -Teilchen gemessen worden. Dunkle Punkte kennzeichnen ein C/Nb-Verhältnis von 0.82, schraffierte Punkte von 0.89 - 0.91 und offene Kreise von 0.97 - 0.98. Die Werte für C/Nb = 0.82 fallen von 295 K auf 78 K stark ab und bleiben dann bis 4 K konstant. Die Werte für C/Nb = 0.89 - 0.91 zeigen denselben Verlauf, liegen aber im Mittel um etwa 0.002 unter den dunklen Punkten. Die Werte für C/Nb = 0.97 - 0.98 liegen bei Raumtemperatur deutlich am tiefsten, nehmen aber dann beim Übergang auf 78 K und 4 K nur unwesentlich ab.

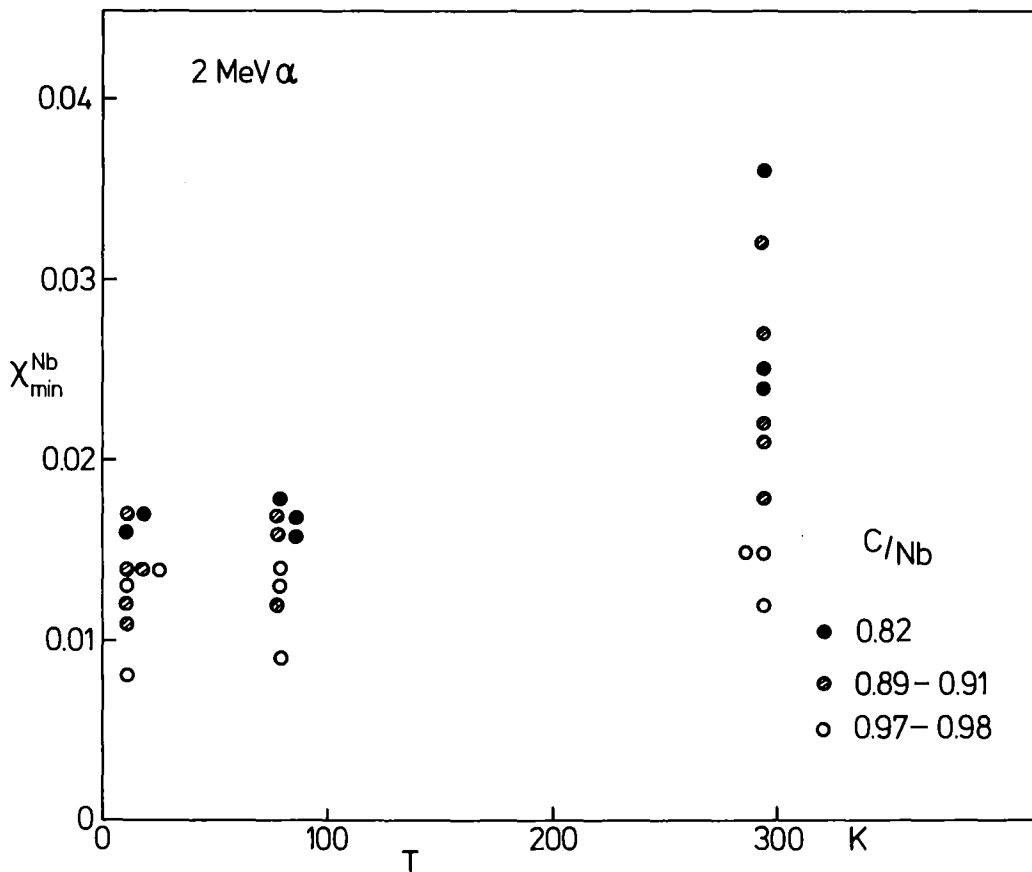


Abb. 28 Minimale Ausbeute  $\chi_{\min}$  (Nb-Signale) als Funktion der Temperatur für verschiedene Zusammensetzungen von  $\text{NbC}_x$

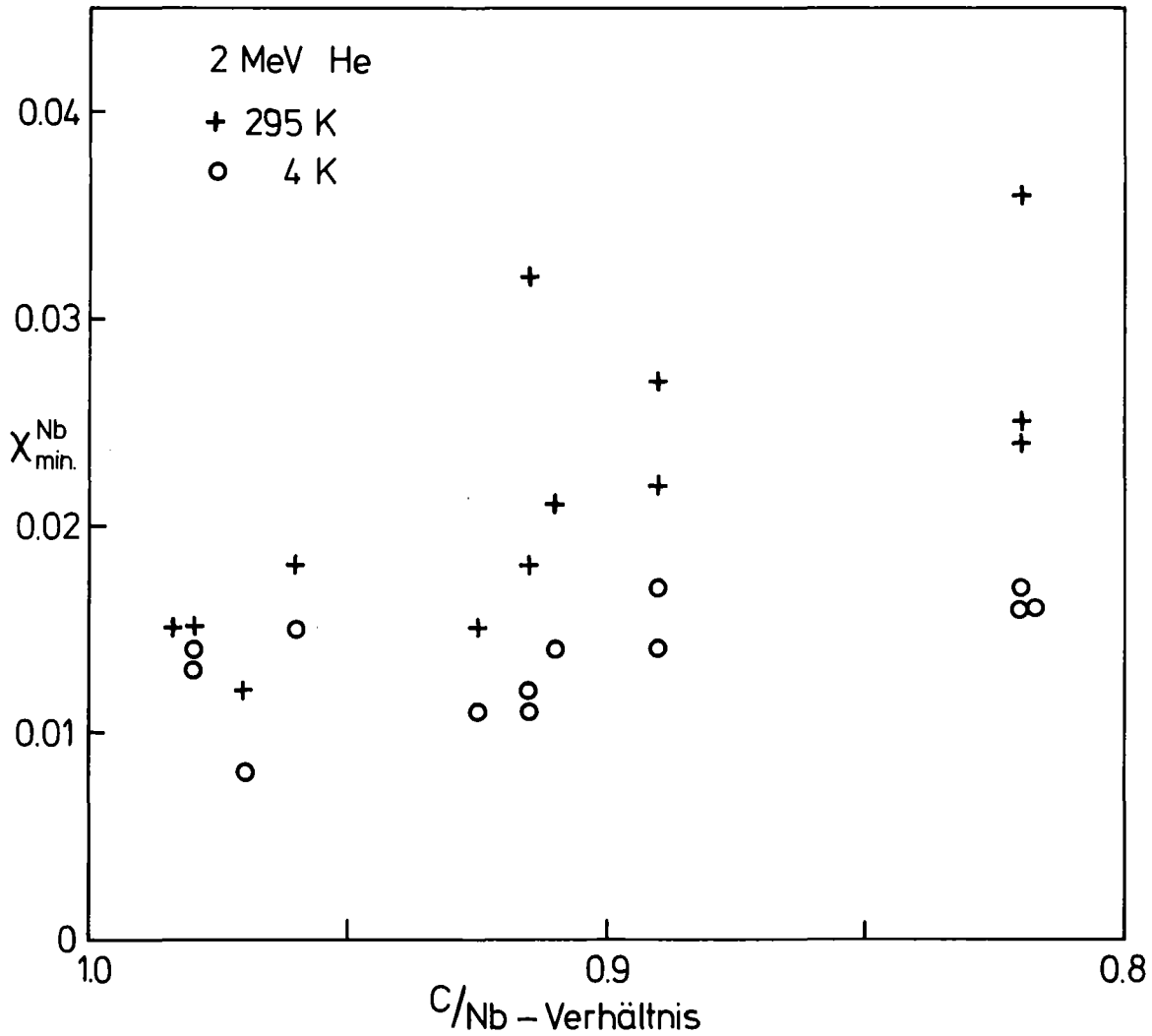


Abb. 29 Minimale Ausbeute  $\chi_{\min}$  (Nb-Signale) für 295 K (+) und 4 K (o) als Funktion der Zusammensetzung der  $\text{NbC}_x$ -Kristalle

In Abb. 29 ist die minimale Ausbeute  $\chi_{\min}$  für 295 K (+) und 4 K (o) als Funktion der Zusammensetzung der  $\text{NbC}_x$ -Einkristalle dargestellt. Die Werte bei 295 K verlaufen im Konzentrationsbereich  $x = 0.82-0.90$  nahezu konstant und nehmen dann bis  $x = 0.98$  deutlich ab. Die Werte bei 4 K nehmen dagegen von  $x = 0.90$  bis  $x = 0.98$  nur sehr schwach ab.

Die Differenz der minimalen Ausbeuten durch Streuung an Nb-Atomen mit  $\text{He}^+$ -Teilchen und Deuteronen bei 295 K und 4 K ist in Abb. 30 dargestellt. Die Differenz nimmt vom unterstöchiometrischen zum faststöchiometrischen Kristall deutlich ab. Das Verhalten als Funktion der Zusammensetzung ist bei den Werten für Deuteronen sehr ähnlich dem für  $\text{He}^+$ -Teilchen.

Die durch Rückstreuemessungen mit  $\text{He}^+$ -Teilchen und Deuteronen an Nb-Atomen bestimmten Halbwertsbreiten und minimalen Ausbeuten sind in Tabelle 5 nochmals aufgelistet.

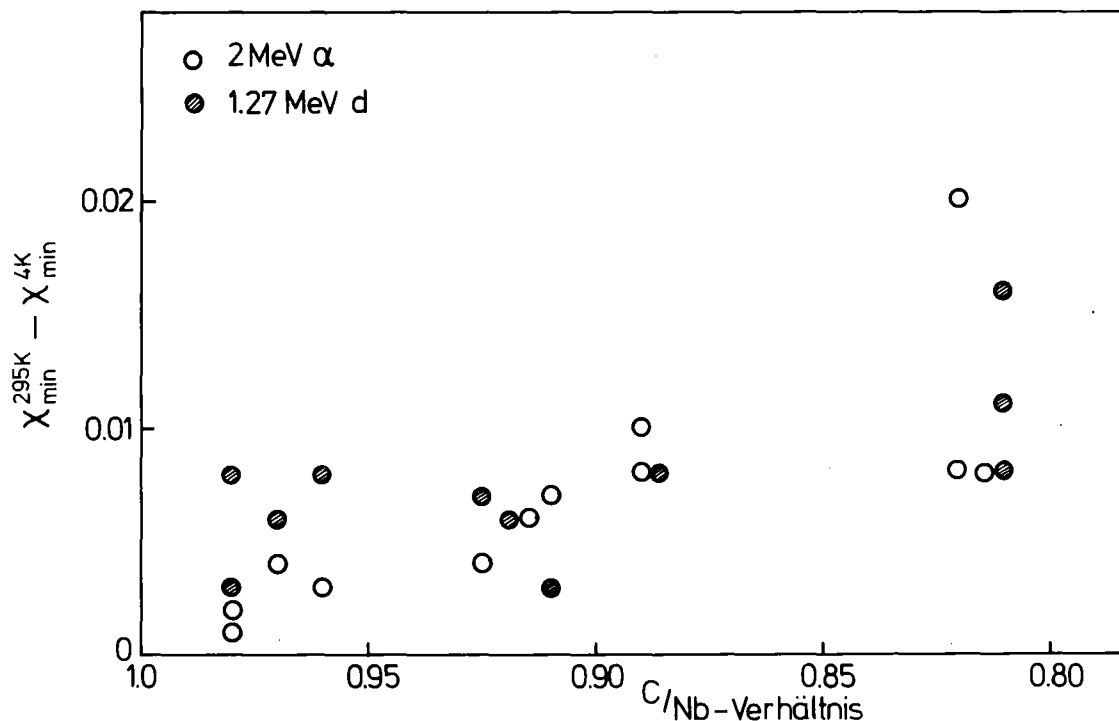


Abb. 30 Differenz der minimalen Ausbeuten (Nb-Signale) bei Raumtemperatur und 4 K als Funktion der Zusammensetzung für 2 MeV  $\text{He}^+$  und 1.27 MeV d.

### 3.2.2 Ausbeute durch Streuung an C-Atomen

Die Untersuchungen der Ausbeute durch Streuung an C-Atomen wurden mit Hilfe der  $^{12}\text{C}(\text{d},\text{p})^{13}\text{C}$ -Kernreaktion durchgeführt. Die Abfragetiefe reicht hierbei von 650 Å bis 2700 Å.

Die Interpretation der Ergebnisse der Ausbeute durch Streuung an C-Atomen gestaltet sich schwieriger als die der Nb-Ausbeuten. Unsicherheiten im Experiment sind dadurch bedingt, daß die C-Ausbeute sehr stark auf Oberflächenschichten, Kristallfehler und kleine Abweichungen bei der Orientierung reagiert. Unsicherheiten bei der Analyse kommen dadurch zustande, daß die Auslenkungen der Nb-Atome die Ausbeute durch Streuung an C-Atomen stark beeinflussen. Deshalb läßt sich über die Größe der mittleren Auslenkungen der C-Atome und ihr Verhalten als Funktion der Temperatur oder der Zusammensetzung ohne detaillierte Analyse durch Computer-Simulationsrechnungen nichts aussagen.

In Abb. 31 sind Ergebnisse von Messungen der minimalen Ausbeute als Funktion der Temperatur für C/Nb-Verhältnisse von 0.82 bis 0.98

|        |       |                 | 2 MeV He <sup>+</sup> |      |       |                    |      |     | 1.27 MeV d            |      |      |                    |      |     |
|--------|-------|-----------------|-----------------------|------|-------|--------------------|------|-----|-----------------------|------|------|--------------------|------|-----|
|        |       |                 | $\psi_{1/2} / ^\circ$ |      |       | $\chi_{\min} / \%$ |      |     | $\psi_{1/2} / ^\circ$ |      |      | $\chi_{\min} / \%$ |      |     |
| Probe  | x     | $\phi / ^\circ$ | 295 K                 | 78 K | 4 K   | 295 K              | 78 K | 4 K | 295 K                 | 78 K | 4 K  | 295 K              | 78 K | 4 K |
| 379 a  | 0.82  | 20              | 0.89                  | 0.94 | 0.96  | 2.5                | 1.7  | 1.7 | 0.78                  | 0.81 | 0.81 | 3.1                | 1.5  | 1.5 |
| 379 b  | 0.82  | 41              | 0.94                  | 1.02 | 1.02  | 2.4                | 1.8  | 1.6 | 0.80                  | 0.84 | 0.84 | 2.4                | 1.7  | 1.3 |
| 379 c  | 0.82  | 32              | 0.90                  | 0.98 | 0.985 | 3.6                | 1.6  | 1.6 | 0.73                  | 0.80 | 0.80 | 2.0                | 1.9  | 1.9 |
| 200 b  | 0.915 | 30              | 0.89                  | 0.96 | 0.96  | 3.2                | 1.6  | 1.1 | 0.76                  | 0.84 | 0.84 | 2.9                | 1.2  | 1.2 |
| 200 c  | 0.915 | 75              | 0.89                  | 0.97 | 0.98  | 1.8                | 1.2  | 1.2 | 0.77                  | 0.84 | 0.84 | 1.9                | 1.7  | 1.3 |
| 202 a  | 0.89  | 83              | 0.86                  | 0.96 | 0.98  | 2.2                | 1.7  | 1.4 |                       |      |      |                    |      |     |
| 202 b  | 0.89  | 73              | 0.87                  | 0.94 | 0.94  | 2.7                | 1.7  | 1.7 | 0.76                  | 0.83 | 0.84 | 2.7                | 2.3  | 1.9 |
| 372 a  | 0.91  | 15              | 0.89                  | 0.98 | 0.98  | 2.1                | 1.4  | 1.4 | 0.79                  | 0.89 | 0.89 | 2.0                | 1.7  | 1.7 |
| 372 b  | 0.91  | 30              | 0.87                  | 0.95 | 0.95  |                    |      |     | 0.76                  | 0.84 | 0.84 |                    |      |     |
| 376 a  | 0.925 | 20              | 0.90                  | 0.96 | 0.99  | 1.5                | 1.1  | 1.1 | 0.78                  | 0.87 | 0.88 | 1.8                | 1.2  | 1.1 |
| 202 I  | 0.95  | 79              | 0.945                 | 1.03 | 1.065 |                    |      |     | 0.80                  | 0.91 | 0.91 |                    |      |     |
| 200 I  | 0.98  | 81              | 1.12                  | 1.19 | 1.23  | 1.5                | 1.3  | 1.3 | 0.89                  | 0.99 | 1.01 | 1.7                | 1.5  | 1.4 |
| 200 II | 0.98  | 75              | 1.03                  | 1.16 | 1.18  | 1.5                | 1.4  | 1.4 | 0.865                 | 0.96 | 1.00 | 2.1                | 1.7  | 1.3 |
| 376 I  | 0.97  | 23              | 1.06                  | 1.18 | 1.18  | 1.8                | 1.7  | 1.5 | 0.86                  | 0.99 | 1.02 | 2.5                | 1.9  | 1.7 |

Tab. 5 Halbwertsbreiten und minimale Ausbeuten durch Streuung an Nb-Atomen mit 2 MeV He<sup>+</sup> und 1.27 MeV d bei verschiedenen Temperaturen. Der Fehler bei der Bestimmung von  $\psi_{1/2}$  beträgt 0.01<sup>o</sup> und bei  $\chi_{\min}$  0.1 %.

dargestellt. Die Werte im Konzentrationsbereich  $x = 0.82 - 0.91$  nehmen als Funktion der Temperatur stark ab. Die Werte für  $x = 0.97 - 0.98$  liegen bei 295 K im Mittel tiefer als die Werte der unterstöchiometrischen Proben. Bei 78 K und 4 K unterscheiden sich die Werte der verschiedenen Konzentrationsgruppen nicht. Die Begründung für dieses Verhalten liegt in der Aufstreuung des Strahls durch den nicht-eindiffundierten Rest der aufgedampften C-Schicht bei den faststöchiometrischen Kristallen.

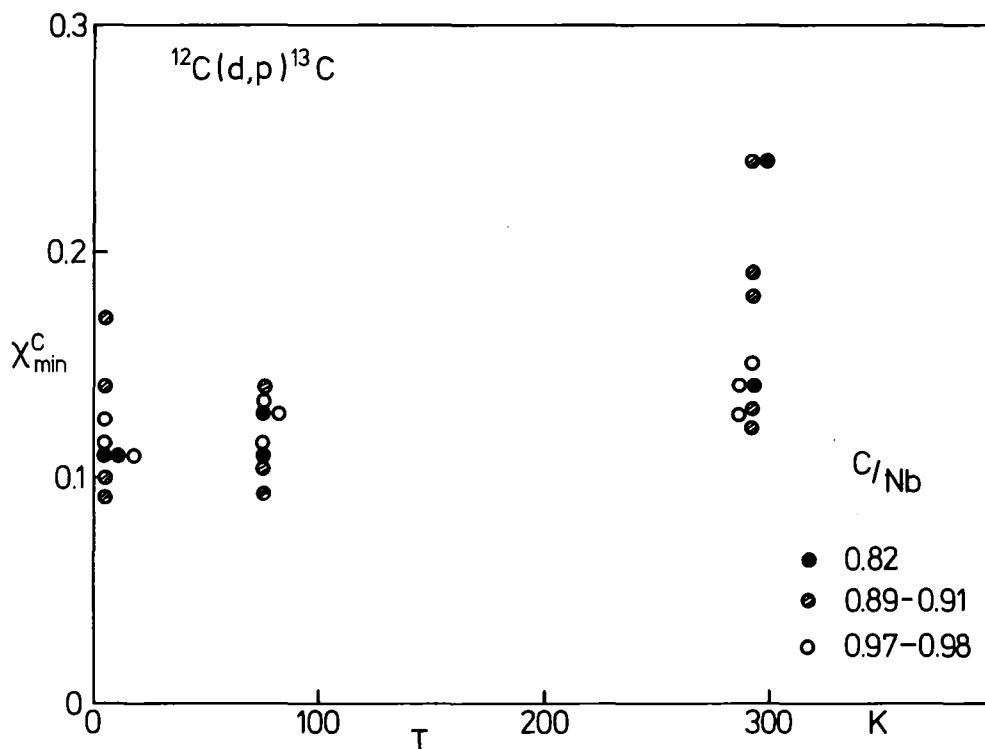


Abb. 31 Minimale Ausbeute durch Streuung an C-Atomen als Funktion der Temperatur für verschiedene Zusammensetzungen C/Nb.

Abb. 32 zeigt die minimale Ausbeute durch Streuung an C-Atomen für 295 K (+) und 4 K (o) als Funktion der Zusammensetzung der  $\text{NbC}_x$ -Einkristalle. Die Werte bei 295 K zeigen eine leichte Abnahme beim Übergang von  $x = 0.82$  zu  $x = 0.98$ . Bei 4 K verlaufen die  $\chi_{\min}$ -Werte nahezu konstant.

In Abb. 33 ist die Differenz der minimalen Ausbeuten bei 295 K und 4 K als Funktion der Zusammensetzung dargestellt. Die Differenz nimmt beim Übergang von  $x = 0.82$  zu  $x = 0.98$  ab. Die Streuung der Punkte ist größer als in der entsprechenden Darstellung für die Streuung an Nb-Atomen in Abb. 30. Der Grund hierfür liegt darin, daß  $\chi_{\min}$  umso empfindlicher reagiert, je kleiner die Halbwertsbreite  $\psi_{1/2}$  ist. Die Halbwerts-



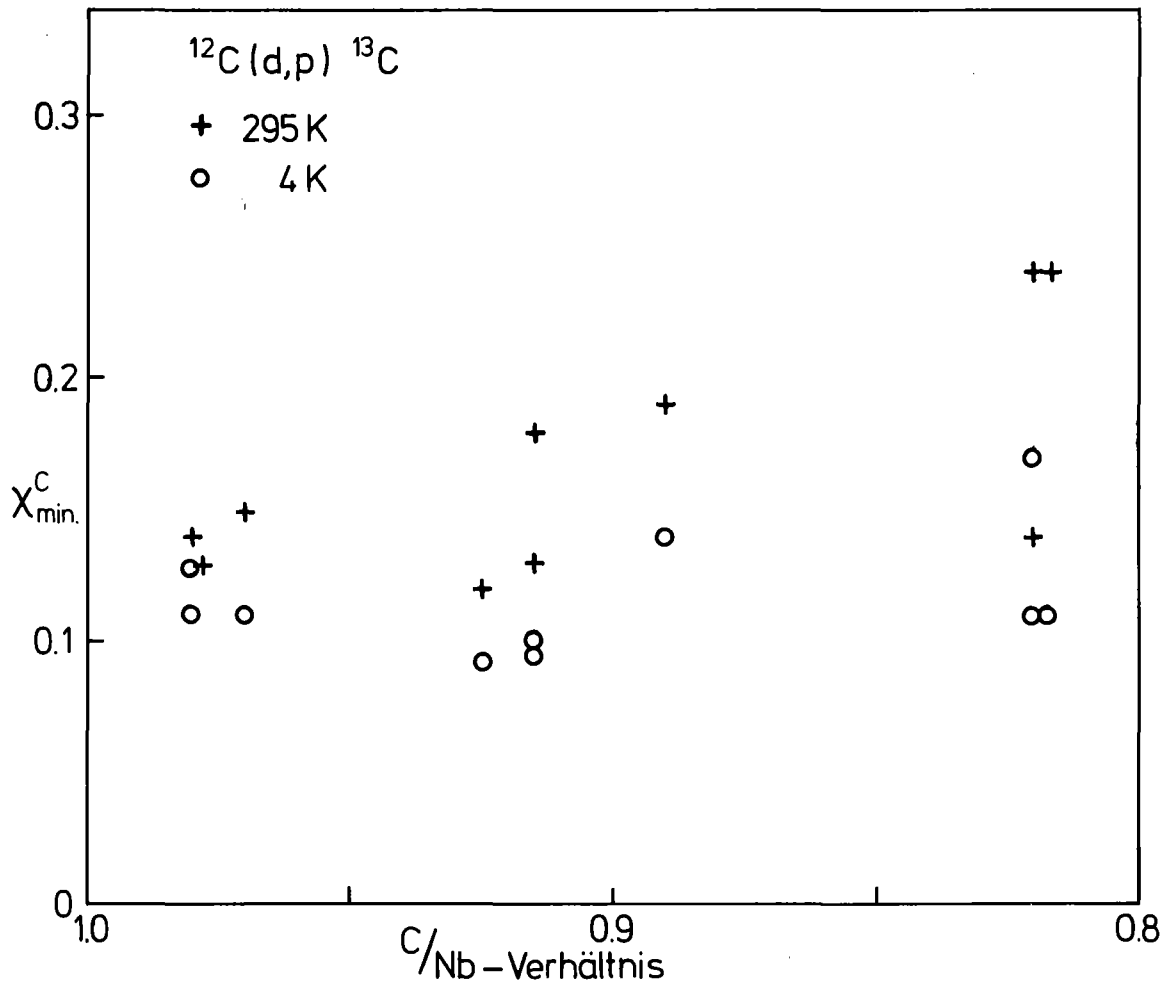


Abb. 32 Minimale Ausbeute durch Streuung an C-Atomen bei 295 K (+) und 4 K (o) als Funktion der Zusammensetzung der NbC<sub>x</sub>-Einkristalle

breiten der winkelabhängigen Ausbeutekurven für die Streuung an Nb-Atomen sind wesentlich größer als diejenigen für die Streuung an C-Atomen.

Die Halbwertsbreiten  $\psi_{1/2}$  der winkelabhängigen Ausbeute durch Streuung an C-Atomen wurden nach Kenntnis der Nb-Auslenkungen durch Computer-Simulationsrechnungen zur Bestimmung der C-Auslenkungen herangezogen.

Die Werte der Halbwertsbreiten und minimalen Ausbeuten durch Streuung an C-Atomen sind in Tabelle 6 aufgelistet.

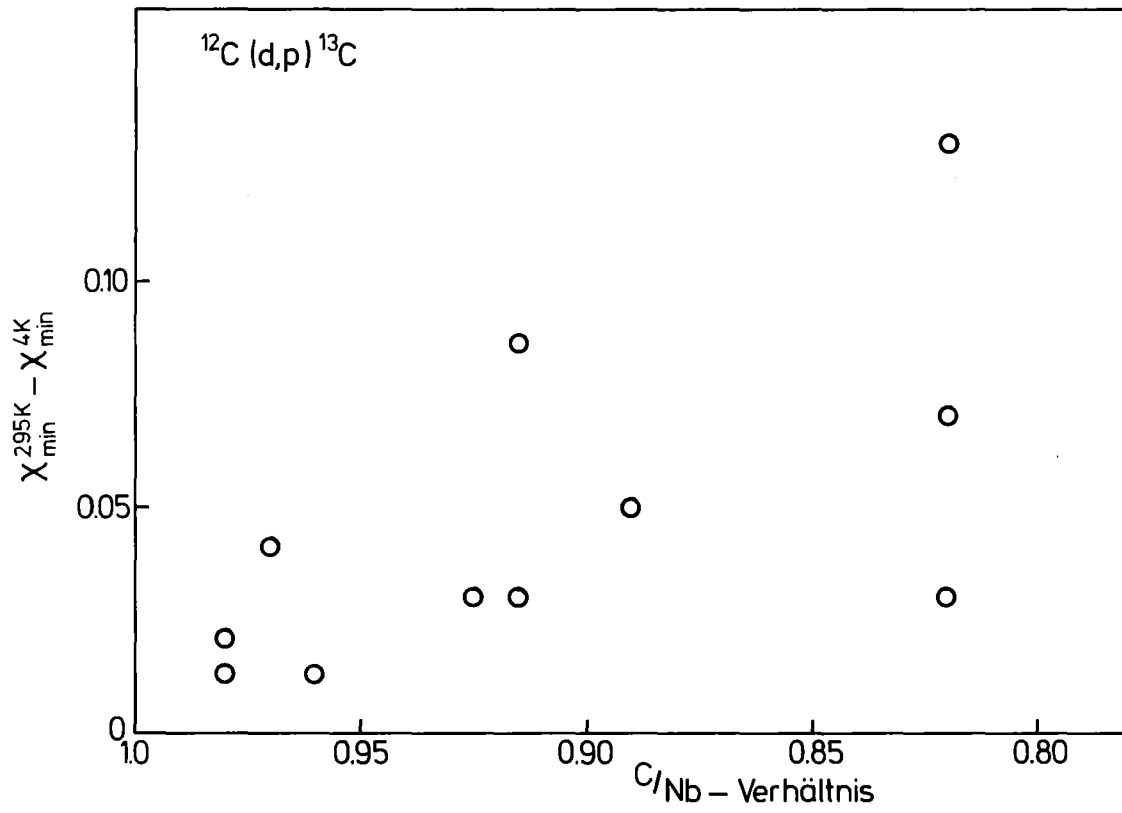


Abb. 33 Differenz der minimalen Ausbeuten (C-Signale) bei 295 K und bei 4 K als Funktion der Zusammensetzung C/Nb.

|        |       |                 | $^{12}\text{C(d,p)}^{13}\text{C}$ |       |      |                    |      |      |
|--------|-------|-----------------|-----------------------------------|-------|------|--------------------|------|------|
|        |       |                 | $\psi_{1/2} / ^\circ$             |       |      | $\chi_{\min} / \%$ |      |      |
| Probe  | x     | $\phi / ^\circ$ | 295 K                             | 78 K  | 4 K  | 295 K              | 78 K | 4 K  |
| 379 a  | 0.82  | 20              | 0.44                              | 0.43  | 0.43 | 24                 | 17   | 17   |
| 379 b  | 0.82  | 41              | 0.32                              | 0.34  | 0.34 | 24                 | 13   | 11   |
| 379 c  | 0.82  | 32              | 0.33                              | 0.37  | 0.37 | 14                 | 11   | 11   |
| 200 b  | 0.915 | 30              | 0.31                              | 0.36  | 0.37 | 18                 | 9.4  | 9.4  |
| 200 c  | 0.915 | 75              | 0.31                              | 0.35  | 0.35 | 13                 | 10   | 10   |
| 202 b  | 0.89  | 73              | 0.32                              | 0.335 | 0.36 | 19                 | 14   | 14   |
| 372 a  | 0.91  | 15              | 0.41                              | 0.46  | 0.46 |                    |      |      |
| 372 b  | 0.91  | 30              | 0.35                              | 0.36  | 0.36 |                    |      |      |
| 376 a  | 0.925 | 20              | 0.36                              | 0.38  | 0.42 | 12.2               | 10.4 | 9.2  |
| 202 I  | 0.95  | 79              | 0.27                              | 0.31  | 0.32 | 54                 | 36   | 36   |
| 200 I  | 0.98  | 81              | 0.32                              | 0.35  | 0.36 | 14.1               | 13.5 | 12.8 |
| 200 II | 0.98  | 75              | 0.35                              | 0.38  | 0.39 | 13.0               | 10.9 | 10.9 |
| 376 I  | 0.97  | 23              | 0.38                              | 0.39  | 0.39 | 15.4               | 11.5 | 11.3 |

Tabelle 6 Halbwertsbreiten und minimale Ausbeuten durch Streuung an C-Atomen bei verschiedenen Temperaturen. Der Fehler bei der Bestimmung von  $\psi_{1/2}$  beträgt  $0.01^\circ$  und bei  $\chi_{\min}$  0.3 %.

### 3.3 Analyse durch Monte-Carlo-Simulationsrechnungen

#### 3.3.1 Ausbeute durch Streuung an Nb-Atomen

Das Monte-Carlo-Simulationsprogramm wurde schon in früheren Arbeiten beschrieben /80, 81, 70/ und ausgetestet. Die zentrale Größe bei Simulationsrechnungen stellt die Flußverteilung der eingeschossenen Teilchen dar. Eine solche Darstellung der Häufigkeitsverteilung in Abhängigkeit vom Ort in der Querebene ist für 2 MeV  $\text{He}^+$  in einem NbC-Kristall in Abb. 34 dargestellt. Die Einschußrichtung war die  $\langle 110 \rangle$ -Richtung. Der Fluß wurde mit einer Gesamtzahl von 2520 Teilchen berechnet. Die dargestellte Flußverteilung ist über einen Tiefenbereich von 1200-2400 Å gemittelt. Die Lage der Nb-Ketten ist an den großen flachen Konturen festzustellen, während an die C-Ketten, deutlich durch dazwischen liegende, schwächer ausgeprägte Minima, der Teilchenfluß sehr dicht heranreicht. Der Teilchenfluß ist so als gewundenes Band zwischen den  $\{001\}$ -Ebenen zu erkennen. Vergleicht man die Abb. 2 mit dieser Flußverteilung, so erkennt man, daß der Teilchenfluß gerade komplementär zum Kettenpotential verläuft.

Als nächstes wurde untersucht, wie groß die Änderungen in der Form und Halbwertsbreite der winkelabhängigen Ausbeutekurven auf Grund von Änderungen des Winkels  $\phi$  zwischen Kippebene und  $\{001\}$ -Ebene des Kristalls sind. Die Antwort auf diese Frage ist wichtig, wenn Ausbeutekurven verglichen werden sollen, die unter verschiedenen Kippebenen gemessen wurden, wie es bei den hier gezeigten Experimenten der Fall war. Für festgehaltene thermische Schwingungsamplituden von  $u_{\text{Nb}} = 0.05 \text{ \AA}$  und  $u_{\text{C}} = 0.057 \text{ \AA}$  wurden Ausbeutekurven für eine Reihe verschiedener Kippebenen zwischen  $15^\circ$  und  $86^\circ$  (gegen  $\{001\}$ ) gerechnet. Die Halbwertsbreiten sind in Abb. 35 dargestellt. Der Fehler bei der Bestimmung der Halbwertsbreite in der Rechnung lag bei  $\pm 0.01^\circ$ . Es ist eine sehr starke Abhängigkeit der Halbwertsbreite von der Kippebene zu erkennen. Während die Schwankungen im Bereich von  $\phi = 15^\circ$  bis  $41^\circ$  geringere Strukturen aufweisen, die jedoch außerhalb der Fehlergrenze liegen, verläuft im Bereich von  $\phi = 58^\circ$  bis  $81^\circ$  ein ausgeprägtes Minimum, bei dem die Halbwertsbreite von einem Wert von  $1.13^\circ$  auf  $1.02^\circ$  abnimmt. Die winkelabhängigen Ausbeutekurven wurden für die zwei gezeigten Bereiche gerechnet, weil die Kippebenen der gemessenen Ausbeutekurven auch in diesen Bereichen lagen. Wird die Auslenkung der Nb-Atome verändert, so

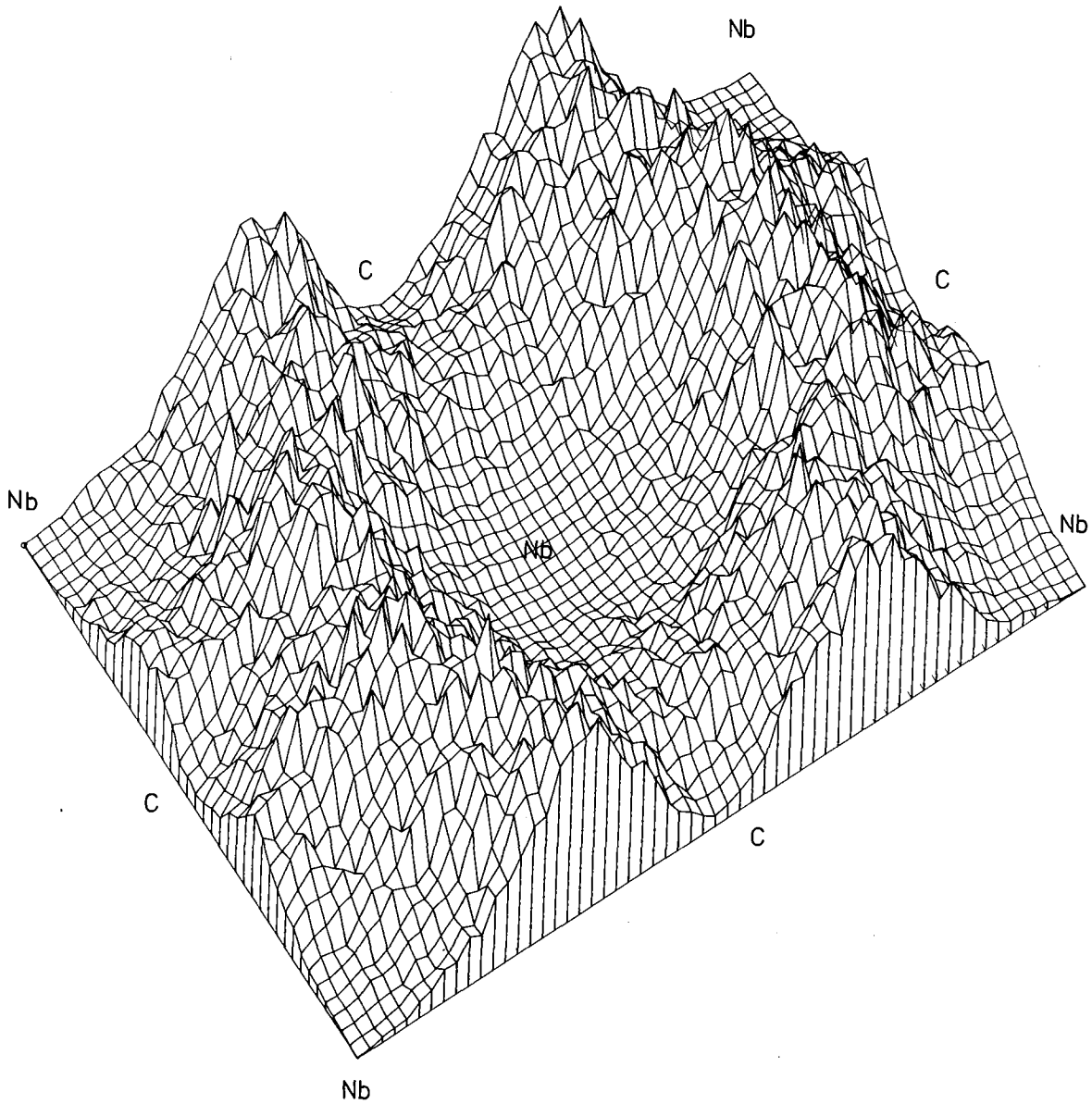


Abb. 34 Flußverteilung für 2 MeV  $\text{He}^+$ -Teilchen, die parallel zur  $\langle 110 \rangle$ -Richtung in NbC geschossen wurden. Nb-Atome liegen an den Ecken und in der Mitte, die übrigen Plätze sind von C-Atomen besetzt.

werden alle Punkte um denselben Betrag parallel zur Ordinate verschoben, die Abhängigkeiten von der Kippebene bleiben im wesentlichen erhalten.

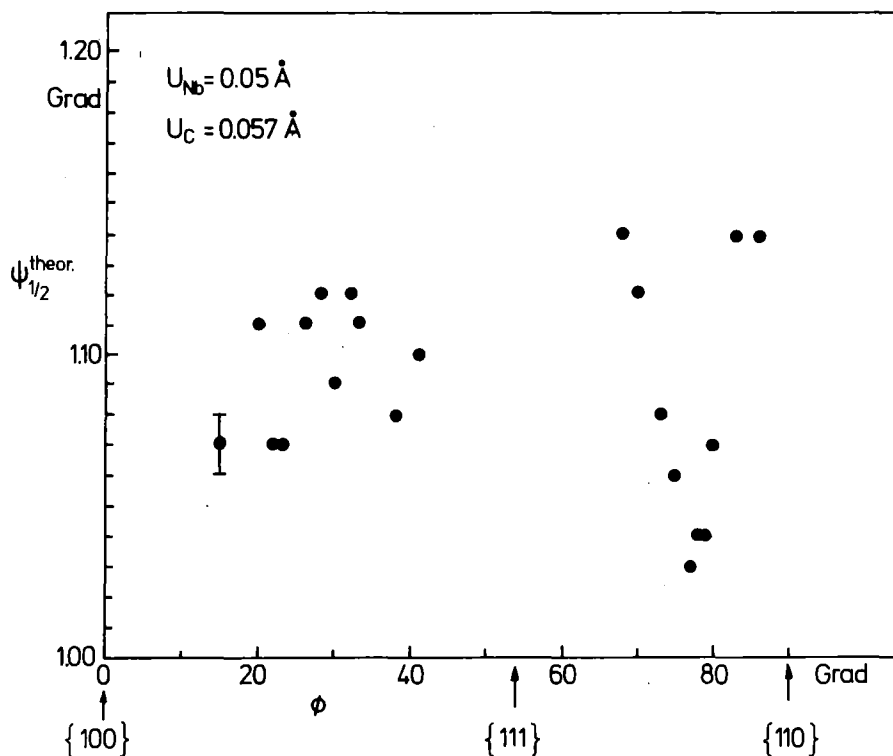


Abb. 35 Berechnete Halbwertsbreite (Nb-Signale) für 2 MeV- $\text{He}^+$ -Teilchen als Funktion des Winkels  $\phi$  zwischen Kippebene und  $\{001\}$ -Ebene. Der Fehler beträgt  $0.01^\circ$ .

Zur Bestimmung der mittleren Auslenkungen der Targetatome muß eigentlich für jede gemessene Halbwertsbreite eine Simulationsrechnung durchgeführt werden. Zur praktischen Anwendung wurden die Halbwertsbreiten für eine Reihe von Auslenkungen berechnet und dazwischen interpoliert. Auf diese Weise kann der Funktionalverlauf  $\psi_{1/2}(u^2)$  angegeben werden. Für die bei den Experimenten benutzten Kippebenen sind die Halbwertsbreiten als Funktion der Auslenkungsamplitude der Nb-Atome in Abb. 36 dargestellt. Im oberen Teil des Bildes sind die Werte für 2 MeV  $\text{He}^+$  und im unteren Teil für 1.27 MeV d eingezeichnet. Merkbliche Abweichungen der einzelnen Kurven voneinander liegen im Bereich der Amplituden  $u^2 > 4 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^2$ . Dies bedeutet, daß die Auslenkungsamplituden einen Mindestwert übersteigen müssen, um zu Änderungen in der Rückstreausbeute durch Änderungen in der Flußverteilung auf Grund unterschiedlicher Kippebenen zu führen.

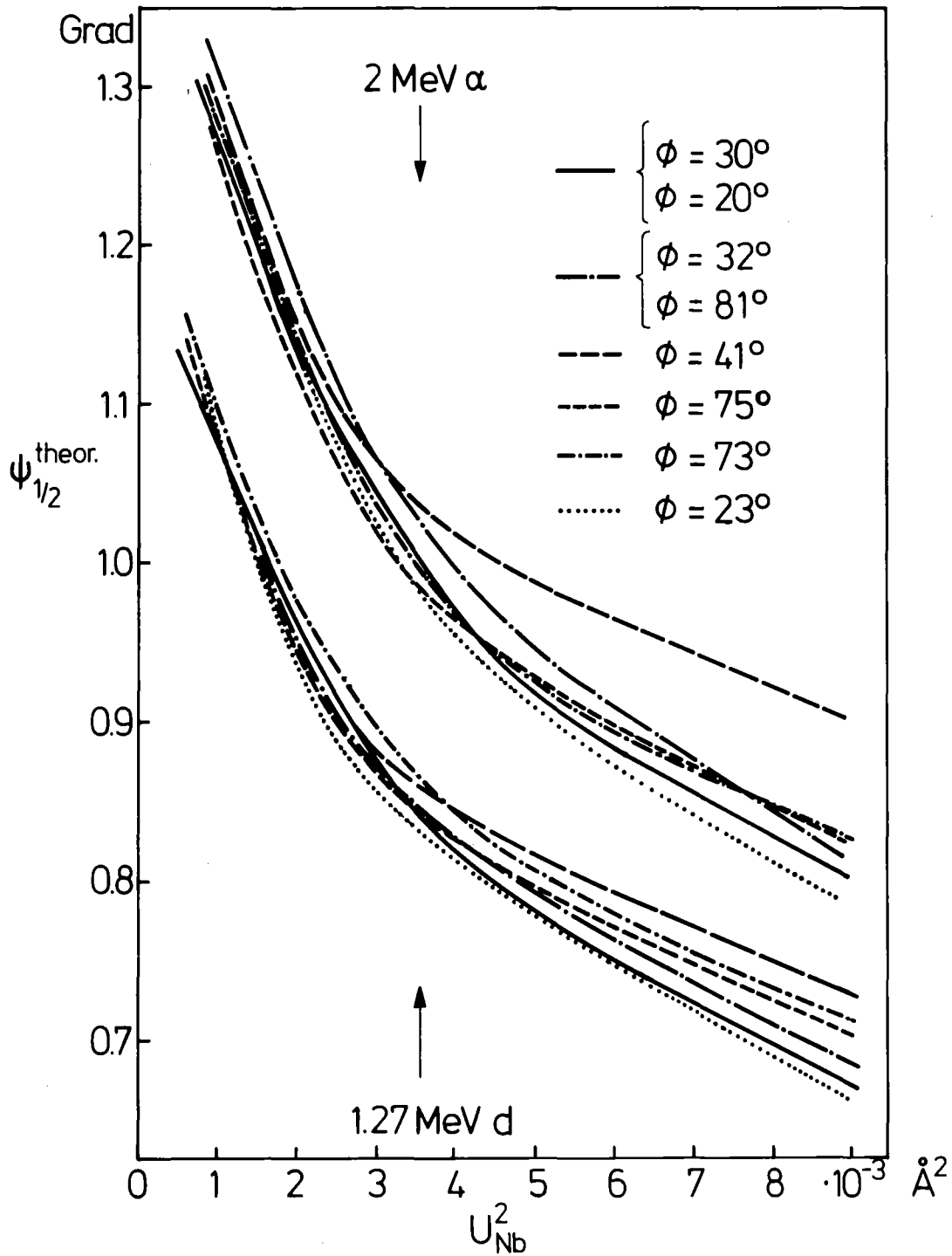


Abb. 36 Abhängigkeit der Halbwertsbreite  $\psi_{1/2}$  (Nb-Signale) für 2 MeV  $\text{He}^+$  und 1.27 MeV d von der Auslenkungsamplitude der Nb-Atome.

Für kleinere Amplituden verlaufen die Kurven ungefähr aufeinander, die Abhängigkeit der Halbwertsbreite von der Amplitude ist jedoch sehr viel stärker. Die  $\psi_{1/2}$ -Werte für die Rechnungen mit Deuteronen liegen im wesentlichen zu kleineren Halbwertsbreiten parallel verschoben; die Abweichungen der Kurven voneinander als Funktion der Lage der Kippebene sind nicht so ausgeprägt. Bei Deuteronen wird jedoch über einen größeren Tiefenbereich von 1500 Å gemittelt, während die Tiefe der Fenster bei der Rechnung mit He<sup>+</sup>-Teilchen etwa von 170 Å bis 670 Å reicht.

Die Form der winkelabhängigen Ausbeutekurven wird meistens durch die zwei Parameter  $\psi_{1/2}$  und  $\chi_{\min}$  charakterisiert. Beim Vergleich von gerechneten mit gemessenen Ausbeutekurven besteht jedoch die Möglichkeit durch Heranziehen der gesamten Kurve die Güte einer Computer-Simulationsrechnung exakter als durch  $\psi_{1/2}$  und  $\chi_{\min}$  allein zu beurteilen. In Abb. 37 ist ein solcher Vergleich durchgeführt. Es sind experimentelle winkelabhängige Ausbeutekurven (Nb-Signale) bei Raumtemperatur (0) und 4 K (x) für den Beschuß eines NbC<sub>0.91</sub>-Kristalls in <110>-Richtung mit 2 MeV He<sup>+</sup>-Teilchen gezeigt. Gleichzeitig sind Simulationswerte für Rechnungen mit einer Auslenkung der Nb-Atome von  $u = 0.08$  Å (-) und mit einer Auslenkung von  $u = 0.06$  Å (--) dargestellt. Die Kippebene bei Experiment und Rechnung war um 75° gegen die {001}-Ebene geneigt. Die Übereinstimmung der gerechneten mit den gemessenen Ausbeutekurven kann als zufriedenstellend bezeichnet werden. Sowohl die Flankenneigung als auch die Höhe und Form der Schultern der Ausbeutekurven werden in der Rechnung wiedergegeben. Der Vergleich der minimalen Ausbeute ist in der folgenden Tabelle dargestellt.

|       | $\chi_{\min}^{\text{exp}}$ | $\chi_{\min}^{\text{theor.}}$ |
|-------|----------------------------|-------------------------------|
| 295 K | 0.018 ± 0.001              | 0.014 ± 0.002                 |
| 4 K   | 0.012 ± 0.001              | 0.009 ± 0.002                 |

Da die gerechneten Ausbeutekurven mit den gemessenen Kurven gut übereinstimmen, wie in Abb. 37 dargestellt ist, wurde im allgemeinen die mittlere Auslenkung der Nb-Atome dadurch bestimmt, daß in Abb. 36 der der gemessenen Halbwertsbreite entsprechende Auslenkungswert abgelesen wurde. Dieses Verfahren ist dadurch gerechtfertigt, daß der Einfluß der C-Auslenkung auf die Nb-Ausbeute sehr gering ist, wie durch Simulationsrechnungen nachgewiesen wurde. Aus demselben Grund



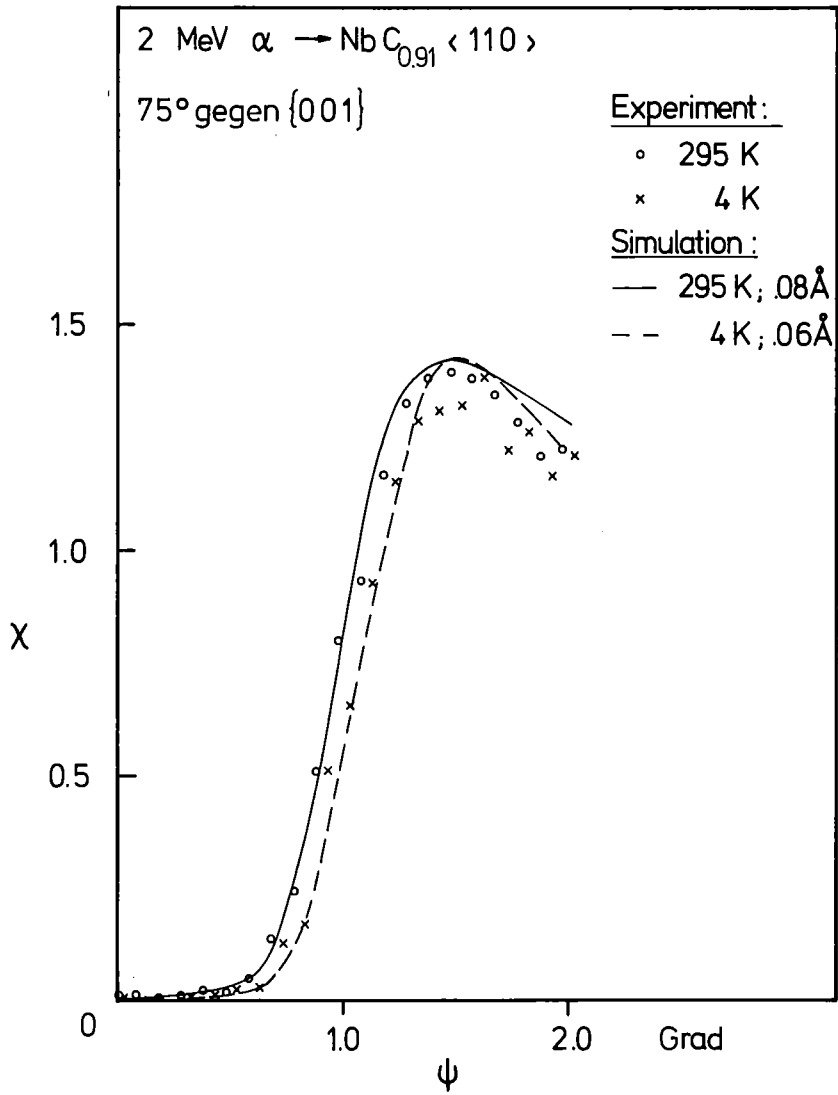


Abb. 37 Gemessene und gerechnete winkelabhängige Ausbeutekurven (Nb-Signale) für 2 MeV  $\text{He}^+$  auf  $\text{NbC}_{0.91} \langle 110 \rangle$  bei 295 K und 4 K.

unterliegt die Nb - Ausbeute auch dann keinen Änderungen, wenn einzelne C-Atome in den C-Ketten fehlen. Die Ausbeute durch Streuung an Nb-Atomen wird also nur durch Änderungen der Nb-Auslenkungen beeinflusst. Die konkreten Ergebnisse aus dem Vergleich von experimentellen und theoretischen Daten werden in 3.4 vorgestellt.

Zunächst sollen noch die Ergebnisse der Untersuchung der Abhängigkeit der minimalen Ausbeute  $\chi_{\min}$  von der Auslenkung der Nb-Atome diskutiert werden. Die graphische Auftragung der Resultate ist in Abb. 38 dargestellt. Die offenen Kreise stellen Werte für Rechnungen mit 2 MeV  $\text{He}^+$ -Teilchen dar, die dunklen Punkte für Rechnungen mit 1.27 MeV Deuteronen. Es ergibt sich ein linearer Zusammenhang zwischen  $\chi_{\min}$  und dem Quadrat der Auslenkungsamplitude, wobei die Kurve der Ergebnisse für Deuteronen etwas steiler verläuft als die Kurve für  $\text{He}^+$ -Teilchen. Der

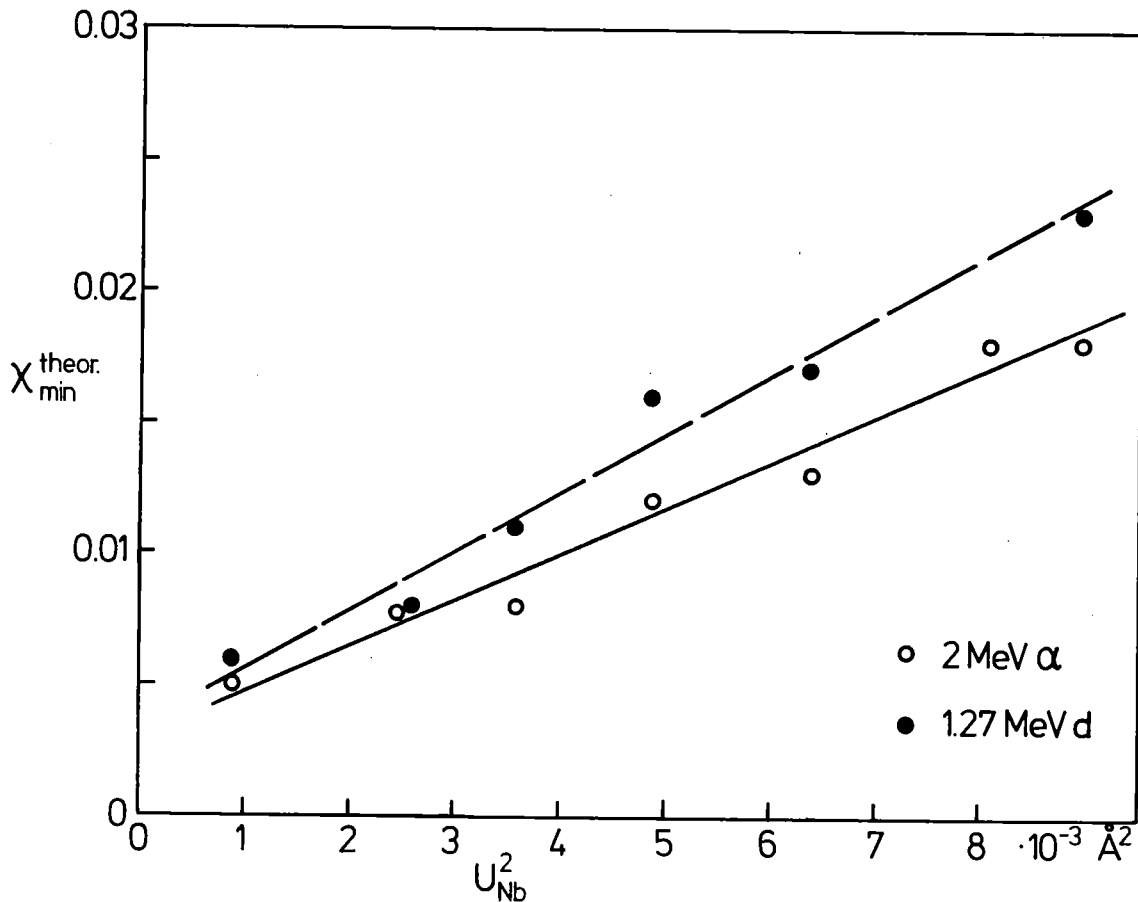


Abb. 38 Abhängigkeit der minimalen Ausbeute  $\chi_{\min}$  (Nb-Signale) von der Auslenkungsamplitude der Nb-Atome für 2 MeV  $\text{He}^+$  und 1.27 MeV d.

lineare Zusammenhang läßt sich durch folgende Geradengleichung beschreiben:

$$\chi_{\min}^{\text{Appr.}} = b \cdot u_{\text{Nb}}^2 + c \quad (3.1)$$

wobei b und c in der folgenden Tabelle gegeben sind:

|                       | $b/\text{\AA}^{-2}$ | c                   |
|-----------------------|---------------------|---------------------|
| 2 MeV He <sup>+</sup> | 1.73                | $3.0 \cdot 10^{-3}$ |
| 1.27 MeV d            | 2.27                | $3.4 \cdot 10^{-3}$ |

$u_{\text{Nb}}^2$  stellt das Quadrat der eindimensionalen Auslenkung der Nb-Atome dar.

### 3.3.2 Ausbeute durch Streuung an C-Atomen

Die Monte-Carlo-Simulationen des Channeling-Kernreaktionsexperiments mit Deuteronen verliefen im wesentlichen gleich wie die Simulationen der Rückstreuexperimente, nur daß in diesem Fall die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten der  $^{12}\text{C}(d,p)^{13}\text{C}$ -Kernreaktion mit Hilfe des Reaktionswirkungsquerschnitts berechnet wurde. Es wurden winkelabhängige Ausbeutekurven als Funktion der C-Auslenkung simuliert, um daraus die zwei Parameter  $\chi_{\min}$  und  $\psi_{1/2}$  zu bestimmen. Wie schon in 3.3.1 dargelegt wurde, mußte dazu erst die Auslenkung der Nb-Atome aus dem Experiment bestimmt werden, um deren Auswirkung auf die Ausbeute durch Streuung an den C-Atomen zu berücksichtigen. Ein Beispiel für die Halbwertsbreiten gerechneter winkelabhängiger Ausbeutekurven der Kernreaktion mit dem C-Atom ist in Abb. 39 dargestellt. Es werden die Halbwertsbreiten von gerechneten C-Ausbeutekurven für eine Neigung der Kippebene von  $75^\circ$  gegen die {001}-Ebene als Funktion der Amplitude der C-Atome gezeigt. Die durchgezogene Kurve zeigt die Ergebnisse der Rechnung mit einer Nb-Amplitude von  $0.067 \text{ \AA}$ , die gestrichelte Kurve die Ergebnisse mit einer Nb-Amplitude von  $0.082 \text{ \AA}$ . Die Kurve verläuft für die kleinere Nb-Amplitude wesentlich steiler und liefert für C-Amplituden  $< 0.07 \text{ \AA}$  die größeren Halbwertsbreiten.

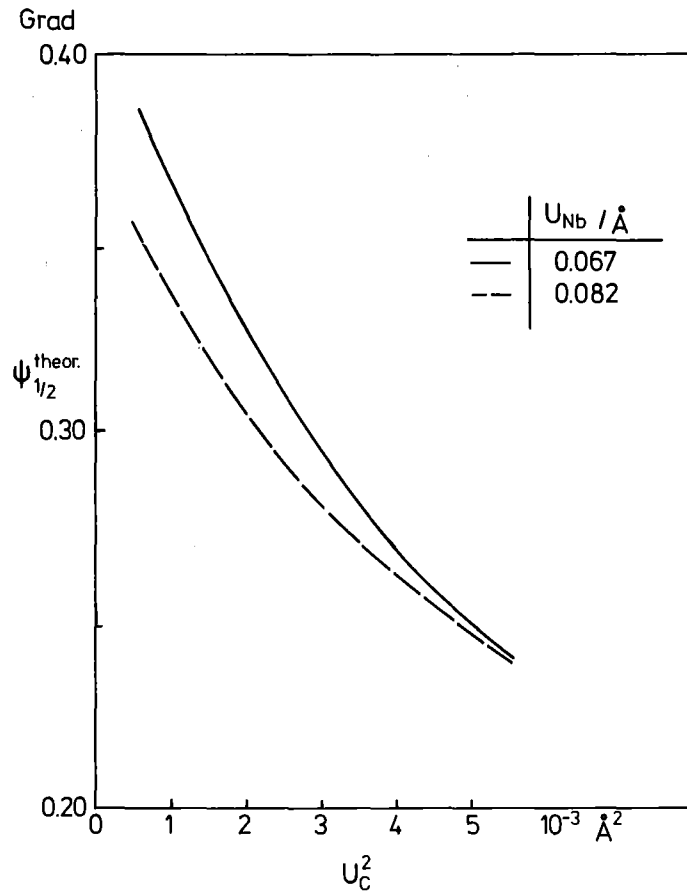


Abb. 39 Abhängigkeit der Halbwertsbreite  $\psi_{1/2}$  der C-Ausbeutekurve von der C-Auslenkungsamplitude für zwei verschiedene Nb-Amplituden.

### 3.4 Bestimmung von mittleren Auslenkungsamplituden in NbC<sub>x</sub> als Funktion der Temperatur

#### 3.4.1 Auslenkungsamplituden der Nb-Atome

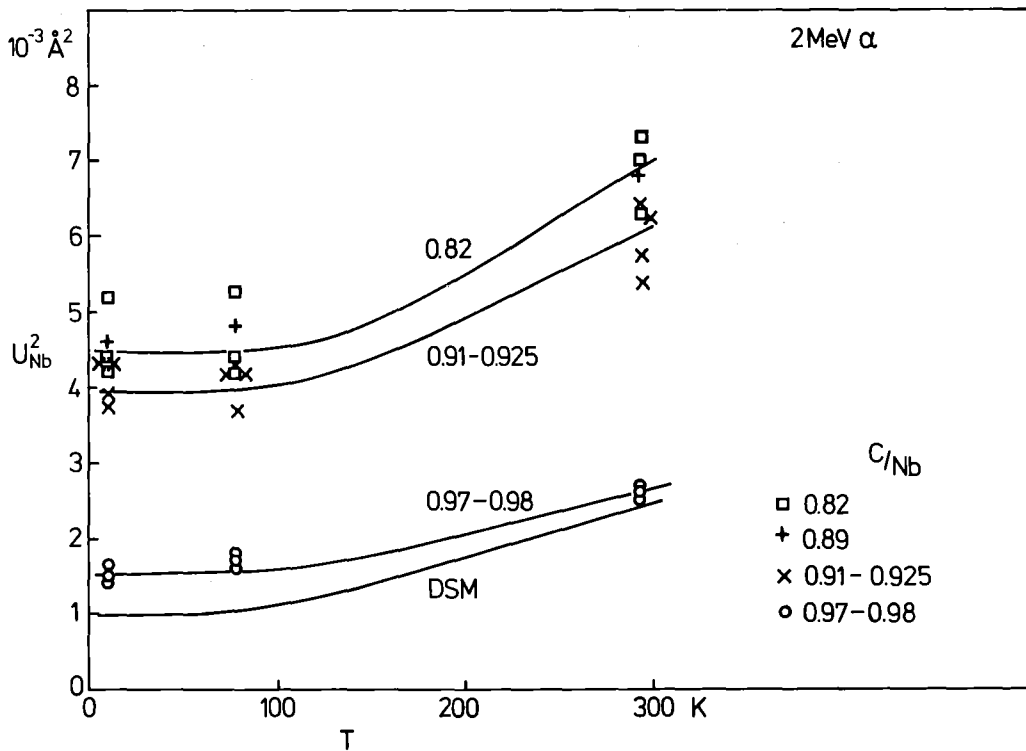
Anhand der in Abb. 36 dargestellten Ergebnisse der Abhängigkeit der Halbwertsbreite von winkelabhängigen Nb-Ausbeutekurven  $\psi_{1/2}$  von den mittleren Auslenkungsamplituden der Nb-Atome lassen sich aus gemessenen Halbwertsbreiten  $\psi_{1/2}$  die mittleren Auslenkungen als Funktion der Temperatur bestimmen.

Die Resultate sind in Abb. 40a,b aufgetragen; im oberen Bild 40a sind die Auslenkungen aus Messungen der Rückstreuerausbeute an Nb-Atomen mit 2 MeV He<sup>+</sup>-Teilchen und im unteren Bild sind die Auslenkungen aus Messungen mit 1.27 MeV d dargestellt. Quadrate stellen die Amplitudenwerte für ein C/Nb-Verhältnis von 0.82 dar; diese Punkte liegen in beiden Kurven bei den höchsten Amplitudenwerten. Der Abfall der Amplituden beim Übergang von 295 K auf eine Temperatur von 78 K ist bei dieser Konzentration am stärksten. Im Bereich zwischen 78 K und 4 K ist bei allen Konzentrationen keine weitere Abnahme der Auslenkungen zu sehen. Die Kreuze, Werte für einen Kristall mit einem C/Nb-Verhältnis von 0.89, liegen bei denselben Werten. Erst bei Konzentrationen von C/Nb = 0.91 - 0.925 (x) ist eine leichte Abnahme der Auslenkungen zu sehen, die Kurve ist parallel verschoben und zeigt dieselbe Steigung. Die Werte für faststöchiometrische Kristalle (o) liegen dagegen bei Auslenkungswerten, die wesentlich kleiner sind; es fällt auch auf, daß die Steigung zwischen Raumtemperatur und 78 K etwas kleiner ist.

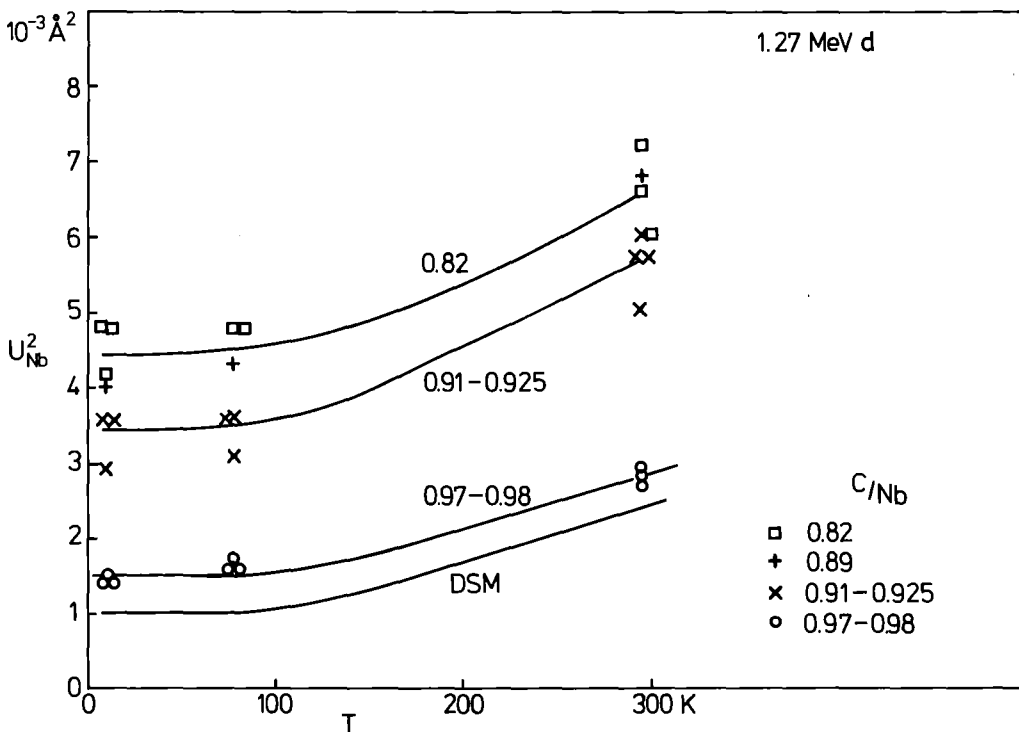
Bei beiden Bildern ist eine Kurve eingezeichnet, die mit DSM bezeichnet ist. Diese Werte sind aus Berechnungen der Frequenzmomente mit dem Doppelschalenmodell /6/ gewonnen und stellen die dynamische Komponente der Auslenkung der Nb-Atome dar. Die Meßwerte liegen für C/Nb = 0.98 nur wenig darüber.

Die Differenz der mittleren quadratischen Auslenkungen der Nb-Atome von 295 K und 4 K ist für die verschiedenen Konzentrationsbereiche in der Tabelle 7 dargestellt und mit der Abnahme der mit dem Doppelschalenmodell berechneten thermischen Schwingungsamplituden verglichen.

Die Abnahme der mittleren Auslenkungen der Nb-Atome mit fallender Temperatur ist für die stark unterstöchiometrischen Kristalle am stärksten.



a



b

Abb. 40a,b Quadrat der mittleren Auslenkungsamplituden der Nb-Atome als Funktion der Temperatur aus 2 MeV  $\text{He}^+$ - und 1.27 MeV  $d$ -Experimenten. Die durchgezogenen Linien sollen die Trends für die einzelnen Konzentrationsbereiche verdeutlichen. Die mit DSM bezeichnete Kurve stellt mit dem Doppelschalenmodell /6/ berechnete Werte dar.

|                       | C/Nb         | $u_{\text{Nb}}^2 \Big _{295 \text{ K}} - u_{\text{Nb}}^2 \Big _{4 \text{ K}}$ |
|-----------------------|--------------|---|
| 2 MeV He <sup>+</sup> | 0.82         | $2.3 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^2$   |
|                       | 0.89         | $2.0 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^2$   |
|                       | 0.91 - 0.925 | $1.8 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^2$   |
|                       | 0.97 - 0.98  | $1.1 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^2$   |
| 1.27 MeV d            | 0.82         | $1.9 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^2$   |
|                       | 0.89         | $2.7 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^2$   |
|                       | 0.91 - 0.925 | $2.1 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^2$   |
|                       | 0.97 - 0.98  | $1.3 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^2$   |
| DSM                   | 0.76 - 0.98  | $1.5 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^2$   |

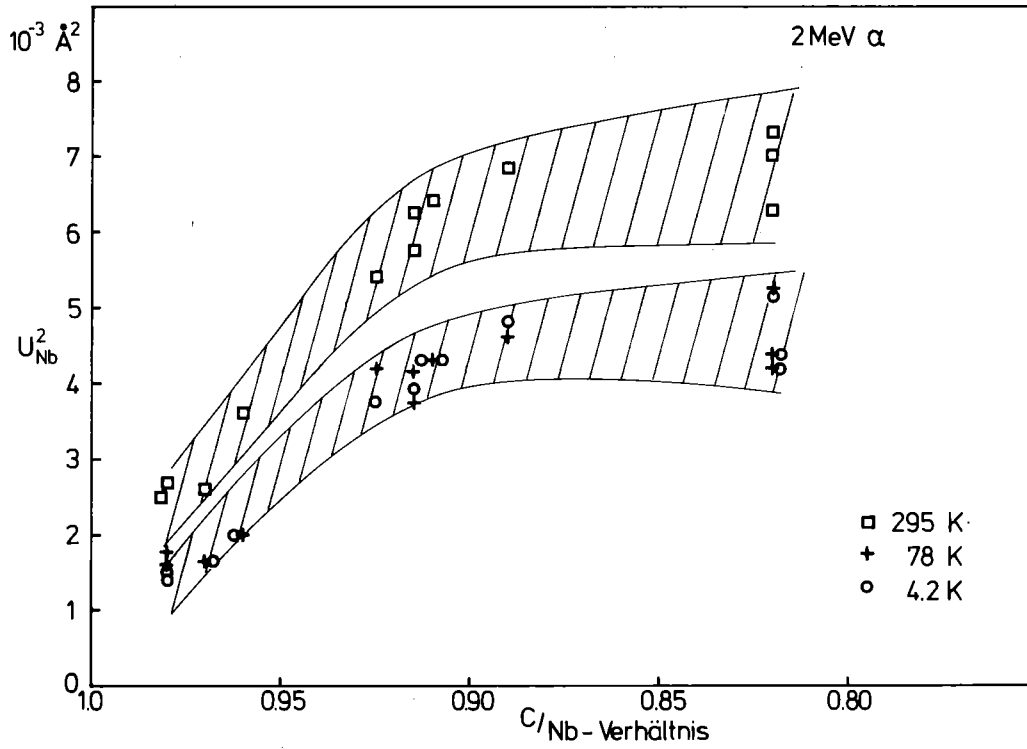
Tabelle 7 Differenz der mittleren Auslenkungen der Nb-Atome von 295 K und 4 K.

Mit zunehmendem C-Gehalt wird die Temperaturabhängigkeit etwas geringer. Die Temperaturabhängigkeit der mit dem Doppelschalenmodell berechneten Werte stimmt mit den gemessenen Werten dennoch weitgehend überein.

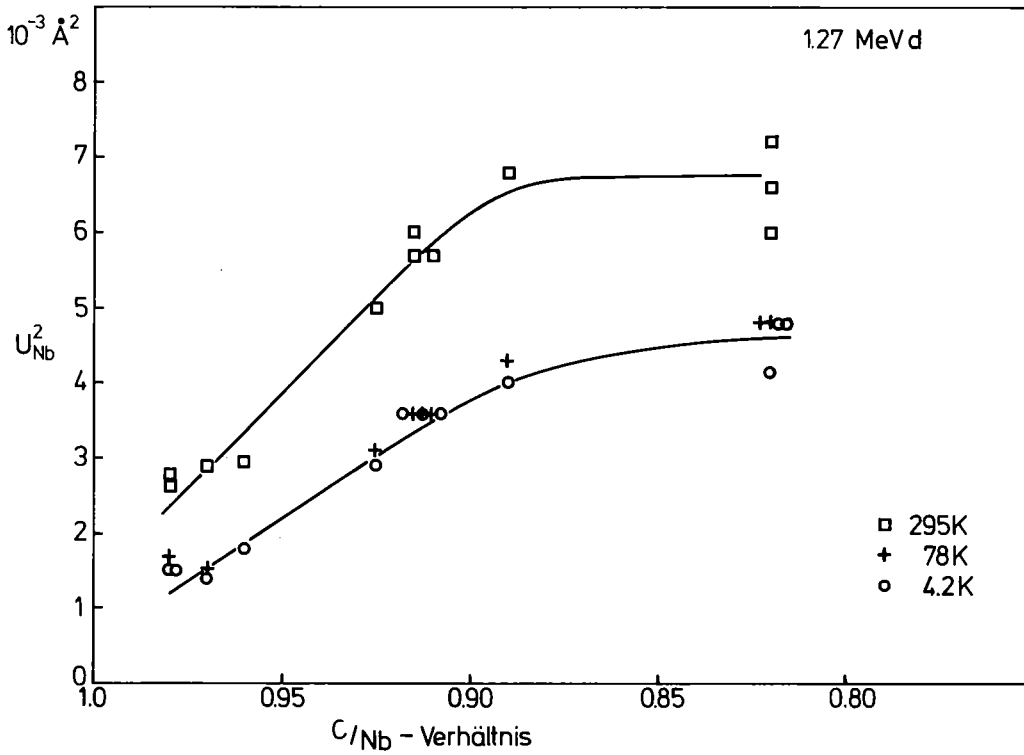
In Abb. 41a,b sind die Auslenkungsamplituden als Funktion des C-Gehalts für verschiedene Temperaturen aufgetragen. Teil a zeigt die Werte für He<sup>+</sup>-Ionen, Teil b die Werte für Deuteronen. Die Werte bei Raumtemperatur verlaufen im Bereich von  $x = 0.82$  bis zu einer Konzentration von 0.90 nahezu konstant und nehmen von  $x = 0.90$  bis  $x = 0.98$  deutlich ab. Bei tiefen Temperaturen sind die Werte ebenso konstant bis  $x = 0.90$ , der Abfall zum faststöchiometrischen Fall verläuft aber etwas flacher als bei 295 K. Die Reproduzierbarkeit der Methode zeigt die Übereinstimmung zwischen beiden Abbildungen.

In Abb. 41a ist die Gesamtschwankungsbreite bei der Bestimmung der mittleren Auslenkungen dargestellt. Sie ergibt sich durch den Fehler der berechneten Halbwertsbreite ( $\pm 0.015^\circ$ ) und durch die Streuung der aus den gemessenen Halbwertsbreiten bestimmten Auslenkungen.

In 1.2.4 wurde eine Methode beschrieben, durch bestimmte Annahmen aus temperaturabhängigen Messungen von  $\psi_{1/2}$  die statischen Anteile der mittleren Auslenkungen zu bestimmen. Da jedoch die thermischen Schwingungsamplituden durch das Doppelschalenmodell /6/ gegeben sind (siehe Tabelle 1), und diese



a



b

Abb. 41 Quadrat der mittleren Auslenkung der Nb-Atome als Funktion der Zusammensetzung aus 2 MeV  $\text{He}^+$ - und 1.27 MeV d-Experimenten. In Abb. 41a sind die Gesamtschwankungsbreiten bei der Bestimmung der mittleren Auslenkungen eingetragen.



Werte durch Phononenzustandsdichtemessungen für  $\text{NbC}_{0.76}$  und  $\text{NbC}_{0.98}$  bei 295 K und bei 4 K /82/ bestätigt wurden, waren diese Annahmen überflüssig. Die statischen Auslenkungen konnten so durch Subtraktion der thermischen Schwingungsamplituden von den in Abb. 41 dargestellten mittleren Auslenkungen gewonnen werden. Da jedoch die durch das Doppelschalenmodell bestimmten thermischen Schwingungsamplituden nur geringfügig kleiner sind als die durch Channeling-Untersuchungen bestimmten mittleren Auslenkungen der Nb-Atome für  $x = 0.98$ , sind die Abweichungen bei der Bestimmung der mittleren statischen Auslenkungen nach der zweiten Methode gegenüber der ersten Methode gering.

Die mittleren statischen Auslenkungen sind in Abb. 42 als Funktion des C/Nb-Verhältnisses aufgetragen. Hierbei wurden nur die Werte aus den Messungen mit  $\text{He}^+$ -Ionen benutzt. Die Werte liegen bei Raumtemperatur (offene Quadrate) um etwa  $0.005 \text{ \AA}$  über den Werten aus dem 4 K-Experiment, diese Abweichung ist jedoch nicht signifikant. Die mittleren statischen Auslenkungen nehmen im Bereich  $x = 0.98 - 0.90$  von  $0.015 \text{ \AA}$  auf  $0.06 \text{ \AA}$  stark zu und bleiben dann bis  $x = 0.82$  konstant.

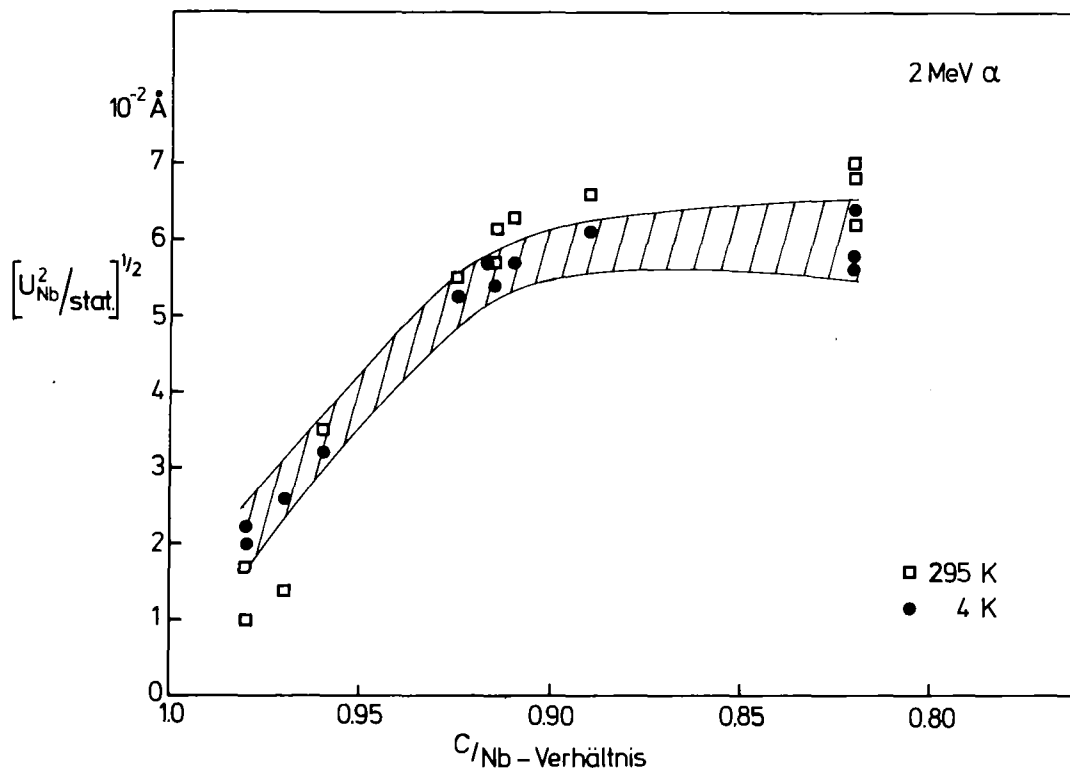


Abb. 42 Mittlere statische Auslenkung der Nb-Atome als Funktion der Zusammensetzung für verschiedene Temperaturen. Es ist die Gesamtschwankungsbreite bei der Bestimmung der mittleren statischen Auslenkungen aus den Messungen bei 4 K eingezeichnet.

Die Anwendung der Theorie der diffusen Röntgenstreuung auf Punktdefekte ergibt, daß die mittleren quadratischen Verlagerungsamplituden unter der Annahme von statistisch verteilten Punktdefekten und unter der weiteren Annahme, daß sich die Verzerrungsfelder der einzelnen Defekte überlagern, linear von der Konzentration der Defekte abhängen /83/. Die beiden Annahmen gelten sicher nur für niedrige Defektkonzentrationen. Deshalb wurde versucht, an die Quadrate der mittleren statischen Auslenkungen bei 4 K im Bereich  $x = 0.98 - 0.96$  eine Gerade anzupassen, die bei  $x = 1.0$  durch den Nullpunkt der Auslenkungen geht. Das Ergebnis ist in Abb. 43 dargestellt.

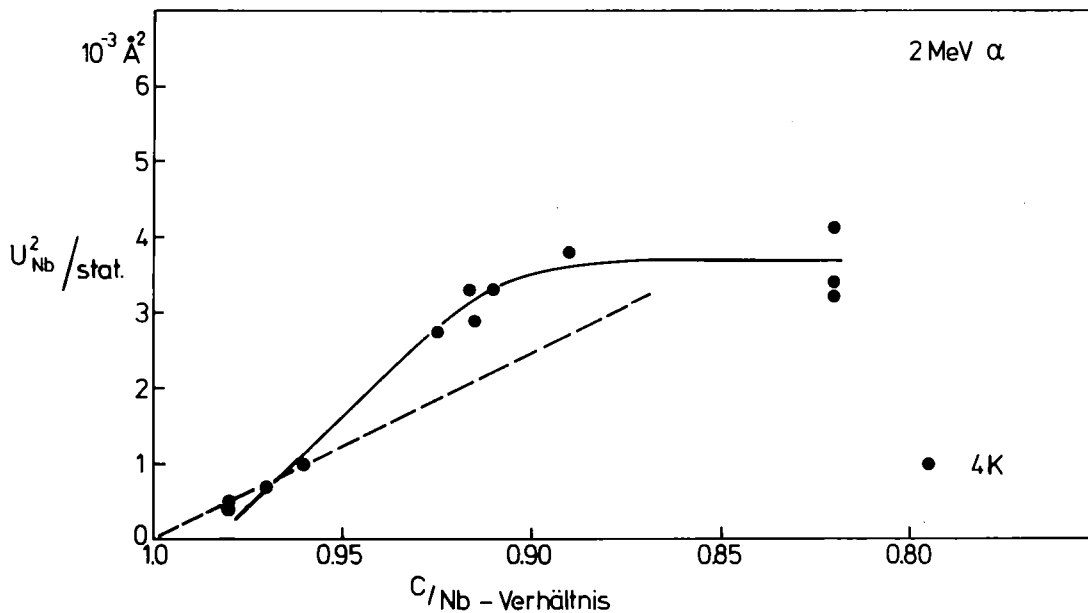


Abb. 43 Quadrate der mittleren statischen Auslenkungen der Nb-Atome bei 4 K als Funktion der Zusammensetzung. Die gestrichelte Gerade gilt für die Annahme, daß das Auslenkungsquadrat linear von der Defektkonzentration abhängt.

Die Auslenkungsquadratur im Bereich  $x = 0.98 - 0.96$  liegen auf einer Geraden. Für diesen Konzentrationsbereich ist kein Widerspruch zu der Annahme der linearen Konzentrationsabhängigkeit festzustellen. Eine deutliche Abweichung ergibt sich dagegen bei höheren Defektkonzentrationen um  $x = 0.90$ . Dieser Effekt wird später noch diskutiert.

### 3.4.2 Auslenkungsamplituden der C-Atome

Die Bestimmung der Auslenkungsamplituden der C-Atome gestaltet sich wesentlich schwieriger, da zum einen die Meßwerte durch den kleinen Wirkungsquerschnitt mit größerem Fehler behaftet sind und zum anderen da die Kristallgüte größeren Einfluß auf die Ausbeute durch Streuung an C-Atomen als an Nb-Atomen hat. Dennoch wurde versucht, durch Vergleich der Meßwerte mit Ergebnissen der Monte-Carlo-Rechnungen mittlere Auslenkungsamplituden zu bestimmen.

Das Ergebnis ist in Abb. 44 dargestellt. Es sind die Quadrate der Auslenkungsamplituden als Funktion der Temperatur aufgetragen, wobei die Werte für verschiedene C-Konzentrationen dargestellt wurden. Die Werte für Raumtemperatur streuen ziemlich stark, die Tieftemperaturwerte dagegen weit weniger. Das Verhalten als Funktion der Temperatur ist im wesentlichen dasselbe wie bei den Nb-Auslenkungen, wenn auch etwas schwächer ausgeprägt. Zu bemerken ist, daß der Verlauf als Funktion der Temperatur für die hier untersuchten Zusammensetzungen derselbe ist, daß also keine Unterschiede als Funktion der C-Fehlstellenkonzentration auftreten.

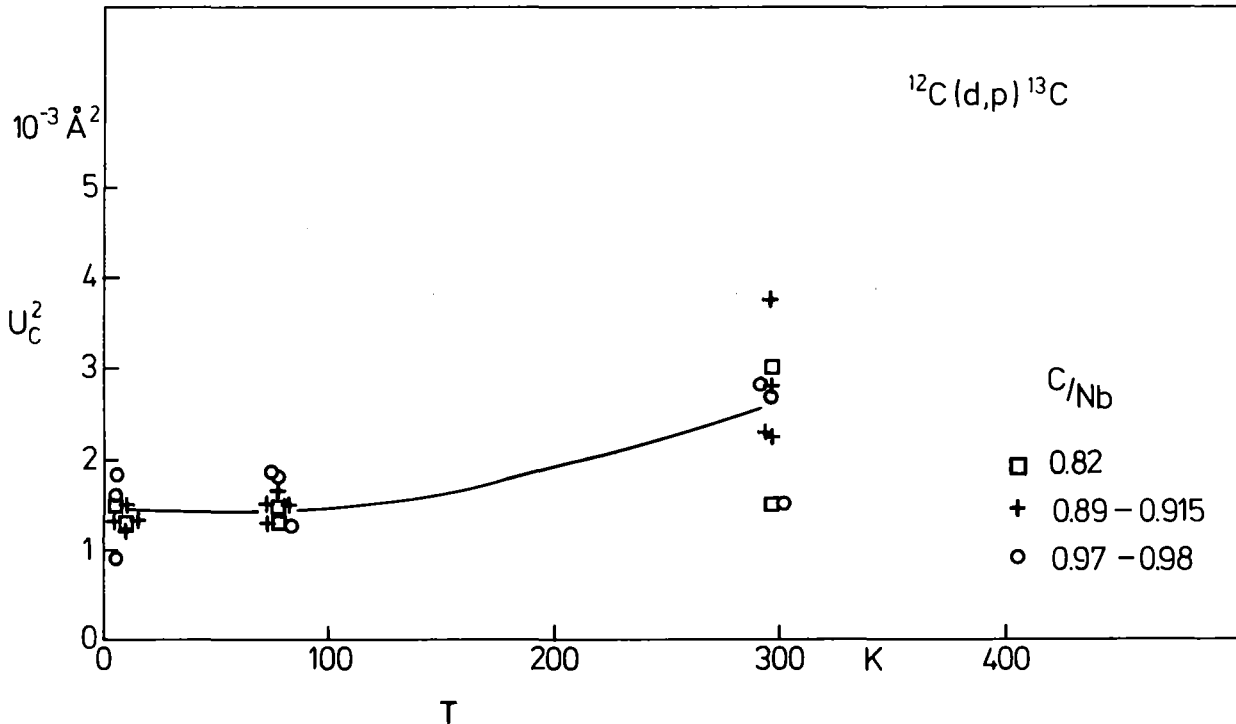


Abb. 44 Quadrat der mittleren Auslenkung der C-Atome als Funktion der Temperatur für verschiedene Zusammensetzungen. Die durchgezogene Kurve soll den Trend der Meßwerte verdeutlichen.

Dieses Verhalten wird auch in Abb. 45 deutlich, wo das Quadrat der C-Auslenkungen als Funktion der Zusammensetzung aufgetragen ist. Als Gesamtschwankungsbreite ist wieder die Summe aus der Schwankung durch den Fehler der berechneten Halbwertsbreite ( $\pm 0.015^\circ$ ) und der Streuung der aus den gemessenen Halbwertsbreiten bestimmten Auslenkungen dargestellt. Innerhalb der Schwankung ist keine Abhängigkeit der Auslenkung von der Zusammensetzung festzustellen. Die mit dem Doppelschalenmodell berechneten Werte der thermischen Schwingungsamplituden stimmen mit den gemessenen Werten überein.

Da die Auslenkungen der C-Atome keine Abhängigkeit von der Leerstellenkonzentration zeigen und die thermischen Auslenkungen mit den mittleren Auslenkungen innerhalb der Fehlergrenzen übereinstimmen, können für die C-Atome keine statischen Auslenkungen angegeben werden.

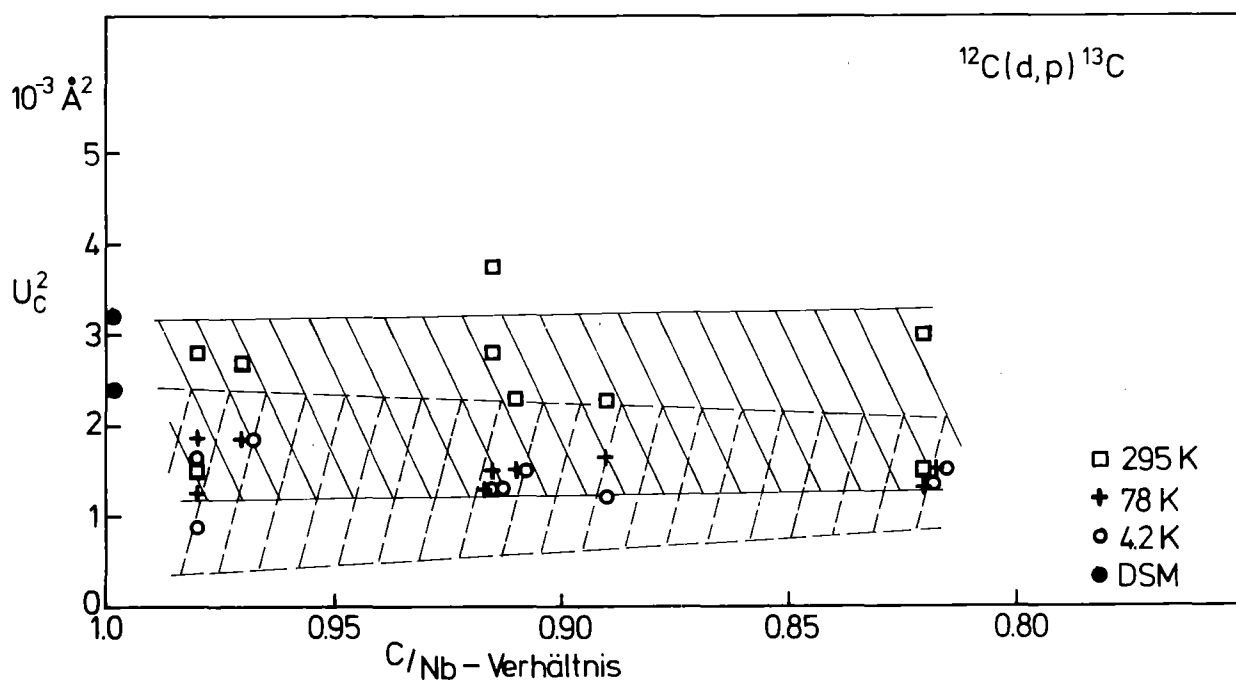


Abb. 45 Quadrat der mittleren Auslenkung der C-Atome als Funktion der Zusammensetzung für verschiedene Temperaturen. Es sind die Gesamtschwankungsbreiten bei der Bestimmung der mittleren Auslenkung angegeben. Die Werte der mit dem Doppelschalenmodell berechneten dynamischen Auslenkungen sind ebenfalls dargestellt.

### 3.5 Analyse des Verzerrungsfeldes um eine C-Leerstelle in NbC

Die Analyse der Channeling-Experimente durch Computer-Simulationsrechnungen ergab mittlere statische Auslenkungen aller Nb-Atome als Funktion der Zusammensetzung der NbC<sub>x</sub>-Kristalle. Dies stellt sicher keine realistische Annahme für das Verzerrungsfeld um eine C-Leerstelle bei niedriger Leerstellenkonzentration dar.

Die Monte-Carlo-Methode bietet jedoch die Möglichkeit, die Struktur des Kristalls nach einem vorgegebenen Defektmodell zu verändern und aus dem Vergleich der damit erzielten Simulationsergebnisse mit den experimentellen Daten das Modell als realistisch anzunehmen oder zu verwerfen.

Zunächst wurden Simulationsrechnungen mit einem Defektmodell durchgeführt, bei dem nur die nächsten Nachbarn einer C-Leerstelle zur Leerstelle hin verlagert waren. Alle Nb-Atome unterlagen thermischen Auslenkungen mit der aus dem Doppelschalenmodell berechneten mittleren Amplitude. Die Rechnungen wurden für Zusammensetzungen von  $x = 0.98, 0.96, 0.89$  und  $0.82$  durchgeführt, wobei die Größe der statischen Auslenkungen der Leerstellennachbarn durch Vergleich der berechneten mit den gemessenen Halbwertsbreiten angepaßt wurde. Das Ergebnis dieser Rechnungen ist in Abb. 46 dargestellt.

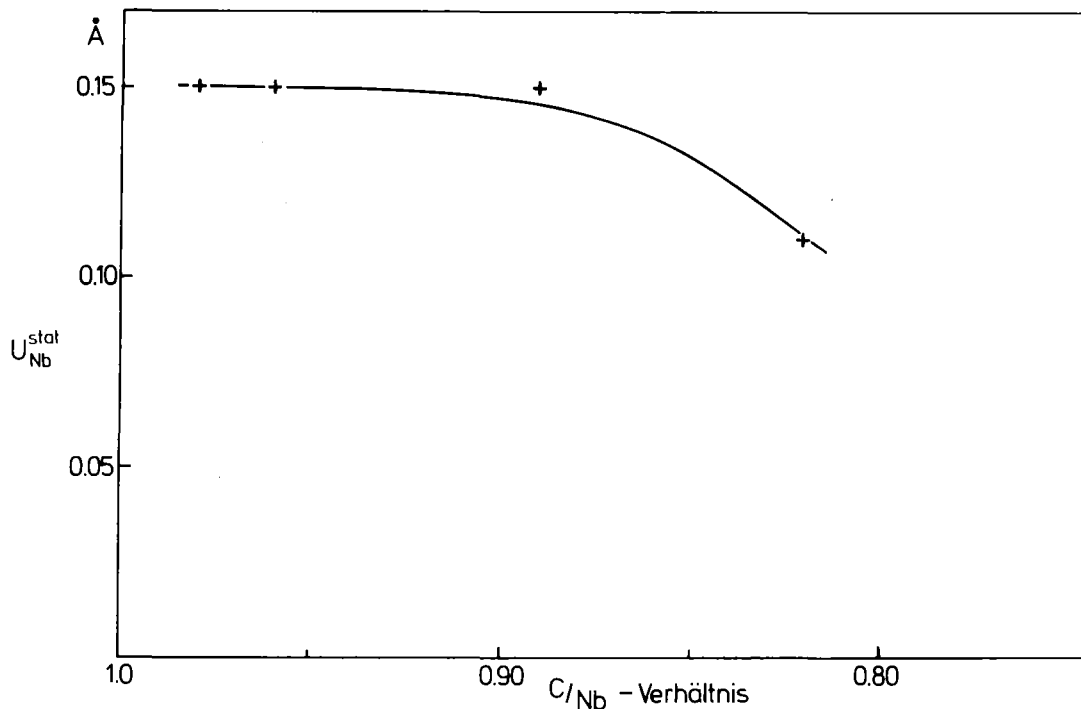


Abb. 46 Statische Auslenkungen der nächsten Nb-Nachbarn einer C-Leerstelle. Bei diesem Defektmodell wurde angenommen, daß nur die nächsten Nachbarn verlagert sind.

Es ergaben sich Auslenkungen der nächsten Nb-Nachbarn, die im Bereich  $x = 0.98 - 0.89$  einen konstanten Wert von  $0.15 \text{ \AA}$  aufwiesen und gegen  $x = 0.82$  auf  $0.11 \text{ \AA}$  abnahmen.

Die Annahme, daß nur die nächsten Nachbarn der Leerstelle Verzerrungen unterliegen, ist sicher auch nicht sehr realistisch. Ein Defektmodell, das Auslenkungen mehrerer Nachbarschalen beschreibt und deshalb durch mehrere Parameter festgelegt ist, kann durch die Monte-Carlo-Rechnungen nur sehr schwer eindeutig an experimentelle Ergebnisse angepaßt werden. Deshalb wurde versucht, mit Hilfe einer einfachen Theorie das Verzerrungsfeld in der Umgebung einer C-Leerstelle zu berechnen.

### 3.5.1 Berechnung des Verzerrungsfeldes nach der Kanzaki-Methode

Von Kanzaki wurde ein Verfahren /84/ vorgestellt um das Verzerrungsfeld in der Umgebung eines Punktdefektes mit Hilfe einer Methode zu berechnen, welche die Struktur des Kristalls berücksichtigt. Im folgenden wird die Vorgehensweise kurz beschrieben.

Wenn in einer Kristallstruktur Punktdefekte erzeugt werden, wird durch diese Defekte eine Verlagerung der Nachbaratome von ihren Gitterplätzen verursacht. In der Rechnung wird ein Kristall ohne Defekte betrachtet, der aber äußeren Kräften ausgesetzt ist, die Verlagerungen der Atome bewirken. Wenn man die richtigen äußeren Kräfte wählt, kann man erreichen, daß die Atome, die diesen Kräften unterworfen sind, dieselben Verlagerungen aufweisen wie die Atome eines Kristalls mit wirklichen Defekten. Die Größe und Richtung der äußeren Kräfte lassen sich unter der Annahme verschiedener Defektmodelle bestimmen, sie sollen jedoch zunächst als gegeben vorausgesetzt werden. Es sollen die Verlagerungen des  $l$ -ten Atoms von seinem Platz im ungestörten Gitter untersucht werden, wobei zur Vereinfachung angenommen wird, daß der Kristall nur 1 Atom pro Elementarzelle enthält.

Die Lage des Atoms im ungestörten Gitter sei durch den Vektor  $\vec{r}^1$  gegeben. Die äußere Kraft auf das Atom sei  $\vec{F}^1$  und die Verlagerungen seien  $\vec{\zeta}^1$ .

Die potentielle Energie des Kristalls, der durch die äußeren Kräfte verzerrt wird, wird nach den Komponenten der Verzerrungskordinaten bis zum zweiten Grad entwickelt:

$$U - U_0 = -\sum_{\alpha} \sum_{\mathbf{l}} F_{\alpha}(\mathbf{r}^{\mathbf{l}}) \zeta_{\alpha}(\mathbf{r}^{\mathbf{l}}) + \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{l}, \mathbf{l}'} \sum_{\alpha, \beta} A_{\alpha\beta}(\mathbf{l}, \mathbf{l}') \zeta_{\alpha}(\mathbf{r}^{\mathbf{l}}) \zeta_{\beta}(\mathbf{r}^{\mathbf{l}'}). \quad (3.2)$$

$$\alpha, \beta = 1, 2, 3$$

$U_0$  sei die potentielle Energie des ungestörten Kristalls .

$A_{\alpha\beta}$  ist gegeben durch:

$$A_{\alpha\beta}(\mathbf{l}, \mathbf{l}') = \left[ \frac{\partial^2 U}{\partial x_{\alpha}^{\mathbf{l}} \partial x_{\beta}^{\mathbf{l}'}} \right]_0 \quad (3.3)$$

Der Gleichgewichtswert für die Verlagerungen ergibt sich durch:

$$\frac{\partial U}{\partial \zeta_{\alpha}(\mathbf{r}^{\mathbf{l}})} = 0 \quad (3.4)$$

Daraus folgt dann:

$$F_{\alpha}(\mathbf{r}^{\mathbf{l}}) = \sum_{\mathbf{l}'} \sum_{\beta} A_{\alpha\beta}(\mathbf{l}, \mathbf{l}') \zeta_{\beta}(\mathbf{r}^{\mathbf{l}'}). \quad (3.5)$$

Diese Beziehung enthält die wesentliche Information über die Verlagerung bei Kenntnis der äußeren Kräfte. Allerdings stellt der Ausdruck (3.5) partielle Differenzgleichungen dar; dieses Gleichungssystem läßt sich jedoch vereinfachen. Hierzu werden die Verlagerungen in einer Fourier-Entwicklung dargestellt:

$$\zeta_{\alpha}(\mathbf{r}^{\mathbf{l}}) = \sum_{\vec{q}} \vec{Q}_{\alpha}(\vec{q}) e^{i\vec{q}\mathbf{r}^{\mathbf{l}}} \quad (3.6)$$

$\vec{q}$  ist der Wellenzahlvektor und die Entwicklungskoeffizienten  $\vec{Q}$  sind die Normalkoordinaten wie in der Gitterdynamik, im allgemeinen also komplexe Größen. Wenn man nun diese Beziehung (3.6) in (3.2) einsetzt, erhält man für den ersten Term:

$$-\sum_{\vec{q}} \sum_{\alpha} G_{\alpha}(\vec{q}) Q_{\alpha}(\vec{q}) \quad (3.7)$$

wobei

$$G_{\alpha}(\vec{q}) = \sum_{\mathbf{l}} F_{\alpha}(\mathbf{r}^{\mathbf{l}}) e^{i\vec{q}\mathbf{r}^{\mathbf{l}}} \quad (3.8)$$

$\vec{G}$  stellt die verallgemeinerte Kraft dar. Der zweite Term von (3.2) ergibt:

$$\frac{1}{2} \sum_{\mathbf{l}, \mathbf{l}'} \sum_{\alpha, \beta} A_{\alpha\beta}(\mathbf{l}, \mathbf{l}') \sum_{\vec{q}, \vec{q}'} Q_{\alpha}(\vec{q}) Q_{\beta}(\vec{q}') e^{i\vec{q}'(\mathbf{r}^{\mathbf{l}'} - \mathbf{r}^{\mathbf{l}})} \sum_{\mathbf{l}} e^{i(\vec{q} + \vec{q}')\mathbf{r}^{\mathbf{l}}} \quad (3.9)$$

Die Summe  $\sum_{\vec{r}} e^{i(\vec{q}+\vec{q}')\vec{r}}$  wird zu null, außer wenn  $\vec{q}+\vec{q}'$  einen Vektor des reziproken Gitters darstellt, deshalb sind  $\vec{q}$  und  $-\vec{q}'$  äquivalent.

Dadurch wird (3.9) zu:

$$\frac{N}{2} \sum_{\vec{q}} \sum_{\alpha\beta} V_{\alpha\beta}(\vec{q}) Q_{\alpha}(\vec{q}) Q_{\beta}(-\vec{q}) \quad , \quad (3.10)$$

wobei

$$V_{\alpha\beta}(\vec{q}) = \sum_{\vec{l}=-1}^1 A_{\alpha\beta}(\vec{l}\vec{l}') e^{-i\vec{q}(\vec{r}^{\vec{l}'} - \vec{r}^{\vec{l}})} \quad (3.11)$$

die dynamische Matrix darstellt. N ist die Anzahl der Gitterpunkte im Kristall.

So erhält man schließlich:

$$U - U_0 = \sum_{\vec{q}} \left[ -\sum_{\alpha} G_{\alpha}(\vec{q}) Q_{\alpha}(-\vec{q}) + \frac{N}{2} \sum_{\alpha\beta} V_{\alpha\beta}(\vec{q}) Q_{\alpha}(\vec{q}) Q_{\beta}(-\vec{q}) \right]. \quad (3.12)$$

Die zu (3.4) äquivalente Gleichgewichtsbedingung lautet;

$$\frac{\partial U}{\partial Q_{\alpha}(\vec{q})} = 0 \quad (3.13)$$

und führt schließlich auf:

$$N \sum_{\beta} V_{\alpha\beta}(-\vec{q}) Q_{\beta}(\vec{q}) = G_{\alpha}(-\vec{q}) \quad (3.14)$$

So erhält man also für jeden Wellenzahlvektor  $\vec{q}$  3 Gleichungen für die 3 Komponenten  $Q_{\alpha}(\vec{q})$ . Sind diese Gleichungen für jeden  $\vec{q}$ -Vektor der ersten Brillouin-Zone gelöst, so kann man nach (3.6) die Verlagerungen für jedes beliebige Atom des Kristalls berechnen.

#### Berechnung der Kanzaki-Kräfte mit dem Modell der fehlenden Bindungen

Eine Möglichkeit zur Berechnung der äußeren Kräfte bietet die Annahme, daß eine Leerstelle durch fehlende Bindungen eines Atoms zu seinen Nachbaratomen dargestellt werden kann. Wird die Wechselwirkung zwischen zwei Atomen des Kristalls durch das interatomare Potential  $\phi(\vec{r})$  beschrieben, so kann mit dieser Annahme die Wechselwirkung zwischen Leerstelle und Atom durch das Potential  $-\phi(\vec{r})$  beschrieben werden. Damit kann die äußere Kraft berechnet werden:

$$F_{\alpha}(\vec{r}^{\vec{l}}) = \frac{\partial [\sum \phi(|\vec{r}^{\vec{l}} + \vec{\zeta}(\vec{r}^{\vec{l}})|)]}{\partial \zeta_{\alpha}(\vec{r}^{\vec{l}})} \quad (3.15)$$

Die Leerstelle befindet sich im Ursprung des Koordinatensystems. Die Kräfte müssen bis zum n-ten Nachbarn der Fehlstelle berechnet werden, wobei n je nach Substanz einen verschiedenen Wert haben kann.



Im allgemeinen nimmt man aus Symmetrieüberlegungen an, daß sowohl die Verlagerungen  $\vec{\zeta}(\vec{r}^{\rightarrow 1})$  als auch die externen Kräfte  $\vec{F}(\vec{r}^{\rightarrow 1})$  parallel zu den Positionsvektoren  $\vec{r}^{\rightarrow 1}$  sind. Deshalb können  $\vec{\zeta}(\vec{r}^{\rightarrow 1})$  und  $\vec{F}(\vec{r}^{\rightarrow 1})$  ersetzt werden durch  $\zeta_R^1 \vec{e}(\vec{r}^{\rightarrow 1})$  und  $F_R^1 \vec{e}(\vec{r}^{\rightarrow 1})$ , wobei  $\vec{e}(\vec{r}^{\rightarrow 1})$  einen Einheitsvektor parallel zu  $\vec{r}^{\rightarrow 1}$  darstellt. Deshalb wird (3.15) zu

$$F_R^1 = \left[ \frac{d\phi}{dr} \right]_{|\vec{r}^{\rightarrow 1}|} + \zeta_R^1 \frac{d^2\phi}{dr^2} \Big|_{|\vec{r}^{\rightarrow 1}|} \quad (3.16)$$

wenn  $\phi(|\vec{r}^{\rightarrow 1}| + \zeta(\vec{r}^{\rightarrow 1}))$  in eine Taylor-Reihe bis zum zweiten Glied entwickelt wird. Die Ableitungen des interatomaren Potentials brauchen jedoch nicht wirklich bekannt zu sein. In der Praxis ist es am einfachsten /86/, mit den Kraftkonstanten A(n) und B(n) zu arbeiten, wie sie z.B. in einem Born-von Kármán-Modell für axialsymmetrische Kräfte bestimmt werden. Für A(n) und B(n) gilt nämlich:

$$\begin{aligned} A(n) &= \frac{\partial^2 \phi}{\partial r^2} \Big|_{r(n)} \\ B(n) &= \frac{1}{r} \frac{\partial \phi}{\partial r} \Big|_{r(n)} \end{aligned} \quad (3.17)$$

$r(n)$  = Radius-Vektor für die n-te Schale.

Mit Hilfe dieser Beziehungen kann (3.16) umgeschrieben werden in:

$$F(n) = r(n) B(n) + \zeta(n) A(n) \quad , \quad (3.18)$$

wobei  $\zeta(n)$  die Auslenkung der n-ten Schale darstellt. Diese Auslenkungen  $\zeta(n)$  können ausgedrückt werden als:

$$\zeta(n) = \sum_m \rho(n,m) F(m) \quad , \quad (3.19)$$

da F(n) in den Auslenkungen linearisiert wurde.  $\rho(n,m)$  stellt dabei die Auslenkung eines Atoms der n-ten Schale dar, wenn die Kraft auf die Atome der m-ten Schale eine Einheitskraft ist und alle anderen Kräfte null sind. Die Rechnung läuft also so, daß man für die verschiedenen n die Werte der Auslenkungen für Einheitskräfte bestimmt und damit dann die Kräfte auf die einzelnen Schalen ausrechnet. Sobald man die F(n) kennt, können die verallgemeinerten Kräfte und damit die Normalkoordinaten bestimmt werden, womit die Auslenkungen für jedes beliebige Atom des Kristalls gegeben sind.

In NbC wurde dieses Verfahren angewandt, um das Verzerrungsfeld in der Umgebung einer C-Leerstelle zu bestimmen, wobei Kraftkonstanten eines an Dispersionsmessungen angepaßten Born-von Kármán-Modells verwendet wurden,

die bis zur 4. Nachbarschale reichten /87/. Die Rechnung verläuft wie hier beschrieben; lediglich wird die dynamische Matrix durch eine 6x6-Matrix dargestellt, da NbC zwei Atome pro Elementarzelle besitzt; ebenso hat der Kraftvektor 6 Komponenten. Die verwendeten Kraftkonstanten für das axialsymmetrische Modell sind in der Tabelle 8 aufgelistet. Die

| Nr. der Nachbarschale | Typ der WW | A(n)<br>dyn / cm | B(n)<br>dyn / cm |
|-----------------------|------------|------------------|------------------|
| 1                     | Nb - C     | 88642            | 3903.3           |
| 2                     | Nb - Nb    | 39015            | -439.1           |
|                       | C - C      | 2778.9           | —                |
| 3                     | Nb - C     | 7341.2           | —                |
| 4                     | Nb - Nb    | -24132           | —                |
|                       | C - C      | 14849            | —                |

Tabelle 8 Kraftkonstanten für ein axial-symmetrisches Born-von Kármán-Modell.

entsprechenden Kraftkonstantenmatrizen sind im Anhang dargestellt.

Führt man die Berechnung des Verzerrungsfeldes für NbC auf die beschriebene Weise durch, so ergeben sich für die Auslenkungen der Atome von ihren Gitterplätzen die in der Tabelle 9 angegebenen Werte. Positive Werte stellen dabei Verlagerungen dar, die von der Fehlstelle wegführen.

Man sieht, daß die meisten Nachbarschalen Relaxationen aufweisen, die von der Fehlstelle wegzeigen.

Durch Änderungen der Kraftkonstanten in der Rechnung wurde versucht, dieses Ergebnis zu verstehen. Zunächst wurden nur Nb-Nb-Wechselwirkungen zugelassen. Bei der Berechnung der Relaxationen um eine Nb-Fehlstelle ergaben sich bis auf die 2. und 5. Schale Verlagerungen nach innen, wobei die Werte etwa halb so groß waren wie bei der Rechnung mit den richtigen Kraftkonstanten. Daraufhin wurden die Nb-C- und die Nb-Nb-Wechselwirkung für die 2. Schale vertauscht. Dieses Mal zeigten die Verlagerungen ebenfalls zur Fehlstelle hin, wenn auch die Werte gegenüber der Rechnung mit den richtigen Konstanten um den Faktor 10 kleiner waren.

Es wurden noch drei weitere Rechnungen durchgeführt, wobei zunächst die Nb-Nb-Wechselwirkung der 2. Schale gleich der Nb-C-Wechselwirkung

C-Leerstellen

|             | Atomkoordinaten<br>in Einheiten<br>von $a/2$<br>$L_1 L_2 L_3$ | Auslenkungen |           |           | $ \vec{\zeta}  \cdot R^2$ |
|-------------|---|--------------|-----------|-----------|---------------------------|
|             |   | $\text{\AA}$ |           |           | $\text{\AA} \cdot a^2/4$  |
|             |   | $\zeta_x$    | $\zeta_y$ | $\zeta_z$ |                           |
| Nb-Nachbarn | 100   | 0.062        | 0         | 0         | 0.028                     |
|             | 111   | -0.0012      | -0.0012   | -0.0012   | 0.002 -                   |
|             | 210   | 0.0034       | 0.0007    | 0         | 0.008                     |
|             | 221   | 0.0008       | 0.0008    | 0.0016    | 0.008                     |
|             | 300   | 0.018        | 0         | 0         | 0.073                     |
|             | 311   | 0.0013       | 0.0001    | 0.0001    | 0.008                     |
|             | 320   | 0.0017       | 0.0011    | 0         | 0.012                     |
|             | 322   | 0.0003       | -0.0001   | -0.0001   | 0.008 -                   |
|             | 410   | 0.0033       | 0.0007    | 0         | 0.025                     |
|             | 421   | 0.0005       | 0.0002    | 0.0005    | 0.007                     |
| C-Nachbarn  | 110   | 0.021        | 0.021     | 0         | 0.026                     |
|             | 200   | 0.025        | 0         | 0         | 0.045                     |
|             | 211   | -0.0047      | -0.0036   | -0.0036   | 0.020 -                   |
|             | 220   | -0.0026      | -0.0026   | 0         | 0.013 -                   |
|             | 310   | 0.0041       | 0.0016    | 0         | 0.020                     |
|             | 222   | 0.0046       | 0.0046    | 0.0046    | 0.046                     |
|             | 321   | 0.0034       | 0.0028    | 0.0009    | 0.028                     |
|             | 400   | 0.0080       | 0         | 0         | 0.057                     |
|             | 330   | -0.0004      | -0.0004   | 0         | 0.004 -                   |
|             | 411   | 0.0020       | -0.0001   | -0.0001   | 0.017                     |

Tabelle 9 . Mit Hilfe der Kanzaki-Methode berechnete Auslenkungen um eine C-Leerstelle, Die Leerstelle wurde simuliert, indem die Bindungen zu den Nachbaratomen aufgebrochen wurden.  
(a= Gitterparameter)

gesetzt wurde. Danach würde die Nb-Nb-Wechselwirkung gegenüber der vorigen Rechnung verdoppelt. Der dritte Lauf wurde nur mit der Nb-C-Wechselwirkung durchgeführt. Bei allen drei Rechnungen ergaben sich Relaxationswerte, die ungefähr bei den Ergebnissen der Rechnung mit den richtigen Kraftkonstanten lagen. Aus diesen Untersuchungen läßt sich schließen, daß die starke Nb-C-Wechselwirkung die Ursache für das Auftreten von Verlagerungen ist, die von der Fehlstelle weg führen.

Die Verzerrungsfelder der Leerstellen bewirken Volumenänderungen des Kristalls und damit Änderungen des Gitterparameters als Funktion der Leerstellenkonzentration. Die relative Volumenänderung ist über die elastischen Konstanten mit dem sogenannten Dipoltensor, dem ersten Moment der Kanzaki-Kräfte, verknüpft /85/:

$$\frac{\Delta V}{V_c} = \frac{c}{V_c} \frac{1}{c_{11} + 2c_{12}} \sum_i P_i i i \quad (3.20)$$

$c$  = Leerstellenkonzentration

$V_c$  = Volumen der Elementarzelle

$c_{11}, c_{12}$  = elastische Konstanten

mit dem Dipoltensor:

$$P_{jk} = \sum_l R_k^l F_j^l; \quad (3.21)$$

$F^l$  = Kanzaki-Kraft auf das l-te Atom am Ort  $R^l$ .

Die elastischen Konstanten sind für NbC in /6/ angegeben:

$$c_{11} = 6.2 \cdot 10^{12} \text{ dyn/cm}^2$$

$$c_{12} = 2.0 \cdot 10^{12} \text{ dyn/cm}^2$$

Die Kanzaki-Kräfte, die sich aus dem Modell der fehlenden Bindungen für C-Leerstellen ergaben, waren:

| Nachbarschale | F/dyn                |
|---------------|----------------------|
| 1             | $1.35 \cdot 10^{-2}$ |
| 2             | $5.16 \cdot 10^{-5}$ |
| 3             | $1.61 \cdot 10^{-5}$ |
| 4             | $3.74 \cdot 10^{-4}$ |

Durch diese positiven Kanzaki-Kräfte ergaben sich positive Gitterparameteränderungen als Funktion der Leerstellenkonzentration, die im Widerspruch zu den gemessenen Gitterparameteränderungen stehen. Der Vergleich ist in Abb. 47 dargestellt.

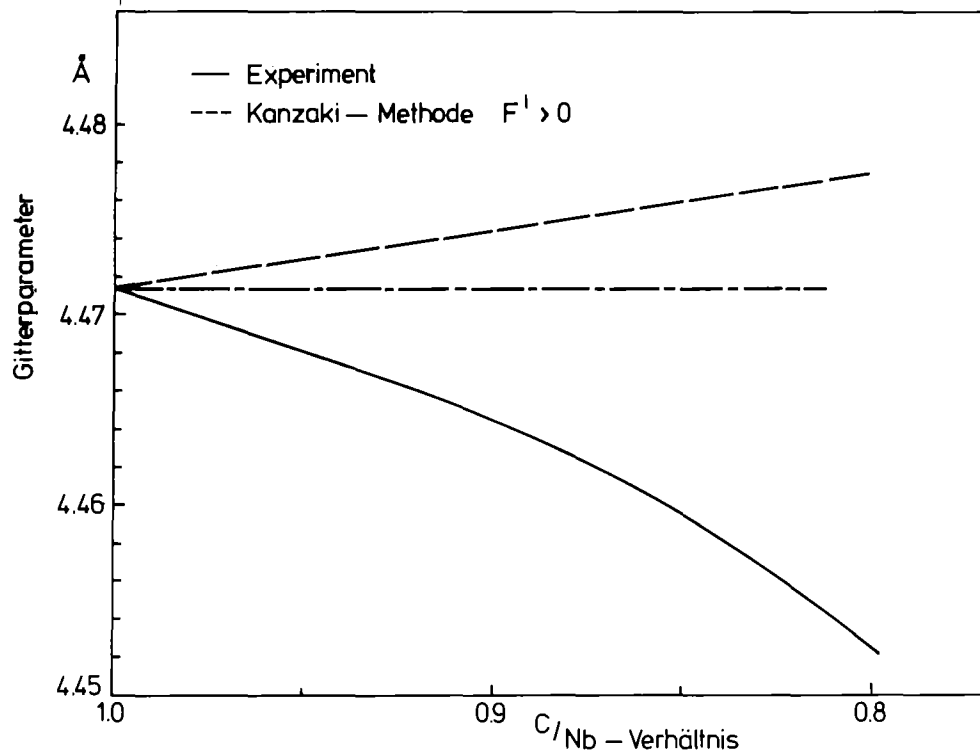


Abb. 47 Vergleich der gemessenen Gitterparameter mit den aus der Kanzaki-Methode unter der Annahme des Leerstellenmodells fehlender Bindungen bestimmten Gitterparametern.

#### Bestimmung der Kanzaki-Kräfte aus der Änderung des Gitterparameters als Funktion der Leerstellenkonzentration

Die Beziehung (3.20) stellt eine weitere Möglichkeit dar, die Kanzaki-Kräfte zu bestimmen, wenn man von der gemessenen Abhängigkeit des Gitterparameters von der Leerstellenkonzentration ausgeht. Um die Abnahme des Gitterparameters mit zunehmender Leerstellenkonzentration zu beschreiben, wurden die Kanzaki-Kräfte negativ angesetzt. Das Verhältnis der Kräfte der verschiedenen Schalen zueinander wurde entsprechend dem Verhältnis der Kräfte aus dem Modell fehlender Bindungen beibehalten. Die Kanzaki-Kräfte, die sich mit diesen Annahmen aus den Gitterparameteränderungen ergaben, waren:

| Nachbarschale | F/dyn                 |
|---------------|-----------------------|
| 1             | $-2.7 \cdot 10^{-2}$  |
| 2             | $-1.32 \cdot 10^{-4}$ |
| 3             | $-3.22 \cdot 10^{-5}$ |
| 4             | $-7.48 \cdot 10^{-4}$ |

Unter der Annahme dieser Kräfte wurde mit der Kanzaki-Methode das in Tabelle 10 dargestellte Verzerrungsfeld berechnet. Es ergaben sich Relaxationen, die bei fast allen Atomen in Richtung der Leerstelle zeigten. Relativ große Auslenkungen wiesen nur die 100-Nb-Nachbarn mit  $-0.12 \text{ \AA}$  und die 300-Nb-Nachbarn mit  $-0.03 \text{ \AA}$  auf.

C-Leerstellen

|             | Atomkoordinaten<br>in Einheiten<br>von $a/2$<br>$L_1 L_2 L_3$ | Auslenkungen<br>$\overset{\circ}{A}$ |           |           | $ \vec{\zeta}  \cdot R^2$<br>$\overset{\circ}{A} \cdot a^2 / 4$ |
|-------------|---|--------------------------------------|-----------|-----------|---|
|             |   | $\zeta_x$                            | $\zeta_y$ | $\zeta_z$ |   |
| Nb-Nachbarn | 100   | -0.1219                              | 0         | 0         | 0.055-  |
|             | 111   | 0.0051                               | 0.0051    | 0.0051    | 0.013   |
|             | 210   | -0.0035                              | -0.0002   | 0         | 0.008-  |
|             | 221   | -0.0038                              | -0.0038   |           |   |
|             | 300   | -0.0334                              | 0         | 0         | 0.135-  |
|             | 311   | -0.0027                              | -0.0004   | -0.0004   | 0.016-  |
|             | 320   | -0.0024                              | -0.0015   | 0         | 0.016-  |
|             | 322   | 0.0016                               | 0.0025    | 0.0025    | 0.038   |
|             | 410   | -0.0042                              | -0.0011   | 0         | 0.033-  |
|             | 421   | -0.0005                              | -0.0005   | 0         | 0.003-  |
| C-Nachbarn  | 110   | -0.0385                              | -0.0385   | 0         | 0.049-  |
|             | 200   | -0.0453                              | 0         | 0         | 0.081-  |
|             | 211   | 0.0081                               | 0.0070    | 0.0070    | 0.038   |
|             | 220   | 0.0057                               | 0.0057    | 0         | 0.029   |
|             | 310   | -0.0074                              | -0.0034   | 0         | 0.037-  |
|             | 222   | -0.0075                              | -0.0075   | -0.0075   | 0.045-  |
|             | 321   | -0.0052                              | -0.0054   | -0.0010   | 0.047-  |
|             | 400   | -0.0132                              | 0         | 0         | 0.094-  |
|             | 330   | 0.0004                               | 0.0004    | 0         | 0.002   |
|             | 411   | -0.0024                              | 0.0006    | 0.0006    | 0.011-  |

Tabelle 10 Mit Hilfe der Kanzaki-Methode berechnete Auslenkungen um eine C-Leerstelle. Die Kanzaki-Kräfte wurden aus der Änderung des Gitterparameters als Funktion der Leerstellenkonzentration berechnet. ( $a$ = Gitterparameter)

### 3.5.2 Monte-Carlo-Simulation und Vergleich mit dem Experiment

Die mit Hilfe der Kanzaki-Methode berechneten Verzerrungsfelder in der Umgebung einer C-Leerstelle wiesen nur 2 Nb-Nachbarn auf, die mit relativ großen Auslenkungen den Channeling-Effekt beeinflussen können: den 100- und den 300-Nb-Nachbarn. Da die berechneten Verzerrungsfelder nur für kleine Leerstellenkonzentrationen gelten, wurden die Defektmodelle für Konzentrationen von  $x = 0.98 - 0.96$  so aufgebaut, daß die 100- und 300-Nachbarn gemäß den in den Tabellen 9 und 10 angegebenen Relaxationen ausgelenkt wurden. Die Richtung der Relaxationen hat hierbei auf den Channeling-Prozess keinen Einfluß. Mit beiden Defektmodellen wurden Computersimulationsrechnungen durchgeführt, wobei als thermische Schwingungsamplituden die mit dem Doppelschalenmodell /6/ berechneten Werte eingesetzt wurden. Die berechneten Halbwertsbreiten  $\psi_{1/2}$  wurden mit den experimentellen Werten verglichen.

Die Ergebnisse für  $x = 0.98$  und  $0.96$  mit dem Verzerrungsfeld aus Tabelle 9 stimmten mit den experimentellen Halbwertsbreiten überein, die Werte der Auslenkungen sind in Abb. 48 ( $F^1 > 0$ ) dargestellt. Die Auslenkungen des Verzerrungsfeldes in Tabelle 10 mußten etwas reduziert werden, um Übereinstimmung mit den experimentellen Halbwertsbreiten zu bekommen. Die in Abb. 48 ( $F^1 < 0$ ) dargestellten Auslenkungen gelten für Halbwertsbreiten, die auf  $\pm 0.01^\circ$  mit den experimentellen Werten übereinstimmen.

Die in Abb. 48 eingezeichneten Fehlerbalken stellen die maximale Variation in der Auslenkung dar, bei der sich die durch die Simulation berechnete Halbwertsbreite nicht ändert.

Für C/Nb-Verhältnisse von 0.92 und 0.88 überlappen die 300-Nachbarn der verschiedenen Leerstellen. Deshalb wurden in diesem Konzentrationsbereich die Defektmodelle so abgeändert, daß nicht die 300-Nachbarn, sondern alle übrigen Nb-Nachbarn, im wesentlichen also 111 und 210 verlagert wurden, die nicht 100-Nachbarn einer anderen Leerstelle waren. Die Verhältnisse der Auslenkung des 100-Nachbarn zu der der übrigen Nachbarn wurden entsprechend den Verhältnissen der Auslenkungen der 100- und 300-Nachbarn aus den Tabellen 9 und 10 gewählt. Die absolute Größe der Auslenkungen wurde durch Vergleich der berechneten mit den gemessenen Halbwertsbreiten bestimmt. Für beide Defektmodelle ergaben sich Auslenkungen der 100-Nachbarn von etwa  $0.12 \text{ \AA}$ . In diesem Konzentrationsbereich ist die Schwankungsbreite der Auslenkungen, bei denen die zugehörigen Halbwertsbreiten innerhalb  $\pm 0.01^\circ$  mit dem Experiment übereinstimmen, weitaus geringer als bei  $x = 0.98 - 0.96$ .



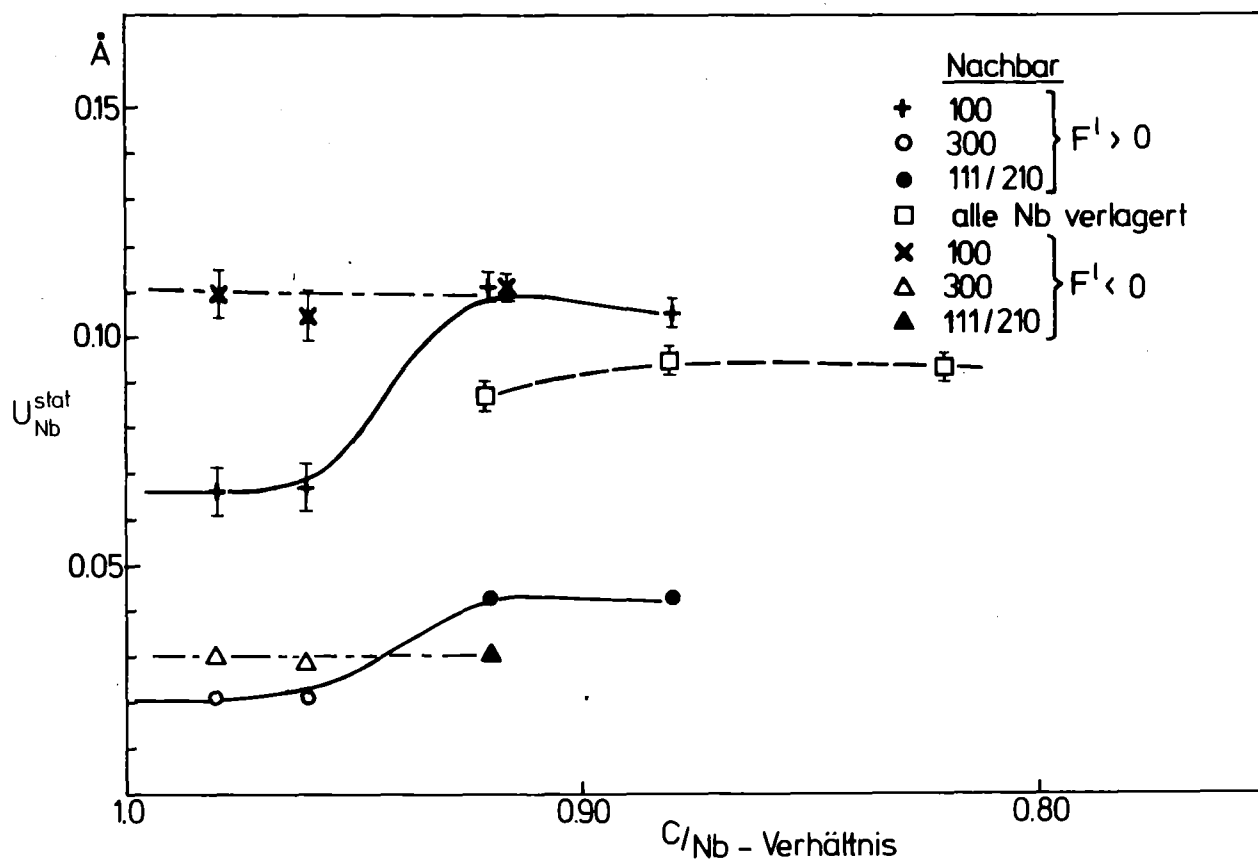


Abb. 48 Statische Auslenkungen der 100-, 300-, bzw. 111- und 210-Nb-Nachbarn einer C-Leerstelle für verschiedene Defektmodelle. Die Werte für  $F^1 > 0$  stellen Auslenkungen dar, die von der Leerstelle weg zeigen, die Werte für  $F^1 < 0$  stellen Auslenkungen dar, die zur Leerstelle hinzeigen. Ebenfalls eingezeichnet sind Werte für das Defektmodell, daß alle Nb-Atome um einen festen Betrag verlagert sind (□).

Das Defektmodell für die Kanzaki-Kräfte, die über das Modell der fehlenden Bindungen bestimmt wurden, lieferte Auslenkungen der 100-Nb-Nachbarn, die von 0.06 Å bei  $x = 0.98 - 0.96$  auf 0.12 Å bei  $x = 0.92 - 0.88$  anstiegen. Das Defektmodell für die Kanzaki-Kräfte, die aus der Gitterparameteränderung bestimmt wurden, lieferte Auslenkungen, die im Bereich  $x = 0.98 - 0.88$  bei 0.11 - 0.12 Å lagen.

Das konstante Auslenkungsverhältnis der 100-Nb-Nachbarn und aller übrigen Nb-Nachbarn läßt sich vermutlich bei hohen Leerstellenkonzentrationen ( $x < 0.92$ ) nicht mehr aufrechterhalten. Deshalb wurden im Konzentrationsbereich  $x = 0.92 - 0.82$  Simulationsrechnungen mit einem Defektmodell durchgeführt, das von der Annahme, daß alle Nb-Nachbarn um einen festen Betrag verlagert sind, ausgeht. Die Ergebnisse für die hierbei bestimmten Auslenkungen sind als offene Quadrate in Abb. 48 eingetragen. Für  $x = 0.92$  ergaben sich Auslenkungen der Nb-Atome von 0.09 Å. Mit zuneh-

mender C-Leerstellenzahl nahmen die Auslenkungen bis zu einem Wert von 0.095 Å leicht zu.

### 3.6 Zusammenfassende Diskussion

In der vorliegenden Arbeit wurde versucht, durch Channeling-Messungen an  $\text{NbC}_x$ -Einkristallen im Temperaturbereich von 295 K - 4 K das Verzerrungsfeld in der Umgebung einer C-Leerstelle als Funktion der C-Leerstellenkonzentration auszumessen. Der Vergleich der gemessenen Halbwertsbreiten von winkelabhängigen Ausbeutekurven mit den Halbwertsbreiten aus Computer-Simulationsrechnungen lieferte mittlere Auslenkungen (Summe aus dynamischen und statischen Auslenkungen) der Nb- und der C-Atome als Funktion der Zusammensetzung der  $\text{NbC}_x$ -Kristalle.

Die mittleren quadratischen Auslenkungen der Nb-Atome bei 295 K nahmen im Bereich  $x = 0.98 - 0.90$  von  $2.5 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^2$  auf  $6.5 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^2$  zu und blieben im Bereich  $x = 0.90 - 0.82$  konstant. Bei 78 K nahmen die Auslenkungen im Bereich  $x = 0.98 - 0.90$  von  $1.5 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^2$  auf  $4.5 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^2$  zu und blieben im Bereich  $x = 0.90 - 0.82$  ebenfalls konstant. Im Temperaturbereich 78 K - 4 K war keine weitere Abnahme der Auslenkungen festzustellen.

Die mittleren quadratischen Auslenkungen der C-Atome zeigten innerhalb der Schwankungsbreiten keine Abhängigkeit von der C-Leerstellenkonzentration. Sie betragen bei 295 K  $2.5 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^2$  und bei 4 K  $1.5 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^2$ .

Die Auslenkungswerte für faststöchiometrisches  $\text{NbC}_{0.98}$  wurden mit mittleren Auslenkungen verglichen, die mit Röntgen- /12, 14/ und Neutronenbeugung /13/ an polykristallinem  $\text{NbC}_{0.98}$  gemessen wurden. Der Vergleich mit den aus dem Doppelschalenmodell /6/ berechneten Werten (DSM), die in Tabelle 11 dargestellt sind, zeigt, daß bei  $x = 0.98$  praktisch nur dynamische Auslenkungen vorhanden sind. Die einzelnen Werte der Nb-Auslenkungen zeigen Abweichungen von maximal 10%, die der C-Atome von maximal 20%.

Steht außer den Ergebnissen der Channeling-Experimente keine weitere Information zur Verfügung, so lassen sich aus den mittleren Auslenkungen der Atome nur unter ganz bestimmten Annahmen mittlere statische Auslenkungen bestimmen. Eine Möglichkeit besteht darin, anzunehmen, daß bei der kleinsten Leerstellenkonzentration, für die Meßergebnisse vorliegen (in der vorliegenden Arbeit also für  $x = 0.98$ ), nur dynamische Auslenkungen vorhanden sind. Eine weitere Annahme ist, daß sich die dynamischen Amplituden als Funktion der Leerstellenkonzentration nicht ändern. In diesem Fall lassen sich mittlere statische Auslenkungen durch Subtraktion der dynamischen Auslenkungen von den mittleren Auslenkungen berechnen:

$$\langle u_{\text{statisch}}^2 \rangle = \langle u_{\text{gesamt}}^2 \rangle - \langle u_{\text{dynamisch}}^2 \rangle.$$

| Referenz   | $u_{\text{Nb}}/\text{\AA}$ |       | $u_{\text{C}}/\text{\AA}$ |       |
|------------|----------------------------|-------|---------------------------|-------|
|            | 295 K                      | 110 K | 295 K                     | 110 K |
| DSM        | 0.051                      | 0.036 | 0.058                     | 0.052 |
| /12/       | 0.046                      | 0.031 | 0.056                     | 0.062 |
| /13/       | 0.047                      |       |                           |       |
| /14/       | 0.050                      |       | 0.059                     |       |
| Channeling | 0.052                      |       | 0.050                     |       |

Tabelle 11 Dynamische Auslenkungen der Nb- und der C-Atome in  $\text{NbC}_{0.98}$  verglichen mit Literaturwerten von Röntgen-/12, 14/ und Neutronenbeugungsexperimenten /13/.

Bei  $\text{NbC}_x$  waren diese Annahmen nicht nötig, da hierfür die dynamischen Auslenkungen mit Hilfe des Doppelschalenmodells /6/ berechnet werden können. Die berechneten dynamischen Auslenkungen stimmen mit den Ergebnissen der Phononenzustandsdichte aus Neutronenstreumessungen /82/ überein. Diese Messungen zeigten auch, daß sich die dynamischen Auslenkungen im Konzentrationsbereich  $x = 0.98 - 0.76$  nicht ändern.

Die Subtraktion der berechneten dynamischen Auslenkungen von den mittleren Auslenkungen der Nb-Atome lieferte mittlere statische Auslenkungen der Nb-Atome, die im Bereich  $x = 0.98 - 0.90$  von  $0.015 \text{\AA}$  auf  $0.06 \text{\AA}$  zunahmen und im Bereich  $x = 0.90 - 0.82$  konstant blieben.

Bei hohen Leerstellenkonzentrationen ( $x < 0.90$ ) zeigte sich ein Sättigungseffekt in der statischen Auslenkung der Nb-Atome. Dies kann dadurch erklärt werden, daß in diesem Konzentrationsbereich alle Nb-Atome Nachbar einer C-Leerstelle sind.

Die durch Channeling-Messungen bestimmten mittleren Auslenkungen der C-Atome stimmten innerhalb der Schwankungsbreiten mit den berechneten dynamischen Auslenkungen überein. Da die Schwankungsbreite bei der Bestimmung der Auslenkungen der C-Atome auf Grund der schlechten Auflösung sehr groß ist, kann daraus nur geschlossen werden, daß die mittlere statische Auslenkung der C-Atome kleiner als  $0.015 \text{\AA}$  ist. Das Modell der mittleren statischen Auslenkungen wird in dieser Diskussion als Defektmodell I bezeichnet.

Mittlere statische Auslenkungen wurden mit Neutronen- und Röntgenbeugung auch an anderen unterstöchiometrischen Hartstoffen wie TiC, ZrC und ThC bestimmt. Diese Ergebnisse lassen sich deshalb zum Vergleich mit den Channeling-Ergebnissen an NbC heranziehen. An TiC und ZrC wurden mit Neutronenbeugungsexperimenten statische Auslenkungen der Metallatome als Funktion der Zusammensetzung gemessen /13/. Bei beiden Substanzen stiegen die statischen Auslenkungen als Funktion der Leerstellenkonzentration auf etwa  $0.07 \text{ \AA}$  bei  $C/Me = 0.65$  an. Diese Ergebnisse stimmen mit den durch die Channeling-Messungen bestimmten Werten überein. An  $\text{ThC}_{0.77}$  wurden Untersuchungen mit Röntgenbeugung durchgeführt /11/. Hieraus ergaben sich Auslenkungen der Th-Atome von  $0.08 \text{ \AA}$  und der C-Atome von  $\leq 0.05 \text{ \AA}$ . Diese Werte sind etwa gleich groß wie die Ergebnisse der Channeling-Experimente.

Die Annahme, daß im Bereich geringer Leerstellenkonzentrationen alle Nb-Atome mit einer mittleren Auslenkung normalverteilt verlagert sind, ist sicher nicht realistisch. Man benötigt jedoch zusätzliche Angaben über die Struktur eines Einzeldefektes, um aus den im Channeling-Experiment gemessenen Halbwertsbreiten quantitative Aussagen über die Relaxation der Leerstellenumgebung zu machen.

Es gibt verschiedene Hinweise experimenteller und theoretischer Art über die Richtung und Größe der Relaxationen von Nb- und C-Atomen in unterstöchiometrischen  $\text{NbC}_x$ -Einkristallen. Diese werden im folgenden kurz diskutiert.

Einen Hinweis über die Richtung der Verlagerungen der Nb-Atome in der Umgebung einer C-Leerstelle gibt die Änderung des Gitterparameters als Funktion der Leerstellenkonzentration. Die Abnahme des Gitterparameters mit zunehmender Leerstellenzahl bedeutet eine Kontraktion des Leerstellenvolumens, was einer Verlagerung der nächsten Leerstellennachbarn in Richtung der Leerstelle entspricht.

Eine Berechnung des Verzerrungsfeldes um eine C-Leerstelle, die Richtung und Größe der Auslenkungen liefert, ist mit Hilfe der Kanzaki-Methode /84/ möglich, sofern die für den Defekt charakteristischen Kanzaki-Kräfte bekannt sind. Eine Möglichkeit zur Berechnung dieser Kräfte stellt die Annahme eines Defektmodells dar, bei dem alle Bindungen des Leerstellenatoms zu den Nachbaratomen fehlen. Die Rechnung mit den so bestimmten Kräften liefert eine Expansion des Leerstellenvolumens, nämlich im wesentlichen Relaxationen der 100-Nb-Nachbarn um  $0.06 \text{ \AA}$  und der 100-Nb-Nachbarn um  $0.02 \text{ \AA}$  in Richtung von der Leerstelle weg (Dieses Verzerrungsfeld wird später im Defektmodell II realisiert).

Eine andere Möglichkeit zur Berechnung der Kanzaki-Kräfte stellt die Bestimmung über die Änderung des Gitterparameters als Funktion der Leerstellenkonzentration dar. Hierbei ergibt sich eine Kontraktion des Leerstellenvolumens, nämlich im wesentlichen Relaxationen der 100-Nb-Nachbarn um  $-0.12 \text{ \AA}$  und der 300-Nb-Nachbarn um  $-0.03 \text{ \AA}$  in Richtung zur Leerstelle hin (Dieses Verzerrungsfeld wird später im Defektmodell III realisiert).

Experimentelle Hinweise über die Richtung und Größe der Relaxationen in einer C-Leerstellenumgebung lieferten Messungen mit diffuser Neutronenstreuung an stark unterstöchiometrischem  $\text{NbC}_{0.73}$  /11/. Diese Experimente ergaben eine Kontraktion des Nb-C-Abstandes nächster Nachbarn um  $0.03 \text{ \AA}$ . Dies entspricht einer Expansion des Leerstellenvolumens. Die  $\text{NbC}_{0.73}$ -Einkristalle wurden jedoch auf eine etwas andere Weise hergestellt als die für diese Arbeit verwendeten Kristalle. Die in /11/ angegebene lange Abkühlzeit von etwa 65 h von Schmelztemperatur bis  $400^\circ\text{C}$  begünstigt die Einstellung der Nahordnung der Leerstellen, die auch tatsächlich beobachtet wurde. Eine Ordnung der Leerstellen bewirkt zugleich eine Verringerung der Relaxationen. Die Ergebnisse der Neutronenstreuemessungen können also nicht unbedingt zum Vergleich mit den in dieser Arbeit dargestellten Ergebnissen herangezogen werden. Außerdem weist die in /11/ verwendete Probe  $\text{NbC}_{0.73}$  eine sehr hohe Leerstellenkonzentration auf, während in dieser Arbeit der Bereich  $x = 0.98 - 0.82$  untersucht wurde.

Quantitative Aussagen aus den Channeling-Ergebnissen über die in der Umgebung einer C-Leerstelle im Konzentrationsbereich  $x = 0.98 - 0.82$  vorhandenen Relaxationen der Nb-Atome lieferten zwei Einzeldefektmodelle (als II und III bezeichnet), die an die experimentellen Halbwertsbreiten angepaßt wurden.

Bei Defektmodell II wurden im Bereich  $x = 0.98 - 0.96$  die mit der Kanzaki-Methode über das Modell fehlender Bindungen bestimmten Auslenkungen der 100- und 300-Nb-Nachbarn, also Relaxationen um  $0.06 \text{ \AA}$ , bzw.  $0.02 \text{ \AA}$  in Richtung von der Leerstelle weg, eingesetzt. Im Konzentrationsbereich  $x = 0.92 - 0.82$  wurden wegen der Überlappung der Verzerrungsfelder der verschiedenen Leerstellen alle Nb-Atome um einen festen Betrag von  $0.095 \text{ \AA}$  ausgelenkt. Die Richtungen dieser Auslenkungen wurden statistisch ausgewählt.

Bei Defektmodell III wurden im Bereich  $x = 0.98 - 0.96$  die mit der Kanzaki-Rechnung über die Anpassung der Kanzaki-Kräfte an die Gitterparameteränderung als Funktion der Leerstellenkonzentration bestimmten Auslenkun-

gen, also Verlagerungen der 100- und 300-Nb-Nachbarn in Richtung zu der Leerstelle hin, eingesetzt. Durch Anpassung der berechneten Halbwertsbreiten an die gemessenen Werte wurden die Größen der Auslenkungen auf  $-0.11 \text{ \AA}$  für den 100-Nachbarn und auf  $-0.03 \text{ \AA}$  für den 300-Nachbarn reduziert. Im Bereich  $x = 0.92 - 0.82$  stimmte das Defektmodell III mit dem Modell II überein.

Simulationsrechnungen mit diesen Defektmodellen ergaben Halbwertsbreiten, die für den Konzentrationsbereich  $x = 0.98 - 0.82$  mit den gemessenen Halbwertsbreiten auf  $\pm 0.01^\circ$  übereinstimmten. Die Richtung der Auslenkungen hatte in der Simulation keine Auswirkung auf den Channeling-Prozess.

Die Auslenkungswerte der 100-Nb-Nachbarn für die verschiedenen Defektmodelle sind in Abb. 49 dargestellt. Als Vergleich sind die mittleren statischen Auslenkungen des Defektmodells I eingezeichnet. Durch Multiplikation mit  $\sqrt{3}$  wurde auf die dreidimensionale Auslenkung umgerechnet. Die eingezeichneten Fehlerbalken stellen die maximale Variation in der Auslenkung dar, bei der sich die durch die Simulation berechnete Halbwertsbreite nicht ändert.

Die Übereinstimmung der mit den Defektmodellen II und III berechneten Halbwertsbreiten im Bereich geringer Leerstellenkonzentration bei  $x = 0.98$  trotz sehr verschiedener Auslenkungen zeigt, daß der Channeling-Effekt in diesem Konzentrationsbereich nicht sehr empfindlich reagiert und der Vergleich von theoretischen und experimentellen Halbwertsbreiten keine eindeutigen Resultate liefert. Bei zunehmender Leerstellenkonzentration nimmt die Empfindlichkeit der Methode stark zu.

Defektmodell II liefert Auslenkungen der 100-Nb-Nachbarn einer C-Leerstelle, die von  $0.06 \text{ \AA}$  bei  $x = 0.98 - 0.96$  auf  $0.095 \text{ \AA}$  bei  $x = 0.92 - 0.82$  anwachsen. Defektmodell III liefert Auslenkungen der 100-Nb-Nachbarn, die von  $0.11 \text{ \AA}$  bei  $x = 0.98$  auf  $0.095 \text{ \AA}$  bei  $x = 0.92 - 0.82$  abfallen.

Im Bereich hoher C-Leerstellenkonzentrationen ( $x = 0.92 - 0.82$ ) ergeben sich leichte Diskrepanzen zwischen den Auslenkungen der Nb-Atome für das Defektmodell I und für die Modelle II und III. Das Defektmodell I mit der Annahme, daß alle Nb-Atome gaußverteilt verlagert sind, erfordert eine um 12% größere mittlere statische Auslenkung als das Defektmodell II mit der Annahme, daß alle Nb-Atome um einen festen Betrag verlagert sind. Dies wird dadurch erklärt, daß die große Zahl der Atome, die bei der Gauß-

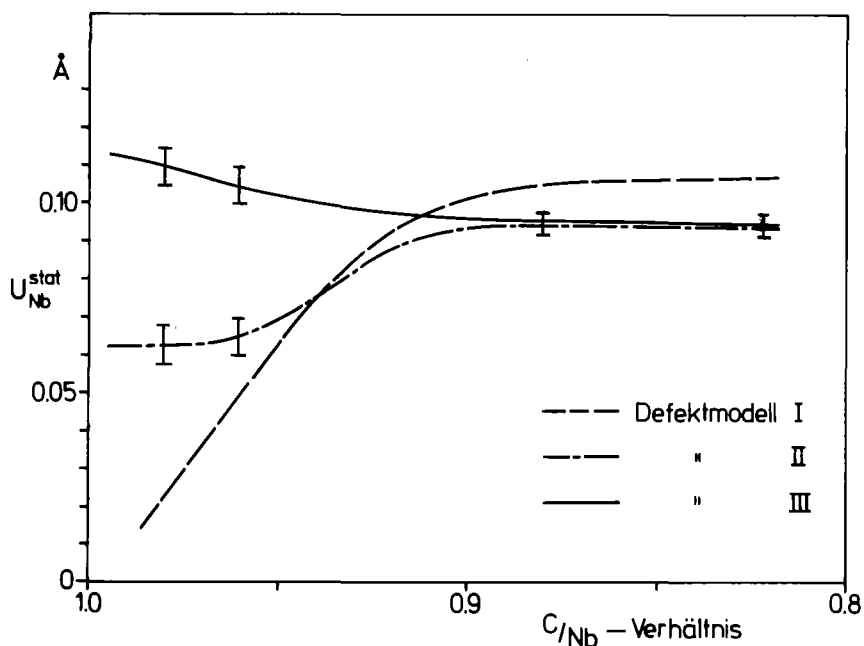


Abb. 49 Verlagerungen der Nb-Atome für verschiedene Defektmodelle. Modell I stellt mittlere statische Auslenkungen dar. Modell II und III umfassen im Bereich  $x = 0.98 - 0.96$  die mit der Kanzaki-Methode berechneten Verzerrungsfelder aus Tabelle 9 und 10 (dargestellt sind die Auslenkungen der 100-Nachbarn); im Bereich  $x = 0.92 - 0.82$  sind alle Nb-Atome um einen festen Betrag verlagert (hier stimmen Modell II und III überein).

verteilung nur sehr kleine Auslenkungen aufweisen, zum Dechanneling-Effekt sehr wenig beiträgt. Beim Modell II oder III sind dagegen alle Atome mit derselben Auslenkung verlagert und tragen zum Dechanneling bei.

Der Vergleich der Ergebnisse von Computer-Simulationsrechnungen mit experimentellen Channeling-Ergebnissen für die  $NbC_x$ -Einkristalle zeigte, daß die Defektmodelle II und III konsistent mit den gemessenen Halbwertsbreiten sind. Durch diese Methode jedoch konnte nicht entschieden werden, ob die Relaxationen der Nb-Atome in der Umgebung einer C-Leerstelle in Richtung zur Leerstelle hin oder von ihr weg erfolgen. Auf Grund der Konsistenz mit der Abnahme des Gitterparameters mit zunehmender Leerstellenkonzentration wird jedoch das Defektmodell III, welches eine Kontraktion des Leerstellenvolumens darstellt, als das richtige Modell angesehen.

Die vorliegende Arbeit zeigte, daß aus Channeling-Untersuchungen informative Aussagen über die Defektstruktur in  $NbC_x$ -Einkristallen als Funktion der Leerstellenkonzentration getroffen werden können. Der Vorteil des



Channeling-Experiments in Verbindung mit der Computer-Simulation ist, daß sich nicht nur mittlere statische Auslenkungen der Atome bestimmen lassen, die mit den Ergebnissen von Beugungsmethoden verglichen werden können, sondern daß auch realistische Defektmodelle zur Analyse verwendet werden können.

## ANHANG

### I Beschreibung des Monte-Carlo-Programms

Das in dieser Arbeit verwendete Monte-Carlo-Simulationsprogramm ist für kubische Elementarzellen und für Kristallsysteme aus maximal zwei Komponenten entwickelt worden. Im folgenden sollen die wichtigsten Programmabläufe beschrieben werden.

Nach Eingabe aller für das Target spezifischen Daten, was in MAIN geschieht, wird die Ablaufkontrolle an XQT übergeben. Danach werden mit dem Unterprogramm STRUCT die für die Struktur spezifischen Daten aus einer Programmbibliothek eingelesen. Dazu gehören die speziellen Punktlagen sowie die Abmessungen der Elementarzelle und die Verteilung der beiden Targetatomsorten auf die einzelnen Punktlagen.

Die Bereitstellung der Anfangswerte geschieht in dem Unterprogramm START. Es werden die Eintrittskordinaten sowie die Eintrittswinkel der Teilchen in die erste Atomebene ausgerechnet, wozu auch unter Umständen eine entsprechende Verteilung der Eintrittswinkel nach Durchlaufen einer amorphen Oberflächenschicht gehört. Es werden die Tabellen für die Berechnung von Streuwinkeln und elektronischem Energieverlust bereitgestellt.

XQT rechnet dann weitere Tabellen für Zufallszahlen, die im weiteren Ablauf benötigt werden; es werden Tabellen für normalverteilte Zufallszahlen und gleichverteilte Zahlen je nach gewähltem Defektmodell berechnet.

DAMPR und DISTFU lesen eine Defekttiefenverteilung von Magnetplatte ein. Danach erfolgt die Ausgabe von Kontrollwerten als Druckausgabe. Die Berechnung der Teilchenbahnen erfolgt für alle Teilchen von einer Einheitszelle zur nächsten.

Die Fluß- und Energieverteilungen werden über eine vorgegebene Zahl von Einheitszellen gemittelt und anschließend auf Band ausgegeben. Die Berechnung des Bahnverlaufs über eine Einheitszelle für ein Teilchen erfolgt durch das Unterprogramm SCATT. Hier werden die tabellierten Zufallszahlen zur Festlegung von thermischen Auslenkungen und statischen Verlagerungen benutzt, wobei eine gleichverteilte Zufallszahl den Startpunkt für eine Reihe normalverteilter Zahlen angibt. So läßt sich bei der Berechnung von thermischen Auslenkungen Rechenzeit sparen. Streuwinkel und Energieverlust werden ebenfalls aus Zeitersparnisgründen aus Tabellen gelesen, wobei der Index mit Hilfe des Stoßparameters berechnet wird.

Mit den Unterprogrammen SIGMA und COTRAN werden Rückstreu- und Kernreaktionswahrscheinlichkeiten berechnet, die dann mit Tiefen- und Energieangabe zwischengespeichert werden. Nach Beendigung der Berechnung der Teilchenbahnen wird in BCKSCT das Rückstreupektrum aus den abgespeicherten Daten gewonnen. Es wird mit Hilfe von EPA und EPB die Austrittsenergie für jedes Element der Rückstreu- und Kernreaktionswahrscheinlichkeit bestimmt.

Nach Aufsummation über alle vorkommenden Tiefen und Energien erhält man ein Spektrum, das mit experimentellen Spektren verglichen werden kann. Hinterher erfolgt die Druckausgabe der Rückstreuwahrscheinlichkeit, eine Ausgabe der Spektren und winkelabhängigen Ausbeutekurven als Lineplot oder bei Bedarf als Plot. Eine Übersicht über die kurz vorgestellten Routinen und ihr Zusammenwirken gibt Abb. 50.

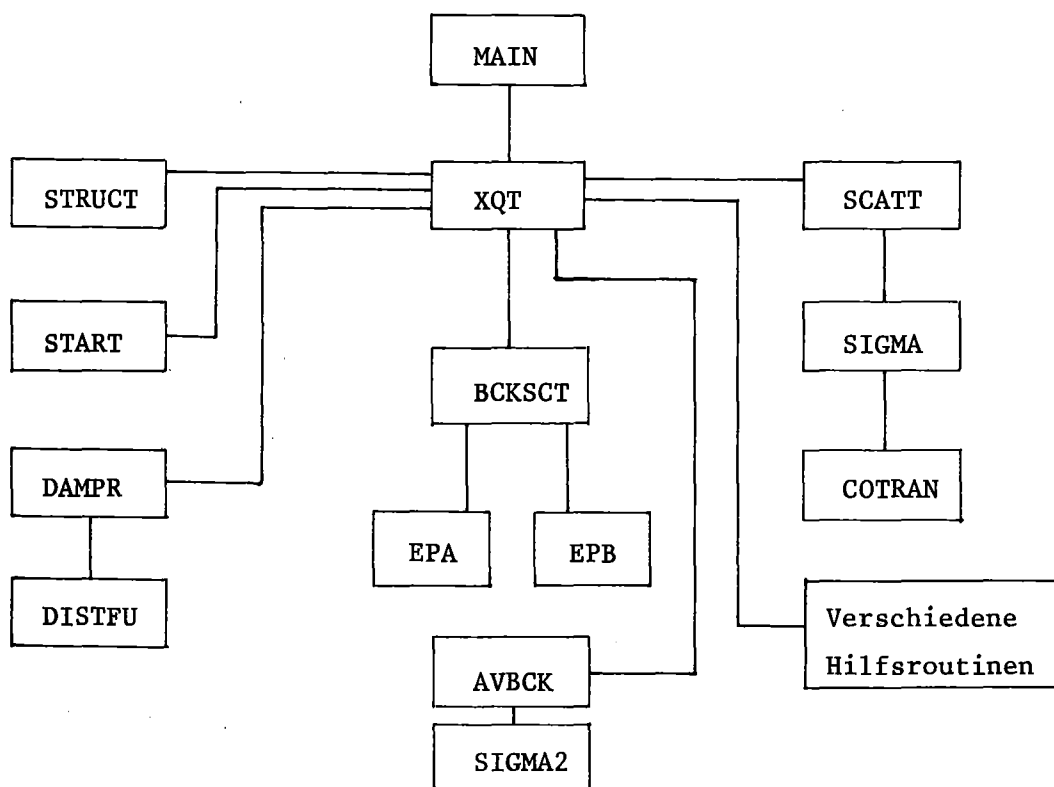


Abb. 50 Übersicht über die einzelnen Routinen des Monte-Carlo-Simulationsprogramms

## II Auswirkung von Mosaikverteilungen auf winkelabhängige Ausbeutekurven

Kristalle bestehen oft aus einzelnen Körnern, die nicht alle parallel ausgerichtet sind, sondern um eine Vorzugsrichtung mit kleinen Kippwinkeln von einigen hundertstel Grad bis zu einigen Grad verteilt sind. Ist der Strahldurchmesser so groß, daß viele Körner getroffen werden, so hat diese sogenannte Mosaikverteilung Auswirkungen auf die Form von winkelabhängigen Ausbeutekurven, wie schon in früheren Arbeiten /79/ kurz diskutiert wurde.

Die minimale Ausbeute  $\chi_{\min}$  steigt mit wachsender Mosaikverteilung an, während der Einfluß auf die Halbwertsbreite nicht unmittelbar bestimmt werden kann. Aus diesem Grunde wurde ein Modell, das ursprünglich dazu diente, aus Messungen der minimalen Ausbeute an polykristallinen Schichten die Breite der Mosaikverteilung zu bestimmen /88/, weiterentwickelt, um damit die durch Mosaikverteilungen geänderte Ausbeutekurve zu berechnen.

Die Annahmen für das Verfahren sind die folgenden /88/:

- (i) die Korngröße ist groß genug, daß der Channeling-Effekt in jedem Kristallit auftreten kann,
- (ii) die Körner sind so orientiert, daß eine zylindersymmetrische Verteilung von Orientierungen um den Mittelwert existiert,
- (iii) die winkelabhängige Ausbeute ist ebenfalls zylindersymmetrisch,
- (iv) die Körner sollen annähernd dieselbe Ausdehnung haben.

Die winkelabhängigen Ausbeutekurven eines Kristalls mit einer Mosaikbreite  $\Delta\psi$  ergibt sich nun aus einer Faltung der Werte für die winkelabhängige Ausbeute eines perfekten Kristalls mit einer Gauß-Funktion der Standardabweichung  $\Delta\psi$ . In Abb. 5f sind durch Simulation berechnete Ausbeutekurven, die mit verschiedenen Mosaikbreiten gefaltet wurden, aufgetragen, wobei eine experimentelle Kurve (+) als Vergleich mit eingezeichnet wurde. Wie man sieht, wird mit zunehmender Mosaikbreite die ursprüngliche Form immer mehr ausgeschmiert, wobei bei noch größeren  $\Delta\psi$ -Werten sowohl  $\chi_{\min}$  stark ansteigt, als auch die Halbwertsbreite zunimmt. Bei den eingezeichneten  $\Delta\psi$ -Werten bleibt die Halbwertsbreite konstant. Erst ab einer Mosaikbreite von  $\sim 1^\circ$  beginnt eine Verbreiterung der ganzen Ausbeutekurve und eine Zunahme der Halbwertsbreite von  $\sim 0.2^\circ$ . Man sieht aber an diesen Kurven auch sehr deutlich, daß bereits eine Mosaikbreite des Kristalls  $>0.1^\circ$  an der leichten Verschmierung der Kurven festzustellen ist. Daraus läßt sich umgekehrt für die gemessenen NbC-Kristalle eine obere Grenze der Mosaikbreite von  $0.1^\circ$  angeben, da beim Vergleich der gerechneten mit den gemessenen winkelabhängigen Ausbeutekurven

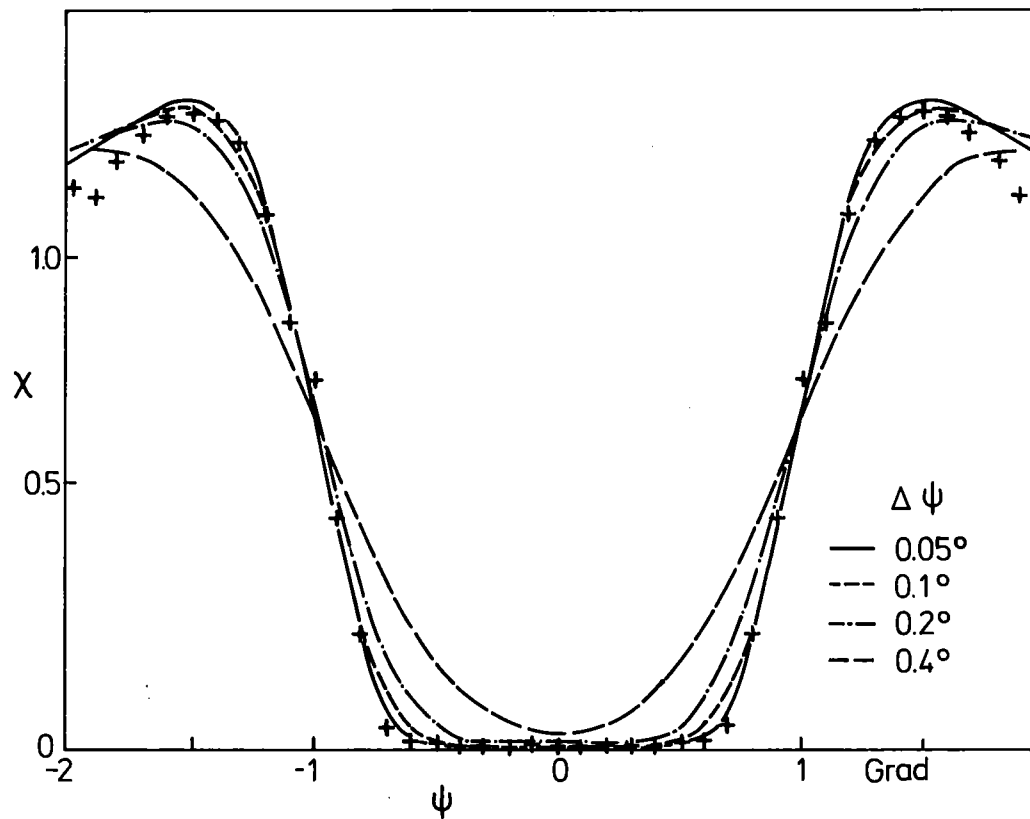


Abb. 51 Mit verschiedenen Mosaikbreiten gefaltete theoretische Ausbeutekurven. Als Vergleich wurde eine experimentelle Kurve (+) eingezeichnet.

eine solch große Diskrepanz wie zwischen der mit  $0.2^\circ$  gerechneten Kurve und den experimentellen Werten nie beobachtet wurde.

### III Berechnung der dynamischen Matrix für die NaCl-Struktur

Zur Berechnung des Verzerrungsfeldes mit Hilfe der Kanzaki-Methode ist die Kenntnis der dynamischen Matrix, wie sie in der Theorie der Gitterdynamik /89/ gebraucht wird, notwendig. Die dynamische Matrix ist eine  $3n \times 3n$ -Matrix, wobei  $n$  die Anzahl der Atome pro Elementarzelle ist. Für NaCl mit NaCl-Struktur erhält man also eine  $6 \times 6$ -Matrix.

Ein Element der dynamischen Matrix ist gegeben durch:

$$V_{\alpha\alpha'}(kk'|\vec{q}) = \sum_l \phi_{\alpha\alpha'} \begin{pmatrix} k & k' \\ 0 & l' \end{pmatrix} \cdot \exp\{i\vec{q}(\vec{r}(k'l') - \vec{r}(k0))\} \quad (\text{III.1})$$

$\alpha, \alpha'$  bezeichnen die 3 Raumrichtungen,  $(k0)$  bezeichnet das  $k$ -te Atom in der 0-ten Elementarzelle, entsprechend  $(k'l')$  das  $k'$ -te Atom in der  $l'$ -ten Elementarzelle. Summiert wird über alle  $l$  Elementarzellen des Kristalls.  $\phi_{\alpha\alpha'} \begin{pmatrix} k & k' \\ 0 & l' \end{pmatrix}$  bezeichnet die Kraftkonstantenmatrix zwischen dem Atom  $(k0)$  und  $(kl)$ .  $\vec{r}(k0)$ ,  $\vec{r}(k'l')$  sind die entsprechenden Ortskoordinaten.

In der Praxis wird nicht über die Atome aller Elementarzellen summiert, sondern nur über die Anzahl von Nachbarschalen, deren Wechselwirkung noch wesentlich beiträgt. Die Kraftkonstantenmatrizen in allgemeinen Tensorkräften sind gegeben durch:

$$\phi = \begin{pmatrix} \alpha_1 & \beta_3 & \beta_2 \\ \beta_3 & \alpha_2 & \beta_1 \\ \beta_2 & \beta_1 & \alpha_3 \end{pmatrix} \quad (\text{III.2})$$

Pro Nachbarschale braucht man in der allgemeinen Form also 6 Parameter. Bei axialen Kräften werden nur 2 Parameter pro Schale benötigt:

$$A = \frac{\partial^2 \phi}{\partial r^2} \quad (\text{III.3})$$

$$B = \frac{1}{r} \frac{\partial \phi}{\partial r}$$

wobei  $\phi$  das interatomare Wechselwirkungspotential darstellt.

Für die NaCl-Struktur vom Typ AB sind in der Tabelle 12 die

Tensorkraftparameter dargestellt /90/, die ungleich Null sind und der Zusammenhang zwischen den Tensorkräften und den axialen Kräften aufgezeigt, so daß anhand dieser Tabelle sowie bei Kenntnis der Kraftkonstanten die Berechnung der dynamischen Matrix sofort möglich ist.

| Nachbarschale<br>Typ der WW | Koordinaten<br>in a/2 | Kraftkonstanten-<br>matrix                                     | Zusammenhang zwischen<br>Tensorkräften und<br>axialsymm. Kräften                      |
|-----------------------------|-----------------------|--|---|
| 1<br>A-B                    | 1 0 0                 | $\alpha_1$<br>$\alpha_2$<br>$\alpha_3$                         | $\alpha_1=A$<br>$\alpha_2=B$  |
| 2<br>A-A<br>B-B             | 1 1 0                 | $\alpha_1 \beta_3$<br>$\alpha_1$<br>$\alpha_3$                 | $\alpha_1=0.5(A+B)$<br>$\alpha_3=B$<br>$\beta_3=0.5(A-B)$                             |
| 3<br>A-B                    | 1 1 1                 | $\alpha_1 \beta_1 \beta_1$<br>$\alpha_1 \beta_1$<br>$\alpha_1$ | $\alpha_1=(A+2B)/3$<br>$\beta_1=(A-B)/3$  |
| 4<br>A-A<br>B-B             | 2 0 0                 | $\alpha_1$<br>$\alpha_2$<br>$\alpha_2$                         | $\alpha_1=A$<br>$\alpha_2=B$  |
| 5<br>A-B                    | 2 1 0                 | $\alpha_1 \beta_3$<br>$\alpha_2$<br>$\alpha_3$                 | $\alpha_1=0.8A+0.2B$<br>$\alpha_2=0.2A+0.8B$<br>$\alpha_3=B$<br>$\beta_3=0.4(A-B)$    |
| 6<br>A-A<br>B-B             | 2 1 1                 | $\alpha_1 \beta_2 \beta_2$<br>$\alpha_2 \beta_1$<br>$\alpha_2$ | $\alpha_1=(2A+B)/3$<br>$\alpha_2=(A+5B)/6$<br>$\beta_1=(A-B)/6$<br>$\beta_2=2\beta_1$ |
| 7<br>A-A<br>B-B             | 2 2 0                 | $\alpha_1 \beta_3$<br>$\alpha_1$<br>$\alpha_3$                 | $\alpha_1=0.5(A+B)$<br>$\alpha_3=B$<br>$\beta_3=0.5(A-B)$                             |

Tabelle 12 Kraftkonstantenmatrizen eines Tensor-Kräfte-Born-von-Kärman-Modells für die NaCl-Struktur (a= Gitterparameter).

## L I T E R A T U R V E R Z E I C H N I S

- /1/ L.E. Toth, Transition Metal Carbides and Nitrides, Academic Press (1971)
- /2/ E. Rudy, S. Windisch und C.E. Brukl, Planseeber. Pulvermet. 16, 3 (1968)
- /3/ A.L. Giorgi, E.G. Szklarz, E.K. Storms, A.L. Bowman und B.T. Matthias, Phys. Rev. 125, 837 (1962)
- /4/ J. Geerk und K.G. Langguth, Solid State Commun. 23, 83 (1977)
- /5/ H.G. Smith und W. Gläser, Phys. Rev. Lett. 25, 1611 (1970)
- /6/ W. Weber, Phys. Rev. B 8, 5082 (1973)
- /7/ F. Gompf, L. Pintschovius, W. Reichardt und B. Scheerer, Proc. Conf. on Neutron Scattering, Gatlinburg, Juni 1976
- /8/ B.M. Klein, D.A. Papaconstantopoulos und L.L. Boyer, Phys. Rev. B 22, 1946 (1980)
- /9/ K.Schwarz und N. Rösch, J. Phys. C 9, L433 (1976)
- /10/ G. Ries und H. Winter, J. Phys. F 10, 1 (1980)
- /11/ V. Moisy-Maurice, Dissertation Universität Straßburg, März 1981
- /12/ I. Krivy und J. Sedivy, Phys. Stat. Solidi (a) 19, 259 (1973)
- /13/ I. Karimov, V.T. Em, I. Khidirov und F. Fazullayev, Fiz. Metal. Metallovech. 44, 184 (1977)
- /14/ J.L. Feldman und E.F. Skelton, Phys. Lett. 49A, 127 (1974)
- /15/ M.T. Robinson und O.S. Oen, Appl. Phys. Lett. 2, 30 (1963)
- /16/ G.R. Piercy, F. Brown, J.A. Davies und M. McCargo, Phys. Rev. Lett. 10, 399 (1963)
- /17/ H. Lutz und R. Sizmann, Phys. Lett. 5, 113 (1963)
- /18/ R.S. Nelson und M.W. Thompson, Phil. Mag. 8, 1677 (1963)
- /19/ Channeling, Theory, Observation and Applications; Ed. D.V. Morgan, John Wiley and Sons (1973)
- /20/ D.S. Gemmell, Rev. Mod. Phys. 46, 129 (1974)
- /21/ C. Lehmann und G. Leibfried, J. Appl. Phys. 34, 2821 (1963)
- /22/ J. Lindhard, Mat.-Fys. Medd. 34, no. 14 (1965)
- /23/ N. Bohr, Mat.-Fys. Medd. 18, no. 8 (1948)
- /24/ R. Sizmann und C. Varelas, Festkörperprobleme XVII, 261 (1977)
- /25/ C. Varelas und R. Sizmann, Rad. Eff. 16, 211 (1972)
- /26/ D.V. Morgan und D. van Vliet, AERE-Report R-6283 (1970)
- /27/ H.D. Carstanjen und R. Sizmann, Rad. Eff. 12, 225 (1972)
- /28/ R. Kaufmann, KFK 2638 (1978)
- /29/ H. Goldstein, Klassische Mechanik; Akadem. Verlagsgesellschaft Frankfurt/Main (1974)



- /30/ C. Lehmann und G. Leibfried, Z. Phys. 172, 465 (1963)
- /31/ G. Molière, Z. Naturforschung 2A, 142 (1947)
- /32/ M. Abramowitz und I.A. Segun, Handbook of Mathematical Functions,  
Dover Publ. New York (1968)
- /33/ C. Varelas und R. Sizmann, Rad. Eff. 25, 163 (1975)
- /34/ N. Bohr, Phil Mag. (6) 25, 10 (1913)
- /35/ J. Lindhard, M. Scharff und H.E. Schiott, Mat.-Fys. Medd. 33 no. 14 (1963)
- /36/ W.D. Wilson, L.G. Haggmark und J.P. Biersack, Phys. Rev. B 15, 2458 (1977)
- /37/ D. van Vliet, AERE-Report, no. 6395 (1970)
- /38/ M.S. Livingston und H.A. Bethe, Rev. Mod. Phys. 9, 245 (1937)
- /39/ J.F. Ziegler, Nucl. Instr. Meth. 168, 17 (1980)
- /40/ W.K. Chu und D. Powers, Phys. Rev. B 4, 10 (1971)
- /41/ O. Meyer, G. Linker und B. Kraeft, Thin Solid Films 19, 217 (1973)
- /42/ J.F. Ziegler und W.K. Chu, Atomic Data and Nuclear Data Tables 13,  
463 (1974)
- /43/ W.K. Chu, IBM Technical Report TR 22.2078
- /44/ W. Ludwig, Festkörperphysik, Akadem. Verlagsgesellschaft Frankfurt (1970)
- /45/ H. Winter, persönliche Mitteilung
- /46/ D.P. Jackson, B.M. Powell und D. Dolling, Phys. Lett 51A, 87 (1975)
- /47/ D.P. Jackson und J.H. Barrett, Comp. Phys. Comm. 13, 157 (1977)
- /48/ D.P. Jackson und J.H. Barrett, Phys. Lett. 71A, 359 (1979)
- /49/ J.H. Barrett und D.P. Jackson, Nucl. Instr. Meth. 170, 115 (1980)
- /50/ O.H. Nielsen und W. Weber, J. Phys. C 13, 2449 (1980)
- /51/ H.M. Colbert: SANDYL, Sandia Laboratories Research Report SLL-74-0012  
Mai 1974
- /52/ S. Brandt, Datenanalyse, BI-Wissenschaftsverlag (1975)
- /53/ E. Kreyszig: Statistische Methoden und ihre Anwendungen Vandenhoeck &  
Ruprecht, Göttingen (1977)
- /54/ B. Scheerer und W. Reichardt in Progr. Rep. KfK 2054 (1974)
- /55/ E.K. Storms, N.H. Krikorian und C.P. Kempter, Anal. Chem. 32, 1722 (1960)
- /56/ T.K. Sandenow und E.K. Storms, LA-3331, 1/10, 5 (1965)
- /57/ A.L. Giorgi, E.G. Szklarz und T.C. Wallace, LA-DC-8022 1/19, 9 (1966)
- /58/ H.L. Brown, P.E. Armstrong und C.P. Kempter, J. Chem. Phys. 45, 547 (1966)
- /59/ N.S. Bornstein, E.C. Hirakis und L.A. Friedrich, TIM-927, 1/18, 12 (1965)
- /60/ A.N. Kornilov, I.D. Zaikin, S.M. Skuratov und G.P. Shveikin, Zh. Fiz. Khim  
40, 1070/6 (1966)
- /61/ K. Weiner, Z. Kryst. 123, 315 (1966)  
Guinier System 600, Fa. Huber, Rimsting, Chiemsee

- /62/ G. Linker, KfK 3146 (1981)
- /63/ R. Feder und B.S. Berry, J. Appl. Cryst. 3, 372 (1970)
- /64/ L.E. Toth, M. Ischikawa und Y.A. Chang, Acta Met. 16, 1183 (1968)
- /65/ N. Pesall, R.E. Gold und H.A. Johansen, J. Phys. Chem. Solids 29, 19 (1968)
- /66/ U. Schneider und J. Geerk, in Progr. Rep. KfK 3051, 142 (1980)
- /67/ W.S. Johnson und J.F. Gibbons: Projected Range Statistics in Semiconductors, Stanford, Ca. USA (1970)
- /68/ K.-G. Langguth, KfK 2476 (1977)
- /69/ J.M. Lombaard und O. Meyer, Rad. Eff. 36, 83 (1978)
- /70/ R. Kaufmann und O. Meyer, Rad. Eff. 52, 53 (1980)
- /71/ Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie, Niob Teil B1, System Nr. 49, Verlag Chemie, Weinheim (1970)
- /72/ B.I. Boltaks: Diffusion in Semiconductors; Infosearch Limited London (1963)
- /73/ J. Geerk, KfK 2140 (1975)
- /74/ P. Ziemann, KfK 2562 (1977)
- /75/ M. Conrad in Progr. Rep. KfK 2670, 133 (1978)
- /76/ W.K. Chu, J.W. Mayer, M.A. Nicolet: Backscattering Spectrometry, Academic Press (1978)
- /77/ J.W. Mayer und E. Rimini: Ion Beam Handbook for Material Analysis, Academic Press (1977)
- /78/ International Tables for X-Ray Crystallography, Vol. I, Birmingham, Kynoch Press (1968)
- /79/ J.H. Barrett, Phys. Rev. B 3, 1527 (1971)
- /80/ R. Kaufmann und O. Meyer, Rad. Eff. 40, 97 (1979)
- /81/ R. Kaufmann und O. Meyer, Rad. Eff. 40, 161 (1979)
- /82/ F. Gompf in Progr. Rep. KfK 2357 (1976)
- /83/ P.H. Dederichs, J. Phys. F 3, 471 (1973)
- /84/ H. Kanzaki, J. Phys. Chem. Solids 2, 24 (1957)
- /85/ P.H. Dederichs, C. Lehmann, H.R. Schober, A. Scholz und R. Zeller, J. Nucl. Mat. 69 & 70, 176 (1978)
- /86/ J. W. Flocken und J.R. Hardy, Phys. Rev. 177, 1054 (1969)
- /87/ W. Reichardt, unveröffentlichte Ergebnisse
- /88/ D. Sigurd, R.W. Bower, W.F. van der Weg und J.W. Mayer, Thin Solid Films 19, 319 (1973)
- /89/ A.A. Maradudin, E.W. Montroll und G.H. Weiss, Theory of Lattice Dynamics in the Harmonic Approximation Academic Press (1963)
- /90/ W. Reichardt, unveröffentlichte Ergebnisse