

using a point source, is:

$$P(r) = - \left(\frac{ir}{L_p} \right)^{-1/2} p_0 H_{1/2}^{(1)} \left(\frac{ir}{L_p} \right) \quad (3)$$

with:

$H_{1/2}^{(1)} \left(\frac{ir}{L_p} \right)$ = HANKEL Function of order 1/2 and of first kind,

p = excess minority carrier density,

L_p = diffusion length, $i = \sqrt{-1}$,

D = diffusion constant, r = distance collector light,

τ = lifetime, p_0 = source excess density.

(3) is equivalent to⁴:

$$p(r) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{e^{-r/L_p}}{r/L_p} \cdot p_0 \quad (4)$$

Using the boundary conditions:

$$\left. \begin{aligned} p(r_0) &= \sqrt{\frac{2}{\pi}} p_0 \frac{e^{-r_0/L_p}}{r_0/L_p} \\ p(\infty) &= 0 \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

the partial logarithm of (4) is:

$$\frac{\partial \ln p}{\partial r} = - \left[\frac{1}{L_p} + \frac{1}{r} \right]. \quad (6)$$

Since the voltage at the probe at distance r from the light is proportional to p it follows:

$$\frac{\partial \ln V}{\partial r} = - \left[\frac{1}{L_p} + \frac{1}{r} \right]. \quad (7)$$

The light spot diameter has to fulfill the condition $\phi < r$.

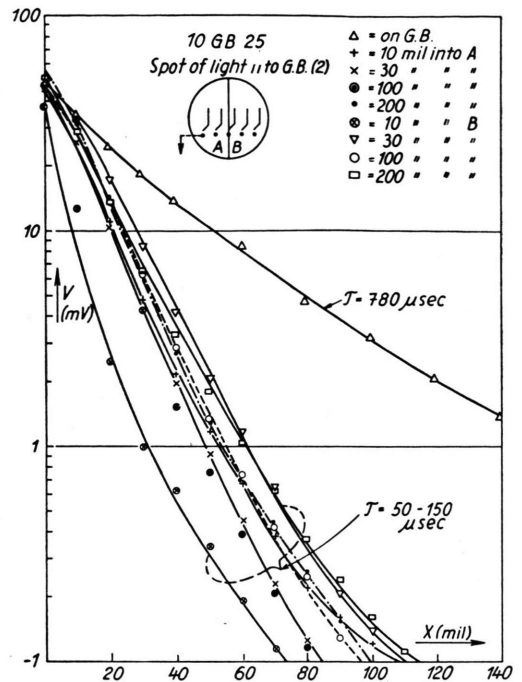


Fig. 4. Results of lifetime measurements parallel to the grain-boundary-interface. τ -maximum in grain-boundary zone.

The authors acknowledge thankfully the co-operation of O. WEINREICH, R. WEGENER, and B. LEVINGER of this laboratory in the construction of special equipment, X-ray seed orientation and bicrystal growth.

It is a pleasure to thank W. T. READ, Jr. for interesting discussions.

⁴ See, e. g. JAHNKE-EMDE, 3rd Edition, p. 136 [1938].

Temperatur und Präparatveränderungen im Elektronenmikroskop

Von KARL-JOSEPH HANSZEN

Mitteilung aus der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt,
Braunschweig

(Z. Naturforschg. II a, 878—880 [1956]; eingegangen am 24. August 1956)

In zahlreichen Untersuchungen¹ wurden an elektronenmikroskopischen Präparaten unter der Elektronenbestrahlung Veränderungen des Kristallgefüges, des Aggregatzustandes und der chemischen Zusammensetzung festgestellt. Eine Reihe dieser Umwandlungen

ist offensichtlich auf die im Elektronenstrahl auftretende Objekterwärmung² zurückzuführen. Es darf aber nicht außer Acht gelassen werden, daß die pauschale Temperaturerhöhung der Präparate im Elektronenstrahl nur eine Folge der diskreten Wechselwirkung der einfallenden Elektronen mit den getroffenen Molekeln ist, die sich selbst in Anregung, Ionisation und anderen molekularen Veränderungen äußert, also in solchen Erscheinungen, die bei einer Erwärmung des Präparats im Ofen auf die sich im Elektronenmikroskop einstellende Temperatur nicht auftreten. Darüber hinaus können auch durch die benutzten Trägerfolien und durch die unter dem Elektronenstrahl sich auf den Objekten ablagernden Kohlebedeckungen³ andersartige

¹ S. z. B.: E. F. BURTON, R. S. SENNETT u. S. G. ELLIS, Nature, Lond. **160**, 565 [1947]; E. F. WATSON, J. Appl. Phys. **19**, 713 [1948]; H. KÖNIG, Z. Phys. **130**, 483 [1951]; R. B. FISCHER, J. Appl. Phys. **25**, 894 [1954]; E. W. FISCHER u. H. RICHTER, Ann. Phys. (6) **16**, 193 [1955]; weitere Arbeiten 1. c. ⁴, ⁵, ⁶, ⁸, ¹⁰.

² Rechnungen hierüber insbes. von B. v. BORRIES u. W. GLASER, Kolloid Z. **106**, 123 [1944].

³ H. KÖNIG, Z. Phys. **129**, 491 [1951].



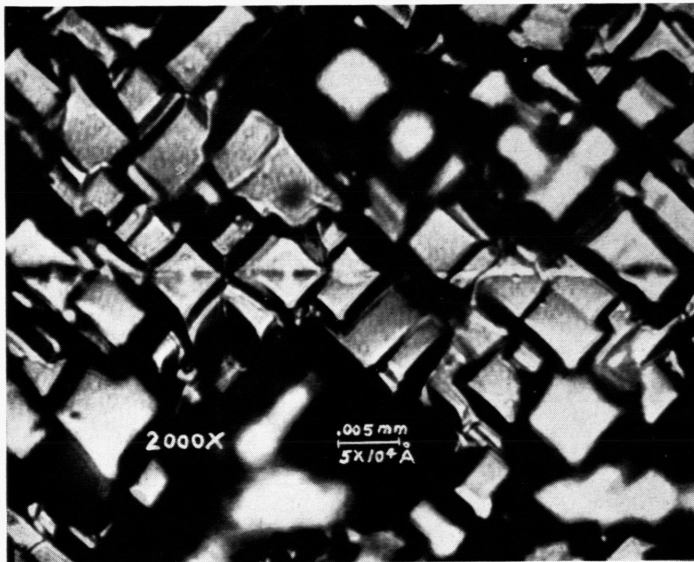


Fig. 1. Microphotograph of a bicrystal-interface.
Tilt angle $\Theta = 20^\circ$, growth direction: [100].

(Anm. d. Redakt.: Da die Abbildung etwas verkleinert wurde, handelt es sich jetzt hier nur um eine 1600-fache Vergrößerung.

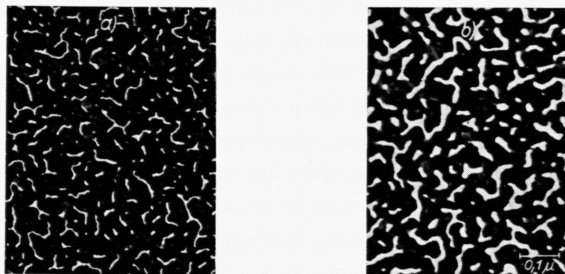


Abb. 1. Veränderungen an einer 100 Å dicken Ag-Aufdampfschicht durch Tempern im Vakuum; (a) ungetemperte Schicht, (b) eine andere, bei 65°C getemperte Schicht der gleichen Herstellungsserie.

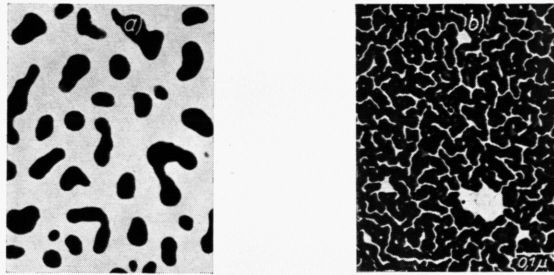


Abb. 2. Veränderungen an einer mit Elektronen bestrahlten (b) und einer unbestrahlten (a) 100 Å dicken Ag-Schicht durch Tempern im Vakuum auf 200° C. Die im Elektronenstrahl niedergeschlagenen Kohlehüllen haben in der durch Sublimation entstandenen Lücke (Abb. 2 b) ihre Spuren als dunkle Linien zurückgelassen (vgl. auch Abb. 3 b).

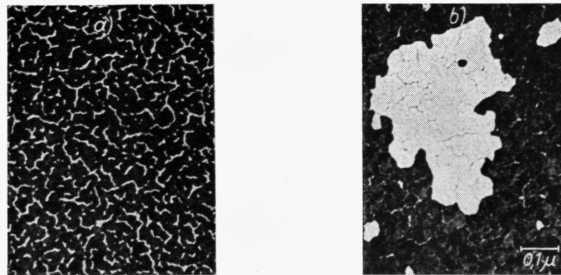


Abb. 3. Veränderungen an einer mit Elektronen bestrahlten (b) und einer unbestrahlten (a) 100 Å dicken Cu-Aufdampfschicht durch Tempern im Vakuum auf 400° C.

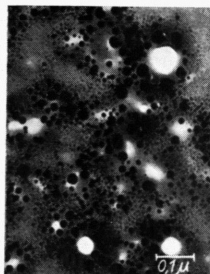


Abb. 4. Reste einer oxydierten Cu-Aufdampfschicht nach Zerstörung im Elektronenstrahl. Die Reduktion des Oxyds erfolgt unter Löcherbildung in der SiO-Unterlage.

Präparatveränderungen als beim Tempern der reinen Substanz im Vakuumofen hervorgerufen werden. So beobachteten bereits mehrere Autoren im Elektronenmikroskop Objektschäden, die durch einen bloßen Temperatureffekt nicht erklärt werden können⁴. Zum weiteren Studium der Ursachen dieser Veränderungen wurden von uns Versuchsreihen durchgeführt, in denen die Präparatveränderungen im Elektronenstrahl mit denjenigen durch Tempern im Vakuumofen unter besonderer Beachtung des Einflusses der Bedeckungen verglichen werden konnten.

Als Versuchsobjekte dienten vorwiegend dünne Metallaufdampfschichten mit inselhafter Belegung, da deren morphologische Struktur besonders labil ist⁵. So waren in Ag-Schichten auf SiO-Unterlage bereits nach kurzzeitigem Erwärmen auf 65° C Verbreiterungen der Risse in den Schichten zu erkennen⁶ (Abb. 1*). Zunächst überrascht es, daß die durch so niedrige Temperaturbehandlung hervorgerufenen Schäden überhaupt im elektronenmikroskopischen Bild feststellbar sind, da durch die Elektronenbestrahlung während der nachfolgenden Aufnahme weit höhere Temperaturen auftreten, deren Einfluß die vorherigen Temperaturschäden völlig überdecken müßte. Das Ausbleiben dieser Veränderungen ist durch die Wirkung der im Elektronenstrahl niedergeschlagenen Kohlehüllen³ bedingt, welche die Präparate bei der Abbildung – und auch bei nachträglichem Vakuumtempern bis etwa 250° C – zu schützen vermögen⁶ (Abb. 2). C- und SiO-Schichten, die außerhalb des Elektronenmikroskops auf die Präparate gebracht wurden, besitzen ähnliche Schutzwirkung.

Der konservierende Einfluß der Kohlehüllen ist keineswegs bei allen Präparaten vorhanden. An Cu-Auf-

dampfschichten wurde der gegenteilige Effekt beobachtet (Abb. 3). An elektronenbestrahlten, d. h. also mit Kohle bedeckten Schichten treten bereits nach Tempern auf 250° C an einzelnen Stellen Lücken auf, während unbedeckte Schichten bei 400° C noch keine Veränderungen aufweisen⁷. Hier muß also ein zerstörender Einfluß von der Bedeckung auf die Schicht ausgehen. In geringem Umfang sind diese Erscheinungen auch an Silberschichten zu erkennen (Abb. 2 b).

Auch bei intensiver Elektronenbestrahlung treten solche Lückenbildungen auf⁸. Durch elektronenmikroskopische Beobachtungen ihrer zeitlichen Ausbreitung erkennt man, daß es sich keinesfalls um das Abplatzen einzelner Partikel von der Unterlage handelt, sondern um ein Verdampfen der Schicht an bevorzugten Stellen. Sie kann bei Ag-Schichten unter hohen Bestrahlungsdichten⁹ so groß werden, daß die Schicht vollständig sublimiert, bevor die beim Tempern beobachtete Zusammenballung zu größeren Aggregaten eingesetzt hat.

Neben diesen recht verwickelten Bedeckungseffekten kann auch die Unterlage an den Präparatveränderungen beteiligt sein. So erfolgt im Elektronenmikroskop die Reduktion von Cu₂O zu Cu unter Löcherbildung in der SiO-Unterlage (Abb. 4). Da ähnliche Erscheinungen auch bei Vakuumtempern oberhalb 900° C auftreten, liegt es nahe, hier einen vornehmlich durch die Temperaturerhöhung bedingten Reaktionsablauf anzunehmen.

Die mitgeteilten Ergebnisse zeigen die Vielfalt der für die Objektveränderungen im Elektronenmikroskop maßgebenden Parameter. Die Temperatur ist also keineswegs die für die Veränderungen allein kennzeichnende Größe. Daher kommt der Temperaturbestimmung im Elektronenmikroskop durch Vergleich der im

⁴ A. BROCKES, M. KNOCH u. H. KÖNIG, Z. wiss. Mikr. **62**, 450 [1955], dort weitere Literatur; O. GLEMSER u. G. BUTENUTH, Optik **10**, 42 [1953]; vgl. auch E. F. WATSON, l. c. ¹.

⁵ Als Ursache für die Veränderungen in der Aufdampfschicht muß die durch Absorptionsfilme bedingte Herabsetzung der Bindungsenergie der Oberflächenatome gegenüber dem Kristallgitter angesehen werden; vgl. H. KÖNIG, l. c. ³, ferner K.-J. HANSZEN, Z. Ver. dtsh. Ing. **98**, [1956], im Druck.

⁶ K.-J. HANSZEN, Phys. Verh. **5**, 175 [1954]; **6**, 36 u. 58 [1955].

* Abb. 1 bis 4 auf Tafel S. 878 a, b.

⁷ Von massivem Kupfer ist eine ähnliche Wirkung von Fremdschichten bekannt. Während reines Kupfer bei 700° C noch nicht merklich sublimiert, setzt schon nach geringer Oberflächenoxydation bei niedrigeren Temperaturen eine erhebliche Verdampfung ein. Von F. ERDMANN-JESNITZER u. F. GÜNTHER, Z. Metallkde. **45**, 407 [1954], ist diese Erscheinung auf ein Wechselspiel zwischen Bildung und Zerfall der Oxyde sowie Oberflächendiffusion und Verdampfung des Kupfers zurückzuführen. Spezielle Vorstellungen über den Reaktionsablauf zwischen Bedeckungen und Cu-Schicht wurden vom Verf. auf der 1. European Conference on Electron Microscopy, Stockholm, September 1956 mitgeteilt (Tagungsber. im Druck). Im allgemeinen scheint aber der kennzeichnende Vorgang bei den

untersuchten Veränderungen mikroskopischer Objekte weniger in der Wirkung stöchiometrisch festgelegter Verbindungen, als in der generellen Lockerung der Oberflächenatome durch die Fremdschichten zu liegen.

⁸ Erstmals wurden solche Lückenbildungen unter dem Elektronenstrahl an Bi von P. J. BRYANT, H. U. RHOADS u. A. H. WEBER, J. Appl. Phys. **25**, 1343 [1954], beschrieben. Sie deuteten sie als Sublimation der Schicht an Stellen herabgesetzter Wärmeleitfähigkeit durch mangelnden Kontakt mit der Unterlage. Wir vermögen in dieser Deutung jedoch nicht den wesentlichen Kern des Vorgangs zu sehen, da die gleichen Erscheinungen auch beim Tempern im Vakuumofen unter ganz anderen Wärmeerzeugungs- und -Ableitungsbedingungen auftreten. Die Sublimation der Bi-Schichten ist auf Grund seines hohen Dampfdruckes besonders groß. Für die von uns gegebene Deutung der Lückenbildung spricht die Tatsache, daß diese auch bei Bi durch aufgebraute Bedeckungen wesentlich gefördert wird.

⁹ Neben dem Endwert der Strahlintensität ist auch die Art ihres zeitlichen Anstiegs und die Strahlfokussierung für die Zerstörungen in den Schichten von Einfluß. Diese Feststellung steht mit Beobachtungen von WATSON, l. c. ¹, in Übereinstimmung. Wahrscheinlich ist die Rate der fortwährend unter dem Ablauf der Zerstörungen neu auf dem Präparat niedergeschlagenen Bedeckungen für den zeitlichen Reaktionsablauf von Bedeutung.

Elektronenstrahl auftretenden Veränderungen mit den bei reinen Substanzen bekannten thermischen Umwandlungsvorgängen¹⁰ nur ein beschränkter Anwendungsbereich zu.

¹⁰ Solche Überlegungen, die z. Tl. sogar gute Übereinstimmung mit den theoretischen Berechnungen erbrachten, wurden angestellt von: C. E. HALL, Introduction to Electron Microscopy, London 1953, S. 293 ff.; H. FORESTIER,

Herrn Prof. Dr. H. BOERSCH danke ich für wertvolle Diskussionen, die ich während der Zeit seiner Zugehörigkeit zur Physikalisch-Technischen Bundesanstalt mit ihm zu diesem Thema führen konnte.

CH. HAASSER, M. UHL u. J. BOISSIER, C. R. 1^{er} Congr. intern. Microsc. Electr., Paris 1953, S. 398; S. YAMAGUCHI, Z. Phys. **134**, 618 [1953]; Z. angew. Phys. **8**, 221 [1956]; A. WINKELMANN, Z. angew. Phys. **8**, 218 [1956].

Untersuchungen der Neutronendiffusion in Graphit mit einer nichtstationären Methode

Von K. H. BECKURTS

Max-Planck-Institut für Physik, Göttingen

(Z. Naturforschg. **11 a**, 880—881 [1956]; eingeg. am 21. September 1956)

Nach einer von v. DARDEL^{1,2} vorgeschlagenen Methode können durch eine Bestimmung der mittleren Lebensdauer thermischer Neutronen in verschieden großen Geometrien eines Moderators dessen Diffusionsparameter mit großer Genauigkeit bestimmt werden.

Für die mittlere Lebensdauer ϑ eines thermischen Neutrons gilt:

$$1/\vartheta = 1/\vartheta_0 + D B^2. \quad (1)$$

Dabei ist ϑ_0 die — nur durch Absorption bedingte — Lebensdauer im unendlich ausgedehnten Streumedium und $D B^2$ die Ausflußrate; D ist der Diffusionskoeffizient und B^2 die „geometrische Krümmung“, d. h. der kleinste Eigenwert der Gleichung $\Delta\Phi + B^2\Phi = 0$ für den Neutronenfluß mit den Randbedingungen $\Phi = 0$ an den effektiven Oberflächen des Moderators.

In Moderatoren endlicher Abmessungen liegt die Gleichgewichtstemperatur thermischer Neutronen unter der Moderatortemperatur infolge des laufenden Energieverlusts durch den bevorzugten Ausfluß schneller Neutronen, der durch die Wärmeübertragung vom Moderator nur unvollständig kompensiert werden kann (sogenannter Ausfluß-Kühlungs-Effekt). Der Diffusionskoeffizient, der von der Neutronentemperatur abhängt, wird infolgedessen eine Funktion der den Ausfluß-Kühlungs-Effekt charakterisierenden Krümmung B^2 ; in guter Näherung gilt

$$D = D_0 - C B^2. \quad (2)$$

D_0 ist der Diffusionskoeffizient bei der Moderatortemperatur T_0 . Unter der Annahme, daß sich der Energieaustausch zwischen dem Neutronengas und dem Moderator durch eine Wärmeübergangszahl α_0 beschreiben läßt, ergibt die Rechnung für C in erster Näherung

$$C = \frac{k T_0^2 D_0^2}{4 \alpha_0}. \quad (3)$$

Bei unseren Messungen an einem technischen Graphit erfolgte die Bestimmung der mittleren Lebensdauer aus dem zeitlichen Zerfall eines gepulsten Neutronenfeldes.

¹ G. F. v. DARDEL, Phys. Rev. **94**, 1272 [1954].

² G. F. v. DARDEL u. N. SJÖSTRAND, Phys. Rev. **96**, 1245 [1954].

Ein kurzer Neutronenimpuls vom Tritium-Target eines 250 kV-Kaskadenbeschleunigers tritt in den Moderator ein; der Neutronenfluß an der Oberfläche des Streumediums wird mit BF_3 -Zählern nachgewiesen, deren Impulse in einem Registriergerät in 25 Zeitkanälen entsprechend ihrer Verzögerungszeit gegenüber dem Neutronenimpuls aufgezeichnet werden. Am Ende des Zyklus wird durch das Registriergerät ein Synchronisationssignal angegeben, das an der HF-Ionenquelle des Beschleunigers einen neuen Deuteronenimpuls auslöst.

Abb. 1 zeigt einige der erhaltenen Abfallskurven, die in halblogarithmischem Maßstab hervorragende Geraden ergeben; die mittlere Lebensdauer, also die Abfallzeitkonstante, wird daraus nach der Methode der kleinsten Quadrate ermittelt.

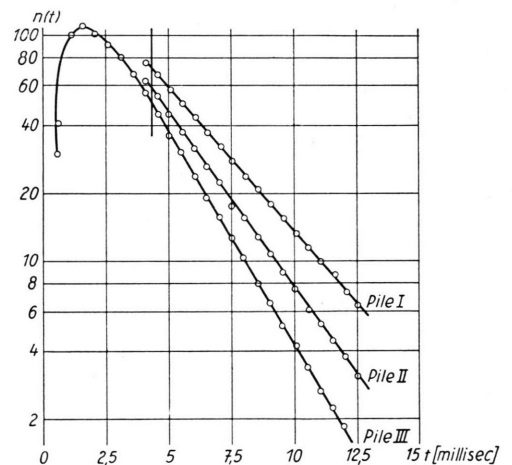


Abb. 1. Neutronenfluß aus verschiedenen Graphitquadraten.

Pile I $189,3 \times 189,3 \times 194,5 \text{ cm}^3$;

Pile II $189,3 \times 189,3 \times 145 \text{ cm}^3$;

Pile III $142,5 \times 142,5 \times 145 \text{ cm}^3$.

Abb. 2 zeigt die reziproke Lebensdauer in verschieden großen Graphitquadraten als Funktion der Krümmung; die ausgezogene Kurve ist mit den für D_0 , C und ϑ_0 erhaltenen Werten berechnet.

Für die Diffusionsparameter erhalten wir (bei einer Dichte 1,6):

$$\vartheta_0 = (7,82 \pm 0,08) \cdot 10^{-3} \text{ sec},$$

$$D_0 = (2,13 \pm 0,017) \cdot 10^5 \text{ cm}^2 \text{ sec}^{-1},$$

$$C = (16,3 \pm 2,5) \cdot 10^5 \text{ cm}^4 \text{ sec}^{-1}.$$