

ZHOU XIANG, BSC

**Untersuchung von freien Volumen in ultrafeinkristallinem  
Eisen mit der Methode der Positronenannihilation**

**MASTERARBEIT**

zur Erlangung des akademischen Grades  
Diplom-Ingenieur  
Masterstudium Technische Physik



**Technische Universität Graz**

Betreuer:

Univ.-Prof. Dipl.-Ing. Dr.techn. Werner Puff  
Institut für Materialphysik

Graz, Juli 2011

Deutsche Fassung:  
Beschluss der Curricula-Kommission für Bachelor-, Master- und Diplomstudien vom 10.11.2008  
Genehmigung des Senates am 1.12.2008

## EIDESSTÄTTLICHE ERKLÄRUNG

Ich erkläre an Eides statt, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst, andere als die angegebenen Quellen/Hilfsmittel nicht benutzt, und die den benutzten Quellen wörtlich und inhaltlich entnommene Stellen als solche kenntlich gemacht habe.

Graz, am .....

.....  
(Unterschrift)

Englische Fassung:

## STATUTORY DECLARATION

I declare that I have authored this thesis independently, that I have not used other than the declared sources / resources, and that I have explicitly marked all material which has been quoted either literally or by content from the used sources.

.....  
date

.....  
(signature)

# Inhaltsverzeichnis

<b>1 Grundlagen - Positronannihilation</b>	<b>7</b>
1.1 Positronen . . . . .	7
1.1.1 Positronen im Festkörper . . . . .	7
1.1.2 Mathematische Darstellung der Positronlebensdauer . . . . .	8
1.2 Messmethoden . . . . .	10
1.2.1 Die Positronenquelle . . . . .	11
1.2.2 Messung der Lebensdauer . . . . .	12
1.2.3 Auswertung . . . . .	16
1.2.4 Die prompte Kurve . . . . .	19
1.2.5 Quellkorrektur . . . . .	19
1.2.6 Auswertung mit dem Programm PFPOSFIT . . . . .	19
1.2.7 Messung der Dopplerverbreiterung . . . . .	19
1.2.8 Messanordnung . . . . .	21
1.2.9 Auswertung . . . . .	24
1.3 Dilatometrie . . . . .	26
<b>2 Materialeigenschaften der untersuchten Proben</b>	<b>27</b>
2.1 Armco-Eisen . . . . .	27
2.2 Materialeigenschaften . . . . .	29
2.2.1 Allgemeine Materialeigenschaften . . . . .	29
2.2.2 Kristalldefekte . . . . .	30
2.2.3 Punktdefekte . . . . .	30
2.2.4 Versetzungen . . . . .	32
2.2.5 Korngrenzen . . . . .	33
2.3 Erholung, Rekristallisation, Kornvergrößerung . . . . .	35
2.3.1 Erholung . . . . .	35
2.3.2 Keimbildung . . . . .	36
2.3.3 Rekristallisation . . . . .	36
2.3.4 Das stetige und unstetige Kornwachstum . . . . .	38
<b>3 Experiment, Messergebnisse</b>	<b>40</b>
3.1 Erste Messserie . . . . .	40
3.2 Zweite Messserie . . . . .	47
3.3 Theoretisches Positron-Trapping Modell . . . . .	51
<b>4 Diskussion</b>	<b>53</b>
4.1 Messung mit variablem hoch intensivem Positronenbeam . . . . .	57
4.2 High-Pressure-Torsion Verformung . . . . .	58
4.3 Auswertung der SEM-Bilder . . . . .	59

4.4	Vergleich mit dem theoretischen Modell . . . . .	61
4.5	Zusammenfassung . . . . .	61

---

## Kurzfassung

In dieser Arbeit wird das Ausheilverhalten von hoch verformten Armco-Eisen-Proben mit Hilfe der Methode der Positronenannihilationsspektroskopie untersucht. Die Proben wurden am Erich Schmid Institut der Österr. Akademie der Wissenschaften in Leoben mittels High Pressure Torsion (HPT) verformt. Es wurde ein Verformungsgrad entsprechend einer von Mises Spannung  $\epsilon \sim 36$  erreicht.

Die HPT-Verformung führt zur Bildung von Leerstellen und Versetzungen in den Proben, sowie zur Bildung von nanokristallinen Strukturen. Die verformten Proben wurden bei unterschiedlichen Temperaturen thermisch behandelt. Im Anschluss daran wurden die Proben mit Hilfe der Positronenlebensdauerspektroskopie, sowie der 1-dimensionalen und 2-dimensionalen Dopplerspektroskopie untersucht. Die erhaltenen Ergebnisse wurden unter Zuhilfenahme von Scanning-Elektronenmikroskopaufnahmen interpretiert.

Proben wurden darüber hinaus auch nach isochronem Tempern zwischen 75 und 750°C mit den gleichen Methoden untersucht. Die Ergebnisse werden mit 1-dimensionalen in situ Dopplermessungen, erhalten am hochintensiven Positronenbeam am FRM II in München und mit Messungen der relativen Längenänderung  $(\Delta)l/l$ , verglichen.

Aus den erhaltenen Messergebnissen kann auf das folgende Ausheilverhalten der durch HPT induzierten Defekte geschlossen werden:

Unter 200°C kommt es zu einer Ausheilung von Leerstellen und Versetzungen.

Zwischen 200°C und 350°C liegt stetiges Kornwachstum vor. Die Korngröße ändert sich nur wenig, die Form der Körner ändert sich aber von lammelenartig auf eher rund.

Ab 350°C findet unstetiges Kornwachstum statt. Es ist ein starkes Kornwachstum zu erkennen

Ab 700°C erreichen die Positronendaten die Werte von unverformtem Armco-Eisen.

---

## Abstract

This work describes the annealing behavior of severe plastic deformed Armco-iron using the method of positron annihilation spectroscopy. The samples were deformed by high pressure torsion (HPT) in the Erich Schmid institute, Austrian academy of sciences, Leoben. A degree of deformation corresponding to a von Mises strain  $\epsilon \sim 36$  was obtained.

The HPT-deformation causes the formation of vacancies and dislocations in the samples, as well as the formation of nanocrystalline structures. The deformed samples were thermally treated at different temperatures and subsequently investigated by positron lifetime spectroscopy, 1-dimensional and 2-dimensional Doppler-broadening spectroscopy. The results were interpreted with the aid of scanning electron microscopy investigations.

Moreover samples were investigated with the same methods after isochronal annealing between 75 and 750°C. The results were compared with in situ 1-dimensional Doppler-broadening results, obtained at the high intensive positron beam at FRM II in Munich and relative length change  $\Delta l/l$  measurements.

From the obtained results, the following annealing behavior of HPT introduced defects can be concluded:

Below 200°C annealing of vacancies and dislocations takes place.

Between 200°C and 350°C a continuous grain growth exists. The grain size varies only slightly, but the shape of the grains changes from lamellar to circular.

Above 350°C discontinuous grain growth takes place. A strong growth of the grains can be observed.

Above 700°C the positron data reach the values of non-deformed Armco-iron.

# 1 Grundlagen - Positronannihilation<sup>1</sup>

## 1.1 Positronen

Das Positron ist das Antiteilchen des Elektrons und hat eine Ruhemasse von  $9.11 \cdot 10^{-31}$  kg (entspricht 0.511MeV) [2]. Es entsteht beim  $\beta^+$  Zerfall. Wegen seiner positiven Ladung, annihiliert ein Positron mit einem Elektron. Bei der Zerstrahlung wird die Energie in Form von elektromagnetischer Strahlung emittiert.[3] Die emittierte Energie ergibt sich aus :

$$E = 2m_e c^2 + E_+ + E_- \quad (1)$$

- $E$  ist die Gesamtenergie
- $2m_e c^2$  ist die Ruheenergie des Elektrons und Positrons
- $E_+$  und  $E_-$  sind die kinetische Energie des Positrons und Elektrons.

Das Elektron-Positron Paar zerstrahlt aus quantenelektrodynamischer Gründen vorwiegend in 2  $\gamma$ -Quanten mit jeweils 511keV[4]. Es gibt auch 3 $\gamma$ -Quanten und 1 $\gamma$ -Quanten Zerstrahlung. Sie kommen selten vor und sind für die Positronen-Annihilation in Metallen nicht von Bedeutung. [5]

### 1.1.1 Positronen im Festkörper

Nach dem Eintritt in die Probe wird das Positron auf thermische Energie abgebremst. Die Energie wird in die Anregung von Plasmonen, Ionenisationsstößen, Erzeugung von Elektron-Lochpaaren und Streuung an Phononen umgesetzt. Danach diffundiert das Positron durch den Festkörper, mit einer mittleren Diffusionslänge von etwa 100nm. Das entspricht einem Diffusionsvolumen von etwa  $10^9$  Atomen. Dann zerstrahlt das Positron mit einem Elektron in 2- $\gamma$ -Quanten.

Da der Annihilationsprozess ein Zufallsprozess ist, hat die Positronlebensdauer eine statistische Verteilung. Diese Verteilung nennt man das Lebensdauerspektrum. Im Festkörper ist das Spektrum eine abklingende Exponentialfunktion oder eine Überlagerung von solchen Funktionen. Die Anzahl der Exponentialfunktionen entspricht der Anzahl der möglichen Zustände des Positrons.

In einem defektfreien Metall, besitzt das Lebensdauerspektrum nur eine Komponente. Das bedeutet, dass der Positronenzustand einer freien Welle entspricht. Das Positron ist delokalisiert.

Defekte sind attraktiv für Positronen und können die Positronen einfangen. Aufgrund des fehlenden Atomrumpfes einer Leerstelle entsteht ein für das Positron attraktives Potential. In diesem Potential wird das Positron eingefangen. Das Positron befindet sich

---

<sup>1</sup>Dieses Kapitel basiert auf [1]

dann in einem lokalisierten Zustand. Da in den Defekten (lokalisierte Zustände) eine andere Elektronendichte vorherrscht, entsteht eine neue Komponente im Lebensdauerpektrum.

### 1.1.2 Mathematische Darstellung der Positronlebensdauer

Die Lebensdauer des Positrons hängt von der Annihilationswahrscheinlichkeit ab. Die mathematische Darstellung der Wahrscheinlichkeit, dass ein Positron mit der Wellenfunktion  $\psi_+(\vec{r})$  mit einem Elektron mit der Wellenfunktion  $\psi_j(\vec{r})$  unter Emission zweier Photonen mit dem Gesamtwellenvektor zwischen  $\vec{k}$  und  $\vec{k}+d\vec{k}$  zerstrahlt, ist:

$$\rho_j(\vec{k})d^3\vec{k} = \frac{\pi r_0^2 c}{(2\pi)^3} \left| \int d^3\vec{r} e^{-i\vec{k}\vec{r}} \psi_j(\vec{r}) \psi_+(\vec{r}) \right|^2 d^3\vec{k}. \quad (2)$$

- $r_0$  klassischer Elektronenradius.

Es ist deutlich zu erkennen, dass die Positron-Elektron-Überlagerung den entscheidenden Einfluss hat.  $\psi_+(\vec{r})$  kann im Allgemeinen als der Grundzustand des Positrons im Gitter gewählt werden. Dieser Zustand kann mit der thermischen Energie (als ebene Welle) kombinieren. Da die Elektronenenergie im eV-Bereich liegt und das Positron als thermalisiert angenommen wird, ist der gesamte Photonenimpuls  $\vec{k}$  näherungsweise gleich dem Impuls des Elektrons. Somit ist die Zerfallsrate des Positrons gegeben durch

$$\lambda = \int d^3\vec{k} \rho(\vec{k}) \quad (3)$$

wobei  $\rho$  über alle besetzten Elektronenzustände summiert wird. Aus Gleichung (3) kann die Gesamtannihilationsrate hergeleitet werden ( $\tau$  ist die Lebensdauer):

$$\lambda = \frac{1}{\tau} = \pi r_0^2 c \sum_j \int |\psi_j(\vec{r})|^2 |\psi_+(\vec{r})|^2 d^3\vec{r}. \quad (4)$$

Der Kehrwert der Zerfallsrate ist die Lebensdauer des Positrons. Unter dem Integral steht wieder die örtliche Überlappungsdichte der 1-Elektronen-Wellenfunktion mit der Positronen-Wellenfunktion. In der Sommerfeld-Näherung bekommt man eine direkte Proportionalität der Annihilationsrate zur Elektronendichte  $n$  [5].

$$\rho_{so} = \pi r_0^2 c n. \quad (5)$$

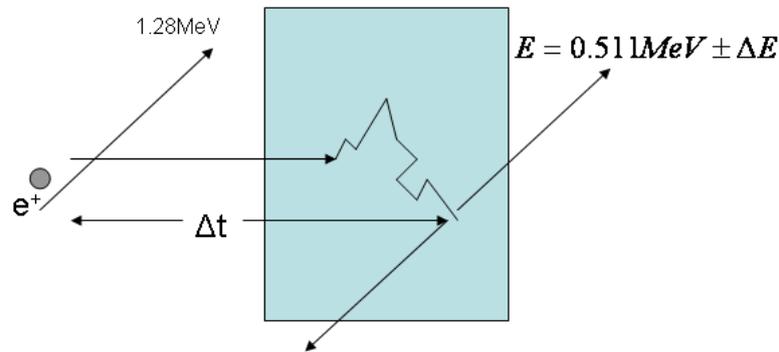
Die zusätzliche positive Ladung wird durch eine Umverteilung der Leitungselektronen abgeschirmt. Dies führt zu einer Erhöhung der Elektronendichte in der Nähe des Positrons und zum Anstieg der Annihilationsrate  $\lambda$ . Um diesen Effekt zu berücksichtigen, muss das

Sommerfeld-Modell mit einem so genannten *Enhancementfaktor* erweitert werden.

Die kinetische Energie des  $e^+e^-$ -Paares bei der Vernichtung verursacht eine Energieverschiebung der beiden  $\gamma$ -Quanten, die sogenannte Dopplerverschiebung. Diese Energieverschiebung spiegelt die Impulsverteilung der Elektronen wider, da das thermalisierte Positron einen verschwindend geringen Beitrag liefert.

In einem Material mit Defekten weicht die Elektronendichteverteilung am Ort der Defekte von der Verteilung im perfekten Gitter ab. Hohe Elektronendichte entspricht einer hohen Annihilationswahrscheinlichkeit. Je höher die Annihilationswahrscheinlichkeit ist, desto schneller wird das Positron ein Elektron finden und annihilieren. Die entsprechende Lebensdauer des Positrons wird entsprechend kürzer. Die typische Lebensdauer von Positronen in Metallen und Halbleitern liegt im Bereich von 100 bis 200 ps.

## 1.2 Messmethoden



**Abbildung 1:** Schematische Darstellung der drei möglichen Techniken der Positronenspektroskopie: Positronlebensdauer, Dopplerverbreiterung, Winkelkorrelation

Beim  $\beta^+$ -Zerfall entsteht das Positron. Es dringt in die Probe ein und wird thermalisiert. Die Thermalisierung dauert etwa  $10^{-12}$  Sekunden. Danach diffundiert das Positron durch die Probe und annihiliert. Das eröffnet verschiedene Möglichkeiten, um Materialien zu untersuchen:

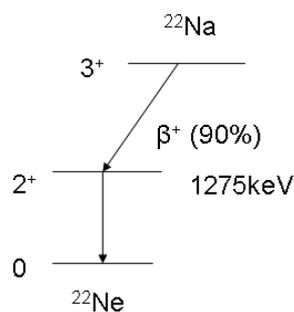
- Positronlebensdauer: Die Zeitdauer zwischen dem Entstehen des Positrons und der Annihilation ist die Positronlebensdauer. Die Lebensdauer des Positrons hängt von der Elektronendichte ab, dadurch kann man auf Gitterdefekte zurückschließen
- Dopplerverbreiterung: Das Elektron-Positron-Paar besitzt einen Impuls. Dadurch kommt es zu einer Dopplerverbreiterung der Annihilationsenergie. Da der Impuls des Positrons gegenüber dem Impuls des Elektrons vernachlässigbar ist, erhält man aus Dopplerverbreiterungsexperimenten Informationen über die Impulsverteilung der Elektronen und damit Informationen über die chemische Umgebung des Annihilationsortes
- Winkelkorrelation: Da das Elektron-Positron-Paar im Laborsystem nicht in Ruhe ist, kommt es zu einer Abweichung der beiden  $\gamma$ -Quanten von  $180^\circ$ . Daraus kann man Informationen über die Impulsverteilung der Elektronen erhalten.

### 1.2.1 Die Positronenquelle

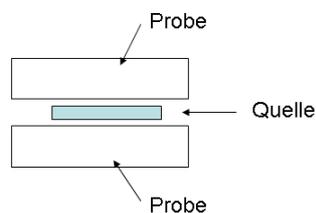
Die Positronenquelle soll folgende Forderungen erfüllen:

- Die Quelle soll eine hohe Ausbeute besitzen
- Sie muss genügend Energie haben, um das Positron tief genug in den Festkörper einzubringen
- Neben dem Positron muss noch ein  $\gamma$ -Quant emittiert werden, das bei der Lebensdauerermessung als Startsignal verwendet wird.

Wegen guter Erfüllung der Forderungen und aus Kostengründen wird das Isotop  $^{22}\text{Na}$  als Standardquelle verwendet. Gleichzeitig mit der Emission des Positrons wird ein  $\gamma$ -Quant mit 1275keV emittiert (Siehe Abb. 2). Dieses  $\gamma$ -Quant wird als Startsignal verwendet. Das  $^{22}\text{Na}$  wird meist als  $^{22}\text{NaCl}$  Lösung auf eine dünne Metallfolie aufgedampft und noch einmal mit der gleichen Folie umwickelt. Die Quelle wird zwischen ein Probenpaar gelegt. Die Proben müssen dick genug sein, um alle Positronen zu absorbieren. Siehe Abb. 3.

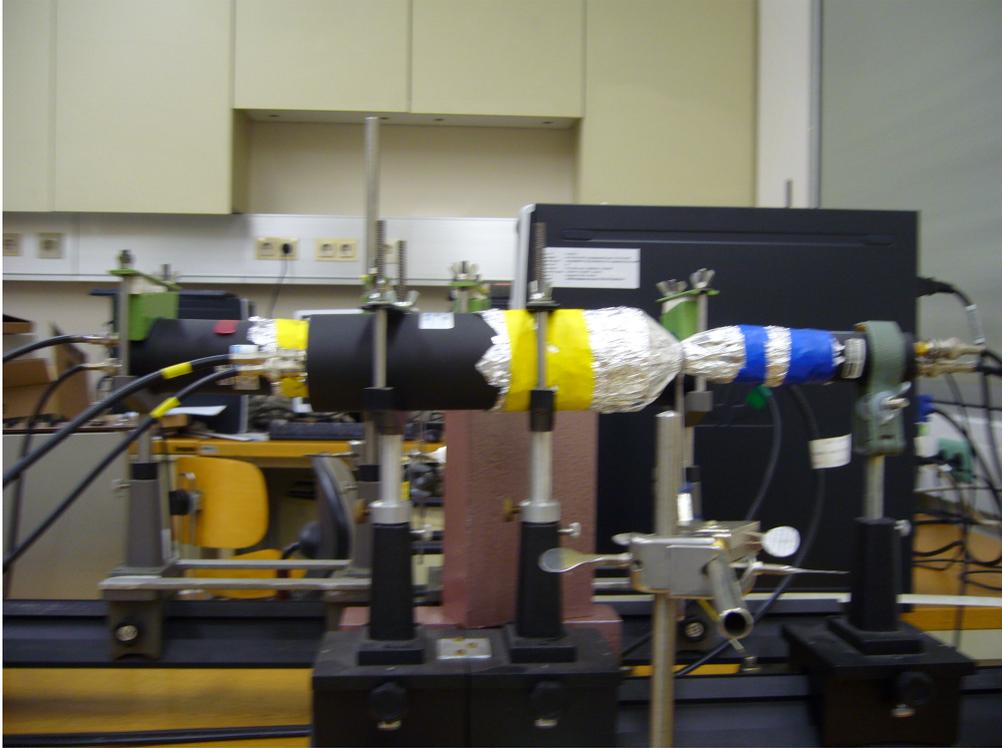


**Abbildung 2:** Zerfallsschema des  $\text{Na}^{22}$  Isotops



**Abbildung 3:** Die Sandwich-Anordnung der Probe und Quelle

### 1.2.2 Messung der Lebensdauer



**Abbildung 4:** Lebensdauerermessanlage

Das Messprinzip der Lebensdauermessung liegt in der Zeitmessung zwischen der Geburt und der Annihilation des Positrons. Das  $^{22}\text{Na}$  Isotop wird als Quelle verwendet. 3.7ps vor der 1.275 MeV  $\gamma$ -Emission wird das Positron emittiert. Wegen der kurzen Zwischenzeit wird es als gleichzeitig betrachtet. Im Detektor wird das 1.275 MeV  $\gamma$ -Quant als das Signal der Geburt des Positrons registriert. Die Zeitdauer bis zur Detektion des 0.511 MeV  $\gamma$ -Quants der Annihilation ist die Lebensdauer des Positron. Die Messanordnung ist in Abb. 4 und Abb. 5 dargestellt.

Die schnellen Plastiksintillatoren sind mit den Photoelektronenvervielfachern gekoppelt. Die  $\gamma$ -Quanten werden von Plastiksintillatoren registriert und als ein optisches Signal in die Photoelektronenvervielfacher weiter geleitet. Im Photoelektronenvervielfacher wird das optische Signal in ein elektrisches Signal umgewandelt und verstärkt. Die Anodensignale des Photoelektronenvervielfachers werden Constant-Fraction Differential Diskriminatoren(CFDD) zugeführt (Siehe Abb. 6).

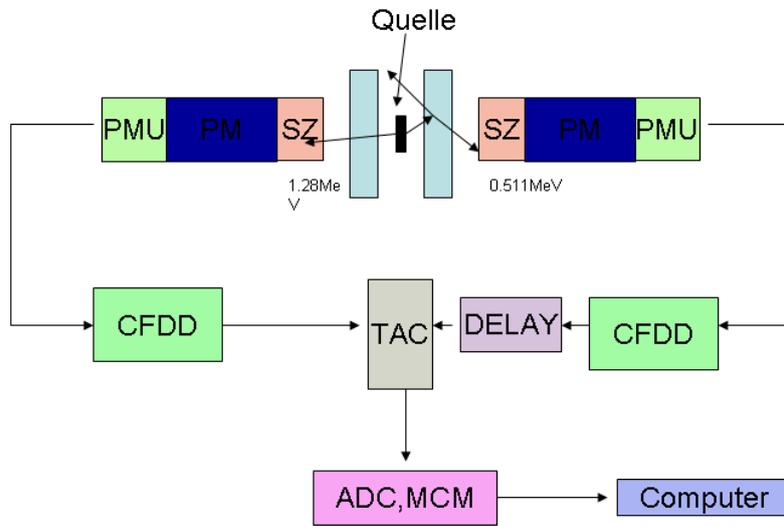


Abbildung 5: Blockschaltbild der Lebensdauermessung

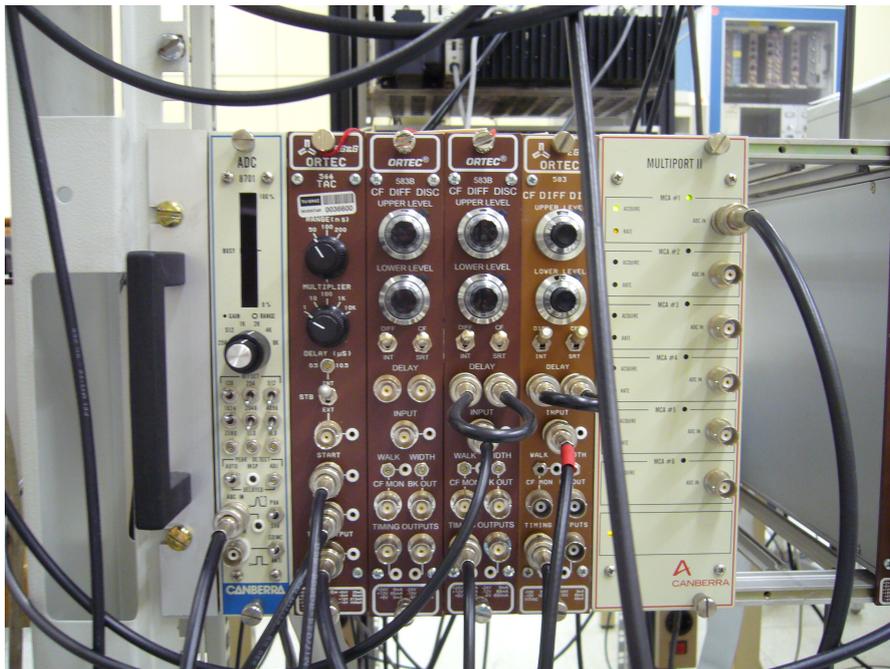


Abbildung 6: Elektronische Komponenten der Lebensdauerapparatur

Ein Diskriminator verwandelt das Inputsignal in einen logischen Puls, wenn der Input Impuls zwischen zwei voreingestellten Schranken liegt. Für Zeitmessungen gibt es zwei Haupttypen von Diskriminatoren: leading edge Diskriminatoren und constant fraction Diskriminatoren. Der leading edge Diskriminator generiert ein Output-Signal, wenn das Input-Signal eine gegebene Schwelle überschreitet [6]. Der Jitter und Walk können zu einer ungenauen Zeitmessung führen. Das Rauschen des Signals (Jitter) kann beim Registrieren auf der Schwellenlinie zur einer Abweichung des Zeitsignals führen (Siehe Abb. 7).

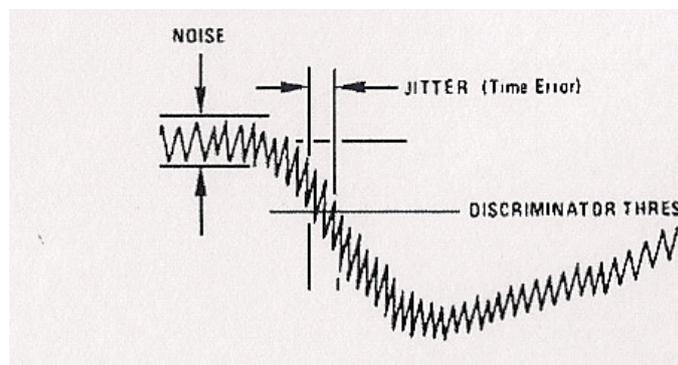


Abbildung 7: Jitter [6]

Wenn die Amplituden des Input-Signals verschieden sind, kann es zu einem Walk-Fehler führen (Siehe Abb. 8).

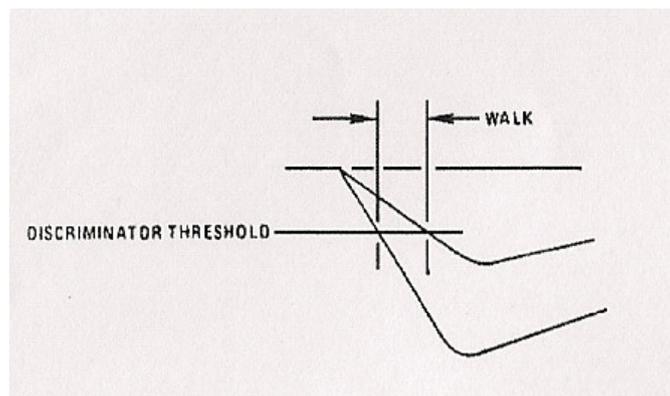
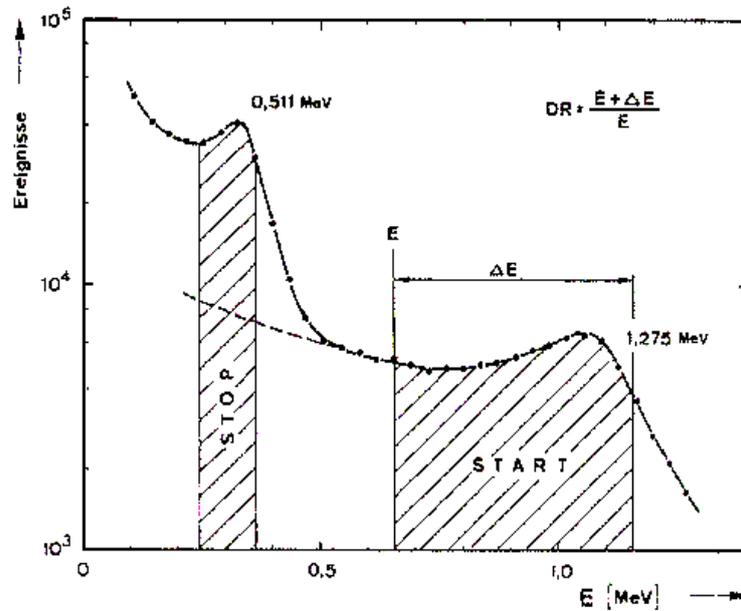


Abbildung 8: Walk [6]

Der Constant Fraction Diskriminator wird die oben erwähnte Abweichung verringern. Er splittet das Input-Signal in zwei Signale auf. Ein Signal wird abgeschwächt und das andere wird verzögert und invertiert. Die Signale werden dann addiert und der Nulldurchgang wird ermittelt. Der Nulldurchgang liefert den Zeitpunkt für das Ausgangssignal.

Eine Energieselektion wird noch im Energiefenster für die Constant-Fraction Diskriminatoren eingestellt. Die zwei charakteristischen Comptonschultern entsprechen dem 511 keV  $\gamma$ -Quant und dem 1.28 MeV  $\gamma$ -Quant. Zwei Grenzspannungen werden jeweils für Start- und Stop-Signal eingestellt. Das Outputsignal ist nur dann aktiv, wenn der Input Impuls zwischen den zwei Grenzspannungen liegt. Die Grenzspannungen sollen den relevanten  $\gamma$ -Quant Energien entsprechen (Siehe Abb. 9).



**Abbildung 9:** Energiefenster: Energieselektion durch charakteristische Comptonschultern [5]

Die erhaltenen Start und Stop-Signale werden im Zeit-Impulshöhen-Wandler(TAC) weiter verarbeitet. Dieser besteht aus einer Konstantstromquelle und einem Kondensator. Wenn das Start-Signal in den TAC kommt, beginnt sich der Kondensator aufzuladen. Die Aufladung unterbricht bei Ankunft des Stop-Signals. Damit ist die Ausgangs-

pannung zum gemessenen Zeitintervall proportional. Eine Verzögerung des Stop-Signals bedingt, dass der TAC im streng linearen Bereich arbeitet. Die erhaltene Impulshöhenverteilung wird im Multi-Channel-Analyzer (besteht aus Analog-Digital-Wandler und einem Memory) analysiert und gespeichert. Die Ausgangsdaten sind dann für die Auswertung zugänglich.

### 1.2.3 Auswertung

Die Lebensdauer des Positrons im Festkörper hängt von der mittleren Elektronendichte am Positronenort ab. Meine Untersuchung beschränkt sich nur auf Metalle, daher kann die Positroniumbildung vernachlässigt werden. Die in Metallen typischerweise vorhandenen Defekte sind Leerstellen, Versetzungen und Korngrenzen. Insbesondere Leerstellen sind aufgrund des fehlenden positiven Atomkerns eine attraktive Position für das Positron. Die ebenfalls fehlende Elektronenhülle führt zu einer geringeren Elektronendichte und damit zu einer längeren Lebensdauer des Positrons.

Aus der Thermodynamik ist bekannt, dass im thermischen Gleichgewicht sich die Leerstellenkonzentration ergibt aus:

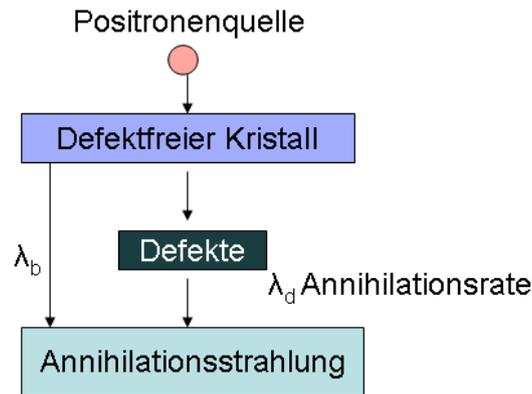
$$c_v \approx c_0 \exp\left(\frac{-E_v}{k_b T}\right) \quad (6)$$

- $c_v$  Leerstellenkonzentration
- $c_0$  Vorfaktor (von Entropie abhängig)
- $T$  Temperatur
- $E_v$  Leerstellenbildungsenergie
- $k_b$  Boltzmannkonstante.

Unter definierten Temperaturen bestimmt  $E_v$  die Leerstellenkonzentration. Experimentell muss das Verhältnis der freien  $n_b$  zu den an Leerstellen gebundenen  $n_v$  Positronen ermittelt werden. Dazu verwendet man das Haftstellenmodell (Abb.10). Das einfachste Modell beschränkt sich auf nur eine Defektart. Im freien Zustand, man spricht vom ungestörten Gitter (Bulk), annihiliert das Positron mit der Annihilationsrate  $\lambda_b$ . Wenn Defekte im Gitter vorhanden sind, dann werden die Positronen mit gewissen Wahrscheinlichkeiten in Defekten eingefangen. Des weiteren wird angenommen, dass die Positronen nicht wieder aus den Haftstellen entweichen können. Die Einfangrate bezeichnet man als  $\mu_d$ . Die Anzahl der eingefangenen Postironen  $\kappa_d$  hängt noch von der Konzentration der Defekte ab

$$\kappa_d = \mu_d C. \quad (7)$$

Die eingefangenen Positronen annihilieren mit einer Rate  $\lambda_d$ . Diese Rate ist geringer als  $\lambda_b$ , da die Elektronendichte kleiner ist als im perfekten Gitter.



**Abbildung 10:** Trappingmodell für Defekte: Die Positronen annihilieren im defektfreien Zustand oder aus dem Defektzustand.

Die Bilanzgleichungen der Positronen lauten:

$$\frac{dn_b}{dt} = -\lambda_b n_b - \kappa_d n_b \quad (8)$$

$$\frac{dn_d}{dt} = -\lambda_d n_d + \kappa_d n_b. \quad (9)$$

Unter der Annahme, dass zur Zeit  $t=0$  keine eingefangenen Positronen existieren, kann dieses Gleichungssystem gelöst werden. Die erhaltene Wahrscheinlichkeit einer Annihilation zum Zeitpunkt  $t$  ist:

$$P(t) = \frac{1}{\lambda_1 - \lambda_d} [(\lambda_b - \lambda_d) \exp(-\lambda_1 t) + \kappa_d \lambda_d \exp(-\lambda_d t)]. \quad (10)$$

$$\lambda_1 = \lambda_b + \kappa \quad (11)$$

$\lambda_1$  ist die durch die Einfangrate modifizierte Bulkrate. Für die Lebensdauern gilt:

$$\tau_1 = \frac{1}{\lambda_1} \quad (12)$$

$$\tau_2 = \tau_d = \frac{1}{\lambda_d}. \quad (13)$$

Die Intensitäten der beiden Komponenten sind:

$$I_1 = \frac{\lambda_b - \lambda_d}{\lambda_1 - \lambda_d} \quad (14)$$

$$I_2 = \frac{\kappa}{\lambda_1 - \lambda_d} = 1 - I_1. \quad (15)$$

Aus den obigen Gleichungen kann man die Bulklebensdauer herleiten:

$$\tau_b = \frac{1}{\lambda_b} = (I_1 \lambda_1 + I_2 \lambda_2)^{-1}. \quad (16)$$

Die Bulklebensdauer entspricht der Annihilation im perfekten Gitter und stellt damit eine Materialkonstante dar.

Man kann auch integrale Parameter in das Haftstellenmodell einführen. Sei  $F$  ein derartiger Parameter,  $F_b$  und  $F_d$  jeweils die charakteristischen Werte dieses Parameters im freien bzw. eingefangenen Zustand, dann gilt für den gewichteten Mittelwert:

$$F(T) = F_b P_b + F_d P_d = \frac{F_b + \tau_b \kappa F_d}{1 + \tau_d \kappa} \quad (17)$$

$P_b$  und  $P_d$  sind die entsprechenden Annihilationswahrscheinlichkeiten.

Die mittlere Lebensdauer ist ein derartiger integraler Parameter:

$$\tau_m = \tau_b \frac{1 + \tau_d \kappa}{1 + \tau_b \kappa} = \tau_1 I_1 + \tau_2 I_2. \quad (18)$$

Für die Trappingrate folgt weiters:

$$\kappa = \mu_v C_v = \frac{I_2}{I_1} (\lambda_b - \lambda_v) = \frac{1}{\tau_b} \frac{\tau_m - \tau_b}{\tau_v - \tau_m}. \quad (19)$$

Die Positronenmethode ist im Bereich der Leerstellenkonzentration von  $10^{-3}$  bis  $10^{-6}$  sensitiv. Aus Vergleich mit EPR Messungen konnte ein Verhältnis zwischen der Trapping rate ( $\kappa$ ) und der Konzentration der Defekte ( $C$ ) hergestellt werden [7].

### 1.2.4 Die prompte Kurve

Bei der Messung von Lebensdauern erhält man ein Spektrum, das aus einer Anzahl von Exponentialtermen und einem Untergrund besteht. Das Spektrum ist wegen der endlichen Zeitaufösung der Apparatur verschmiert. Die Zeitaufösungsfunktion wird als prompte Kurve definiert. Für ein reales Spektrum ist die Entfaltung der Aufösungsfunktion  $R(t)$  mit der Modellfunktion  $N(t)$  notwendig:

$$F_j(t) = \int_0^{\infty} R(t' - t)N_j(t')dt'. \quad (20)$$

### 1.2.5 Quellkorrektur

Die Positronen können bereits vor dem Eindringen in den Festkörper in der Quelle selbst und in der umhüllenden Folie annihilieren. Die mittlere Lebensdauer ergibt sich zu:

$$\tau_m = \tau_{NaCl}I_{NaCl} + \tau_{Folie}I_{Folie} + \tau_{Probe}I_{Probe}. \quad (21)$$

Die beiden ersten Terme stellen den sog. Quellterm dar, der bei der Auswertung der Spektren berücksichtigt werden muss. Es gibt unterschiedliche Methoden diesen Term zu bestimmen.

Für diese Arbeit wurde eine hochreine Fe-Probe gemessen. Die Quellkorrektur wird so bestimmt, daß die errechnete Bulklebensdauer etwa 108ps (Bulklebensdauer von Fe) beträgt. Es ergaben sich folgende mögliche Quellkorrekturen [350ps,6.2%(NaCl),250ps,20%(Al)] bzw. [277ps,31.3%(NaCl+Al)].

### 1.2.6 Auswertung mit dem Programm PFPOSFIT

Das erhaltene Spektrum ist die Summe aus verschiedenen Zerfallsexponentialfunktionen inklusiv der prompten Kurve, Untergrund und Quellterm. Das Programm PFPOSFIT ermittelt aus dem experimentellen Spektrum mit Hilfe des Least-Squares Verfahrens die Lebensdauern und deren Intensitäten unter Berücksichtigung der Aufösungsfunktion und der Quellkorrektur. Eine genaue Beschreibung findet sich in [8].

### 1.2.7 Messung der Dopplerverbreiterung

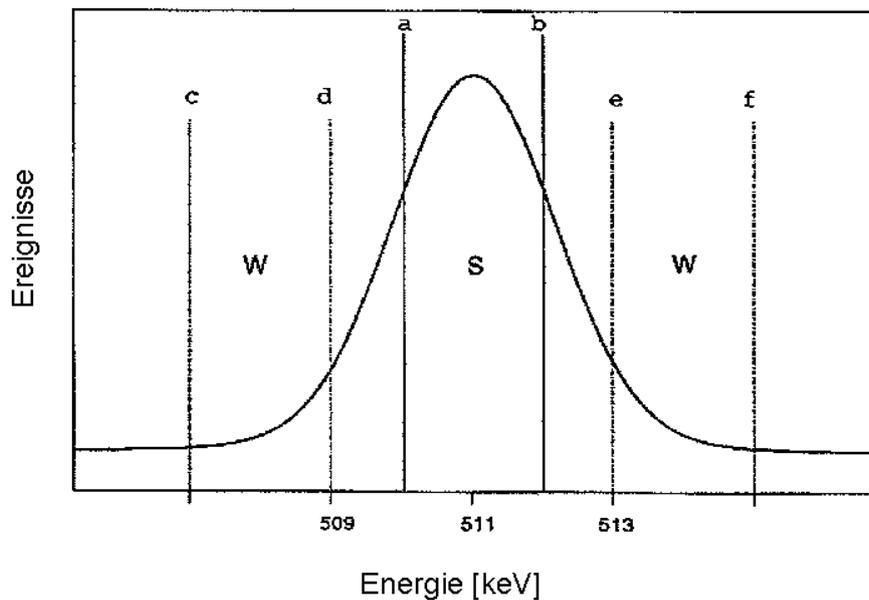
Die Dopplerverbreiterung ist eine wichtige Messtechnik im Bereich der Positronenannihilation. Das Positron-Elektron-Paar besitzt zum Zeitpunkt der Annihilation einen

Impuls. Dadurch kommt es zu einer Dopplerverbreiterung der Annihilationsenergie. Die Energieverschiebung( $\Delta E$ ) der 511keV  $\gamma$ -Quanten betragt:

$$\Delta E = \pm \frac{p_L c}{2} \quad (22)$$

- $p_L$  Impuls des Elektron-Positron-Paars in der Fortpflanzungsrichtung.

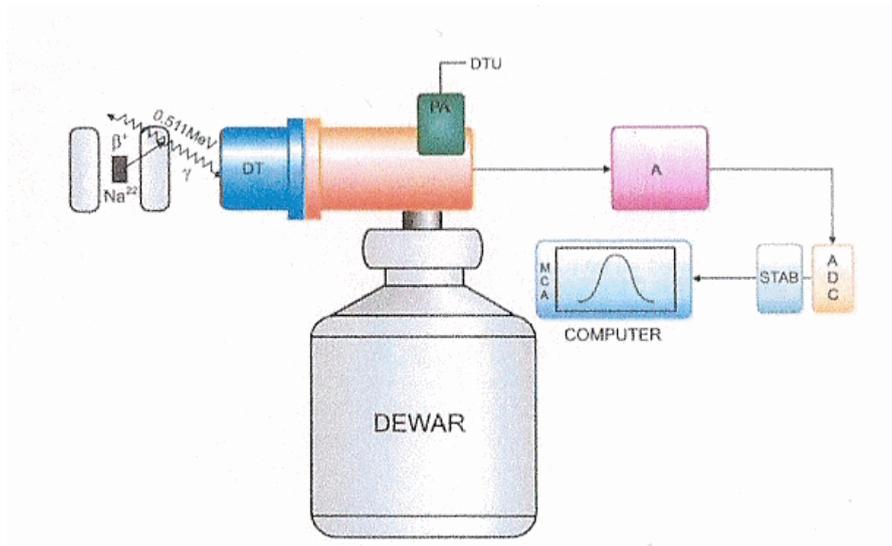
Da der Impuls des Positrons vernachlassigt werden kann, erhalt man Informationen uber die Impulsverteilung der Elektronen. Man kann zwischen Annihilationen mit Valenzelektronen und Rumpfelektronen unterscheiden. Die Rumpfelektronen besitzen einen hoheren Impuls als die Valenzelektronen und verursachen daher eine grosere Energieverschiebung. Die Auswertung wird durch die Einfuhung zweier linearer Parameter ermoglicht. Der S-Parameter beschreibt die Annihilation mit Valenzelektronen und der W-Parameter beschreibt die Annihilation mit Rumpfelektronen. Sie werden in Abb. 11 dargestellt. Wenn ein Positron in einem Defekt eingefangen wird, ist der Valenzelektronenanteil hohher als im perfekten Gitter, da das Atom nicht anwesend ist. Die Kurve des defektreichen Materials ist hohher und schmaler als die Kurve des defektarmen Materials. Das Annihilationsspektrum liefert direkte Informationen uber die Impulsverteilung der Elektronen am Ort der Annihilation.



**Abbildung 11:** Dopplerverbreiterung: S-Flache unter der Kurve charakterisiert die Annihilation mit Valenzelektronen und W-Flache die Annihilation mit Rumpfelektronen. [5]

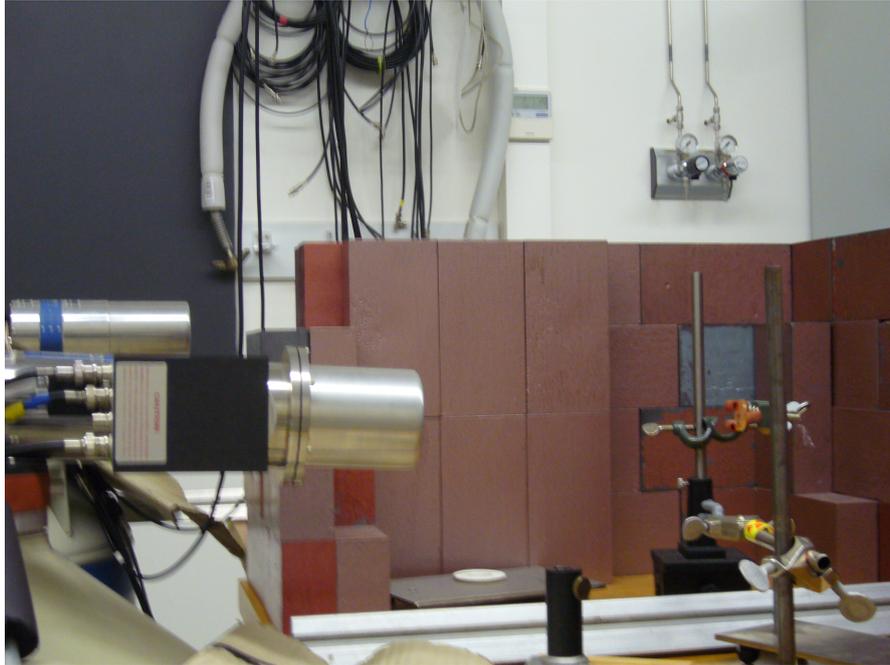
### 1.2.8 Messanordnung

Die Messung der Dopplerverbreiterung benötigt einen  $\gamma$ -Detektor mit hoher Energieauflösung, da die Energieverschiebung relativ klein ist. Ein Elektron mit einer kinetischen Energie von 10eV verursacht eine Dopplerverbreiterung von etwa 1.5 keV. Es müssen daher hochauflösende Ge-Detektoren verwendet werden. Die Ge-Detektoren werden mit flüssigem Stickstoff gekühlt. An den Detektor wird eine hohe Spannung (einige kV) angelegt, damit die auftretenden  $\gamma$ -Quanten eine Ladungsseparation erzeugen können. Das Output-Signal wird im Vorverstärker in einen elektrischen Puls konvertiert, dessen Amplitude der  $\gamma$ -Energie entspricht. Der elektrische Puls wird im Hauptverstärker weiter verstärkt, und dann in einem schnellen Analog-Digital-Wandler (ADC) digitalisiert. Die entsprechende Impulshöhe wird in einen Vielkanalanalysator eingelesen und gespeichert (Abb. 12 und 13).



**Abbildung 12:** Schematischer Aufbau der 1-dimensionalen Dopplerverbreiterung [5]

Das Messsystem reagiert sehr empfindlich auf äußere Einflüsse, wie z.B. die Temperatur. Deswegen wird das Labor auf einer Temperatur von  $21 \pm 1^\circ\text{C}$  gehalten und darüber hinaus die Messapparatur durch einen digitalen Stabilisator stabilisiert.



**Abbildung 13:** Messanlage der 1-dimensionalen Dopplerverbreiterung

Bei der Messung der 1-dim. Dopplerverbreiterung tritt ein sehr hoher Untergrund auf. Einer der Gründe dieser Hintergrundstrahlung ist das  $1.27\text{MeV}$   $\gamma$ -Quant beim  $\beta$ -Zerfall. Mit Anwendung der koinzidenten-Dopplerverbreiterung-Technik kann die Hintergrundstrahlung dramatisch reduziert werden. Dazu wird ein zweiter Detektor verwendet. Erst wenn beide Detektoren ein Signal empfangen, wird das Signal gespeichert (gezählt). Damit kann man den Untergrund um einen Faktor von etwa 100 verringern.

Wenn man für den zweiten Detektor auch einen Ge-Detektor wählt und das Spektrum in einem 2-dimensionalen Array speichert, kann die Energieauflösung um den Faktor  $\sqrt{2}$  verbessert werden [9]. Auf der Diagonalen des Arrays liegen die Ereignisse mit  $E=E_1+E_2=1.022\text{MeV}$  (Siehe Abb. 14 und Abb. 15).

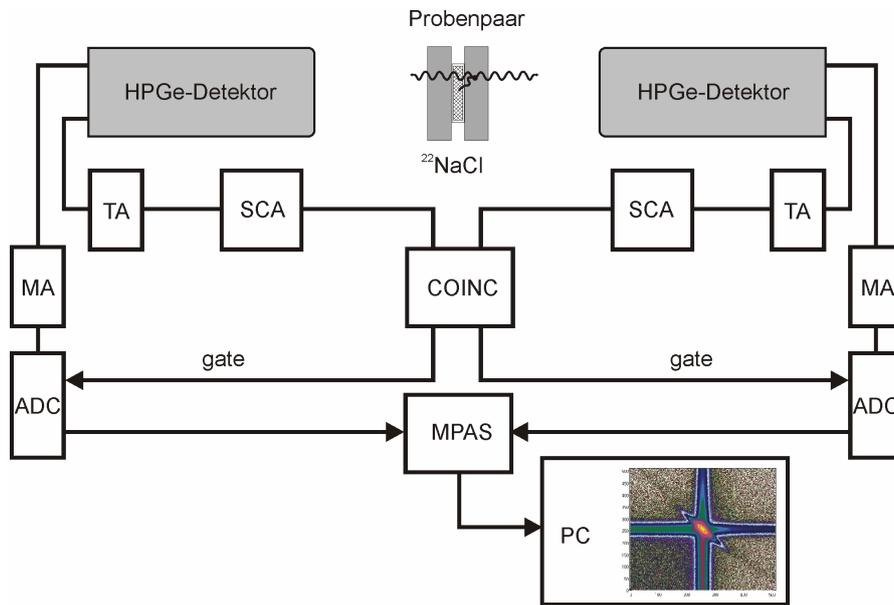


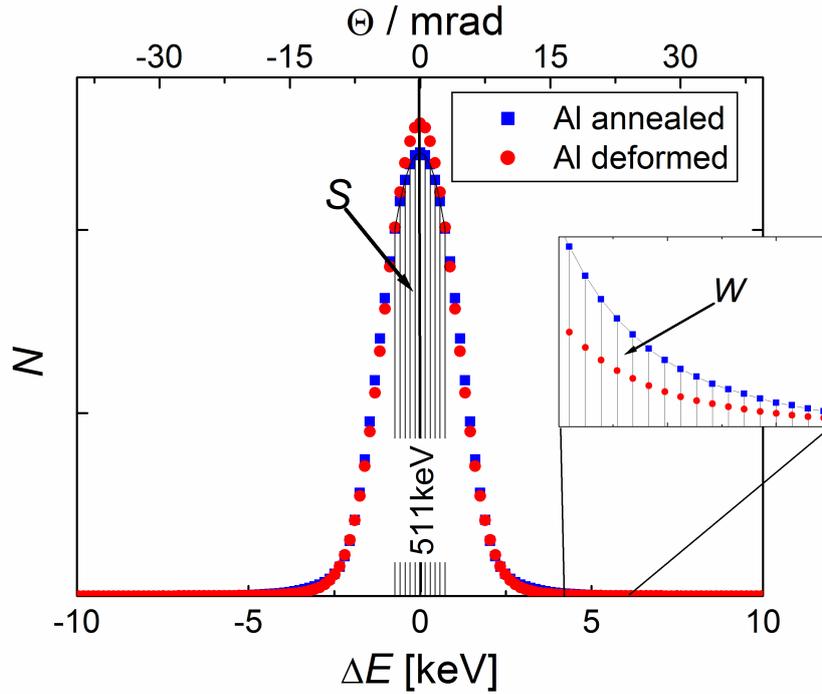
Abbildung 14: Schematischer Aufbau des 2-DDB Messplatzes [10]



Abbildung 15: Messanordnung der 2-dimensionalen Dopplerverbreiterung

### 1.2.9 Auswertung

Zur Auswertung werden die spezifischen Kurven-Parameter  $S$  und  $W$  eingeführt. Der  $S$ -Parameter wird im Mittelbereich des Spektrums berechnet, wo die Energieverschiebung der Valenzelektronen liegt (Siehe Abb. 16).



**Abbildung 16:** Dopplerspektrum von reinem und stark verformtem Aluminium. Die Spektren sind auf gleiche Fläche normiert. [10]

$$S = \frac{A_s}{A_0} \quad (23)$$

$$A_s = \int_{E_0 - E_s}^{E_0 + E_s} N_D dE \quad (24)$$

- $N_D$  Anzahl der Ereignisse
- $A_s$  und  $A_w$  Fläche des Valenz- und Rumpf-Anteils
- $A_0$  gesamte Fläche.

Der W-Parameter wird im Bereich weit weg vom Zentrum berechnet, wo die Energieverschiebung der Rumpfelektronen liegt

$$W = \frac{A_w}{A_0} \quad (25)$$

$$A_w = \int_{E_2}^{E_1} N_D dE. \quad (26)$$

### 1.3 Dilatometrie

Eine andere effektive Messmethode um die freien Volumendefekte in einer Probe zu bestimmen ist die Dilatometrie. Durch thermische Anregung können die Atome in den freien Volumen schwingen. Die von thermischer Expansion verursachte Längenänderung weicht von einer defekt-freien Probe ab. Die makroskopische Längenänderung wird gegen die Temperatur aufgetragen. Durch den Vergleich mit der defektfreien Kurve erhält man die relative Längenänderung. Man kann von der relativen Längenänderung auf die Volumenänderung zurückschließen.

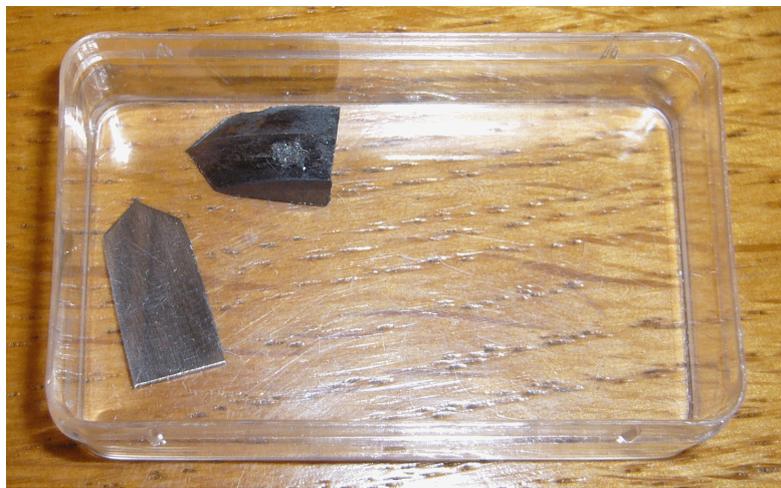
$$\frac{\Delta V}{V} = 3 \frac{\Delta l}{l} \quad (27)$$

Dieses Volumen entspricht den freien Volumendefekten in der Probe. Traditionelle Dilatometer arbeiten mit optischen Interferometern: die Längenänderung wird durch die Interferenz zweier Laserstrahlen, welche an zwei achsial versetzten Positionen einer Probe reflektiert werden, bestimmt [11].

## 2 Materialeigenschaften der untersuchten Proben

### 2.1 Armco-Eisen

Armco-Eisen ist technisch reines Eisen (Abb. 17) und enthält einen Fe-Anteil von 99,8 bis 99,9 Prozent. Die wichtigsten Begleitelemente sind C(0,009%), Mn(0,06%), P(0,009%), S(0,007%)<sup>1</sup>[12]. Sie spielen eine wichtige Rolle bei den Ausheilprozessen, weil sie einen großen Einfluss auf die Defekte haben. Sie können für die Bewegung der Leerstellen und Versetzungen Hindernisse darstellen, weiters können auch auf einem Gitterplatz Platz nehmen und dabei eine Gitterverzerrung verursachen.



**Abbildung 17:** Die verwendete Proben nach HPT-Verformung.

Die Ausgangsprobe ist münzförmig mit einem Durchmesser von 30 mm und einer Dicke von 10 mm. Vor der Verformung wurde sie bei 800 °C 1 Stunde lang gegläht. Die Verformung geschieht mit Hilfe der High Pressure Torsion (HPT) Methode. Die Probe wird zwischen zwei Pressstempel gebracht. Ein hoher hydrostatische Druck wird durch die zwei Pressstempel auf die Proben ausgeübt. Gleichzeitig verdreht sich ein Pressstempel relativ zum Anderen. Die dadurch entstehende Reibungskraft bewirkt eine Scherung der Probe und erzeugt eine hohe Verformung. Die Skizze der HPT-Verformung ist in Abb. 18 dargestellt. Die Probe wurde mit zehn Umdrehungen verformt. Der Druck betrug 2.8GPa. Die erzeugte Schubspannung ist gegeben durch:

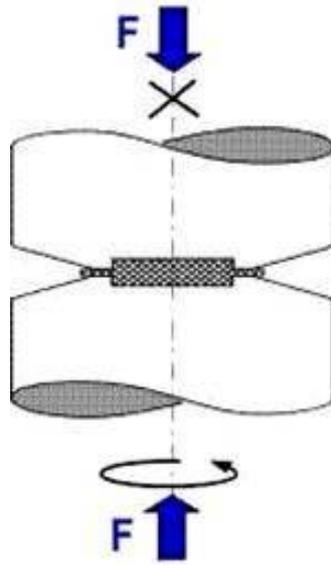
---

<sup>1</sup>in Massenprozent

$$\gamma = \frac{2\pi nr}{t} \quad (28)$$

- n Anzahl der Umdrehung
- r Abstand vom Zentrum (Messort)
- t Dicke der Probe.

Die Proben werden im Erich Schmid Institut Leoben verformt. Bei der beschriebenen Prozedur entsteht eine radial ungleichmäßige Verformung. Im Zentrum wird am wenigsten verformt, während am Rand der größte Verformungsgrad herrscht. Die Proben, die in dieser Arbeit verwendet wurden, weisen einen möglichst gleichen Verformungsgrad auf.



**Abbildung 18:** Skizze der HPT-Anordnung. Die gegeneinander verdrehten Stempel führen zur Verformung der Probe.

Bei der HPT-Verformung wurden 10 Umdrehungen ausgeführt, was einer von Mises Spannung von  $\sim 36$  entspricht.

## 2.2 Materialeigenschaften<sup>2</sup>

### 2.2.1 Allgemeine Materialeigenschaften

Eisen (Fe) hat die Ordnungszahl 26 und befindet sich in der Gruppe der Übergangsmetalle im Periodensystem der Elemente. Reines Eisen liegt bei Temperaturen unter 911 °C als  $\alpha$ -Ferrit vor, zwischen 911 °C und 1392 °C als Austenit, oberhalb 1392 °C bis zum Schmelzpunkt bei 1536 °C als  $\delta$ -Ferrit (Abb.19). Ferrit ist die kristallographische Modifikationsbezeichnung für Eisen, wenn die Fe-Atome ein kubisch-raumzentriertes Kristallgitter bilden. Unterhalb der Curie-Temperatur(769 °C) ist es ferromagnetisch, oberhalb paramagnetisch. Die physikalischen Eigenschaften von Eisen sind wichtige Faktoren für den Ablauf der Ausheilprozesse.

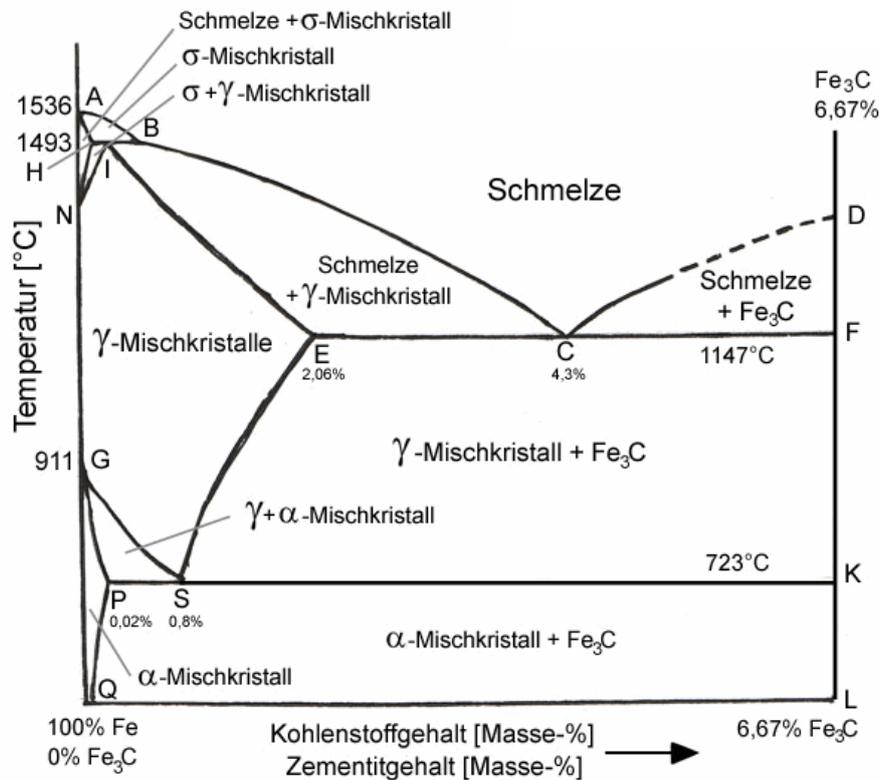


Abbildung 19: Phasendiagramm Eisen-Kohlenstoff [14]

<sup>2</sup>Dieses Kapitel basiert auf [13]

### 2.2.2 Kristalldefekte

Die Kristalldefekte werden nach ihren Dimensionen klassifiziert:

- Leerstellen und Zwischengitteratome (nulldimensionale Punktfehler, Punktdefekte)
- Versetzungen (eindimensionale Linienfehler)
- Korn- und Phasengrenzen (zweidimensionale Flächenfehler)
- Phasen und Einschlüsse (dreidimensionale Volumenfehler).

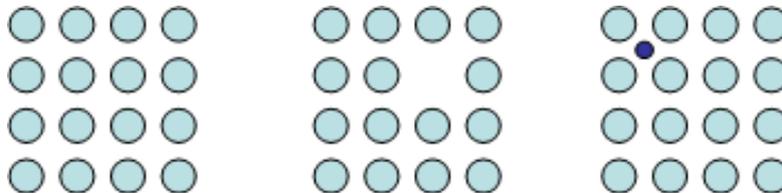
Die Kristalldefekte beeinflussen die Materialeigenschaften.

### 2.2.3 Punktdefekte

Grundsätzlich gibt es zwei Arten von Punktdefekten:

- unbesetzte Stellen auf Gitterplätzen (Leerstellen)
- besetzte Stellen auf Zwischengitterplätzen (Zwischengitteratome).

Verunreinigungen (Fremdatome im Gitter) werden auch als Punktdefekte betrachtet. Sie können auf Gitterplätzen oder Zwischengitterplätzen liegen. In Ionenkristallen kommt wegen der Ladungsneutralität keine Einzelleerstelle sondern immer ein Paar vor. Da sind ein Zwischengitteratom und eine Leerstelle (Frenkel-Defekt) oder Anionen- und Kationenleerstellen (Schottky-Defekt). Siehe Abb. 20.



**Abbildung 20:** Punktdefekte

### Thermodynamik der Punktdefekte

Befindet sich das System im thermodynamischen Gleichgewicht, liegt die freie Enthalpie im Minimum. Aus dem 1. und dem 2. Hauptsatz der Thermodynamik folgt, dass die freie Enthalpie  $G$  durch

$$G = U + pV - TS \quad (29)$$

- $U$  innere Energie
- $p$  Druck
- $V$  Volumen
- $T$  Temperatur
- $S$  Entropie.

gegeben ist.

Im Minimum ist  $dG$  gleich Null.

$$dG = dU - TdS - SdT + pdV + Vdp = 0 \quad (30)$$

Der Druck und die Temperatur werden experimentell konstant gehalten, die  $dT$  und  $dp$  Terme fallen daher weg:

$$dG = dU - TdS + pdV = dH - TdS = 0 \quad (31)$$

Die Änderung der freien Enthalpie, die von der Leerstellenbildung erzeugt wird, ist gegeben durch:

$$\Delta G = nH_B^L - T(nS_B^L + S_k) \quad (32)$$

- $n$  Anzahl der erzeugte Leerstellen
- $H_B^L$  Enthalpie für die Bildung einer Leerstelle
- $S_B^L$  Entropie für die Bildung einer Leerstelle
- $S_k$  Konfigurationsentropie.

Leitet man die Gleichung nach der Anzahl der Leerstellen  $n$  ab, soll sie die Gleichung 31 erfüllen.

$$\frac{\Delta G}{dn} = H_B^L - TS_B^L + T \frac{dS_k}{dn} \quad (33)$$

Der letzte Term ist näherungsweise gleich:

$$T \frac{dS_k}{dn} = -k \ln c_L^a \quad (34)$$

- $k$  Boltzmannkonstante
- $c_L^a$  Leerstellen-Konzentration.

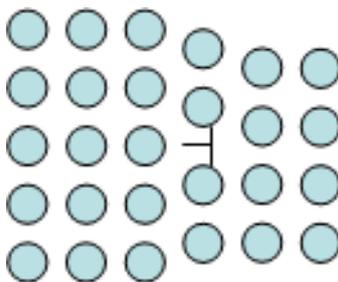
Wird Gl. 35 in Gl. 33 eingesetzt, bekommt man die Leerstellen-Konzentration im thermodynamischen Gleichgewicht:

$$c_L^a = \exp \frac{S_B^L}{k} \exp \frac{-H_B^L}{kT} \quad (35)$$

In der jeweiligen Ausheilstufe wird die Probe nach der Wärmebehandlung langsam abgekühlt. Die entstehenden thermischen Leerstellen haben genügend Zeit, um aus der Probe auszuwandern. Sie können auch von atomaren Strukturdefekten (Fremdatomen) aufgefangen werden.

#### 2.2.4 Versetzungen

Ist der perfekte Kristallaufbau entlang einer Linie gestört, dann spricht man von Versetzungen (Siehe Abb. 21).



**Abbildung 21:** Stufenversetzung

Zwei wichtige Parameter werden verwendet um die Versetzungen zu beschreiben, nämlich Versetzungslinien  $s$  (die Linien, wo die Atomhalbebene endet) und der Burger's Vektor  $b$  (der Betrag und die Richtung der von Versetzungen erzeugte Atomebeneverzerrung). Es gibt zwei Arten von Versetzungen:

- Stufenversetzung, der Burgersvektor und die Versetzungslinie stehen senkrecht zueinander
- Schraubenversetzung, der Burgersvektor und die Versetzungslinie stehen parallel zueinander.

In der Praxis kommt meistens eine Mischung aus Stufenversetzungen und Schraubenversetzungen vor.

Versetzungen können sich bewegen. Die Ebene, an der sich eine Versetzung entlang bewegt, nennt man Gleitebene und ihre Normale  $m$  ist gegeben durch

$$m = s \times b. \quad (36)$$

Bei Schraubenversetzungen, bei welchen  $b$  und  $s$  parallel sind, gibt es keine definierte Gleitebene und sie können die Gleitebene wechseln (Quergleitung). Die Versetzungen können zur Oberfläche wandern und damit aus dem Kristall austreten.

### 2.2.5 Korngrenzen

Eine Korngrenze ist der Trennungsbereich zwischen unterschiedlich orientierten aber gleichen Kristallstrukturen. Siehe Abb. 22.

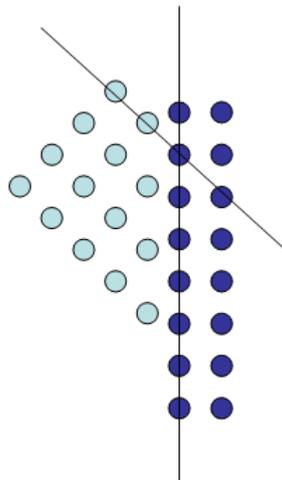


Abbildung 22: Korngrenze

Man unterscheidet zwischen Großwinkelkorngrenzen und Kleinwinkelkorngrenzen:

- Ist im Grenzbereich, wo die zufällig orientierten Kristallbereiche gegeneinander stoßen, der Orientierungsunterschied größer als  $15^\circ$ , spricht man von einer Großwinkelkorngrenze
- Wenn der Orientierungsunterschied kleiner als  $15^\circ$  ist, spricht man von einer Kleinwinkelkorngrenze.

Wegen der hohen Grenzflächenenergie und der relativ schwachen Bindung ist die Korngrenze anfällig für Korrosion und Präzipitation für neue Phasen im Festkörper. Sie ist auch wichtig für den Kriechprozess.

### 2.3 Erholung, Rekristallisation, Kornvergrößerung<sup>3</sup>

Bei den metallischen Werkstoffen kann eine Wärmebehandlung zu Eigenschaftsänderungen führen. Im Anschluss an plastische Verformung kann die Wärmebehandlung die mechanischen Eigenschaften und die Mikrostruktur beeinflussen. Durch die Verformung nehmen die Festigkeit zu und die Verformbarkeit ab. Bei der Wärmebehandlung nehmen die Festigkeit ab und die Verformbarkeit zu. Die Ursache dafür ist, dass bei plastischer Verformung Versetzungen erzeugt werden. Bei der Glühung werden sie umgeordnet und beseitigt, dies führt zu einer Festigkeitsabnahme.

Es gibt grundsätzlich zwei unterschiedliche Ursachen des Festigkeitsverlustes, nämlich Erholung und Rekristallisation.

Unter Rekristallisation versteht man die neue Gefügebildung bei der Wärmebehandlung des verformtes Metalles. Großwinkelkorngrenzen entstehen und bewegen sich unter Beseitigung der Verformungsstruktur. Bei der Rekristallisation unterscheidet man unstetige Rekristallisation (primäre Rekristallisation) und stetige Rekristallisation. Die primäre Rekristallisation ist charakterisiert durch Keimbildung und Keimwachstum. In diesem Fall ist die Versetzungsdichte nicht gleichmäßig verteilt. Sie werden unstetig von diskreten Körnern beseitigt.

Erholung ist lediglich eine Auslöschung und Umordnung der Versetzungen.

#### 2.3.1 Erholung

Findet die Verformung bei niedriger Temperatur statt, liegt die dabei entstehende Mikrostruktur im mechanischen Gleichgewicht vor. Der verformte Zustand eines Materials ist grundsätzlich instabil, da das System sich nicht im Gleichgewicht befindet. Wenn man die Temperatur erhöht, findet eine Wanderung der Versetzungen statt (z.B. Quergleiten und Klettern). Die Versetzungen verlassen ihre ursprüngliche Ebene und versuchen auf eine energetisch günstigere Position zu gelangen. Sie werden sich gegenseitig auslöschen oder den Kristall verlassen. Die Versetzungsdichte nimmt ab. Diesen Vorgang bezeichnet man als Erholung. Die Erholung beruht auf der Wechselwirkung der Versetzungen untereinander. Diese Wechselwirkungen haben eine lange Reichweite. Je nach Vorzeichen (parallel oder antiparallel) der Versetzungen kommt es zu einer abstoßenden oder anziehenden Wechselwirkung. Das Ausmaß der Erholung hängt von der Art und ursprünglichen Anordnung der Versetzungen ab. Die Erholung läuft durch thermische Aktivierung ab, ist bei kleinen Glühzeiten schon deutlich zu erkennen und nimmt exponentiell mit der Zeit ab.

---

<sup>3</sup>Dieses Kapitel basiert auf [15]

### 2.3.2 Keimbildung

Die Keimbildung findet erst statt, wenn die Instabilitätsbedingungen erfüllt sind.

- **Thermodynamische Instabilität:** Darunter versteht man, dass der Keim mindestens eine kritische Größe haben muss, sodass die Vergrößerung des Keimes zu einer Verringerung der freien Enthalpie führt. Die treibende Kraft der Keimbildung ist zu klein um Rekristallisation auszulösen. Deshalb ist davon auszugehen, daß bereits im verformten Gefüge ein überkritischer Keim (Subkorn oder Zelle) vorhanden ist. Es ist notwendig, im Erholungsvorgang solche Zellen als Keime zu aktivieren
- **Mechanische Instabilität:** Es muss ein lokales Ungleichgewicht des Kraftfeldes herrschen. Diese Bedingung ist erfüllt durch eine inhomogene Versetzungsverteilung oder durch lokal große Subkörner
- **Kinetische Instabilität:** Die Grenzfläche des Keims muss beweglich sein. Das ist aber nur bei einer Großwinkelkorngrenze möglich.

Die Instabilitätsbedingungen sind oft lokal erfüllt. In bestimmten Regionen des verformten Gefüges ist die Keimbildung stark bevorzugt, insbesondere bei Verformungsinhomogenitäten und an vorhandenen Großwinkelkorngrenzen.

Das Wachstum des Subkorns im Bereich der Verformungsinhomogenität führt zu einer weiteren Steigerung des Orientierungsunterschiedes. Dadurch wird die Beweglichkeit der Korngrenze größer.

### 2.3.3 Rekristallisation

Rekristallisation ist charakterisiert durch Keimbildung und Keimwachstum. Im Allgemeinen wirkt immer eine treibende Kraft auf eine Korngrenze, um die freie Enthalpie  $G$  des Kristalls durch die Bewegung der Korngrenze zu vermindern. Verschiebt sich ein Flächenelement mit Fläche  $A$  um eine kleine Strecke  $dx$ , so ändert sich die freie Enthalpie um den Betrag

$$dG = -pdAdx = -pdV. \quad (37)$$

Damit ergibt sich für die treibende Kraft  $p$

$$p = -dG/dV. \quad (38)$$

Die treibende Kraft für die primäre Rekristallisation ist die in den Versetzungen gespeicherte Energie. Das Korn wird in das verformte Gefüge hinein wachsen. Das Gebiet, das die Korngrenze hinter sich gelassen hat, behält nur noch eine geringe Versetzungsdichte.

Die Energie einer Versetzung pro Längeneinheit ist gegeben durch

$$E_v = \frac{1}{2}Gb^2 \quad (39)$$

- $G$  Schubmodul.
- $b$  Burgersvektor.

Damit ergibt sich die treibende Kraft der primären Rekristallisation zu

$$p = \rho E_v = \frac{1}{2}\rho Gb^2 \quad (40)$$

- $\rho$  Versetzungsdichte.

Die zurückbleibende Versetzungsdichte wird vernachlässigt.

Die treibende Kraft des Kornwachstums stammt aus sich selbst, nämlich um die Korn-  
grenzfläche zu verringern. Man unterscheidet unstetiges Kornwachstum von stetigem  
Kornwachstum.

### Unstetiges Kornwachstum

Ein sehr großes Korn (als Würfel angenommen) befindet sich in einer Umgebung von  
mehreren kleinen Körnern. Das Korn wächst in die kleineren Körner hinein. In einem  
einfachen Fall, ist das Korn würfelförmig mit dem Durchmesser  $d$  und der spezifischen  
Korngrenzenenergie  $\gamma$ . Die treibende Kraft auf eine, ein solches Gefüge überstreichende,  
Korngrenze beträgt:

$$p = \frac{3d^2\gamma}{d^3} = \frac{3\gamma}{d} \quad (41)$$

Der Faktor 3 kommt daher, dass jede der sechs Würfelflächen zu zwei angrenzenden  
Körnern gehört. Die treibende Kraft bei der unstetigen Kornvergrößerung ist um eine  
Größenordnung kleiner als bei der primären Rekristallisation. Aus diesem Grund läuft  
die Kornvergrößerung viel langsamer und erst bei hohen Temperaturen ab.

### Stetiges Kornwachstum

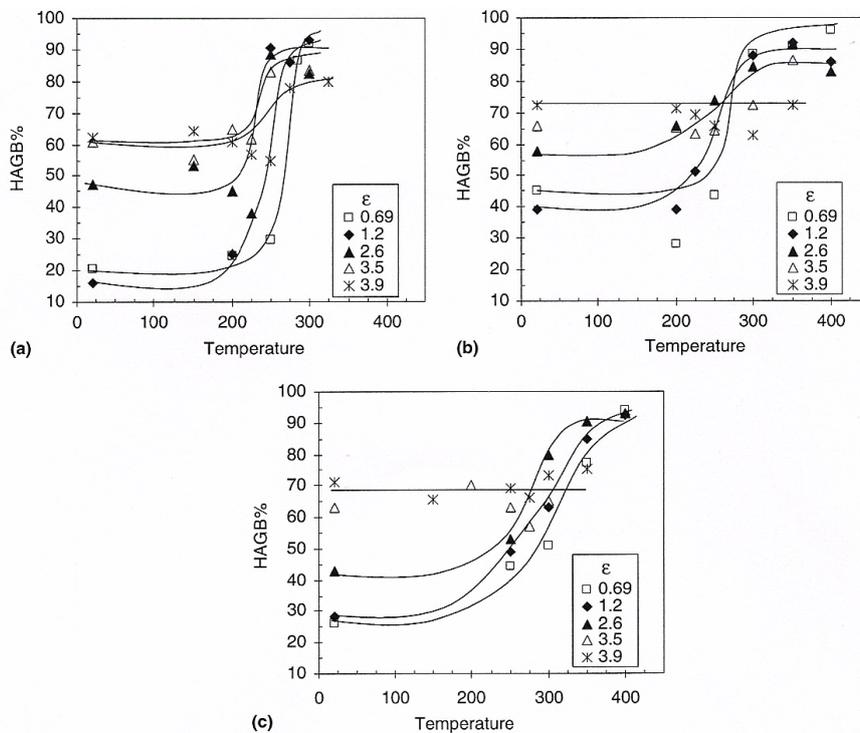
Die gekrümmte Oberfläche versucht sich zu begradigen und bewirkt dabei eine Kraft  
in Richtung ihres Krümmungsmittelpunktes (Krümmungsradius  $R$ ). Die treibende Kraft  
wirkt als Druck auf der gekrümmten Oberfläche

$$p = \frac{8\pi\gamma dR}{4\pi R^2 dR} = \frac{2\gamma}{R} \quad (42)$$

Ist die Krümmung einer Korngrenze sehr klein, besitzt sie damit einen großen Krümmungsradius. Die treibende Kraft des stetigen Kornwachstums ist 5-10 mal kleiner als die des unstetigen Kornwachstums, so daß der Verlauf auch viel langsamer ist, als bei unstetigem Kornwachstum.

### 2.3.4 Das stetige und unstetige Kornwachstum<sup>4</sup>

In der Literatur wird das stetige und unstetige Kornwachstum von Aluminiumlegierungen Al(Fe,Mn) diskutiert. Beim stetigen Wachstum bleibt der Anteil der Großwinkelkorngrenzen konstant während das unstetige Kornwachstum eine deutliche Zunahme aufweist (Abb.23).

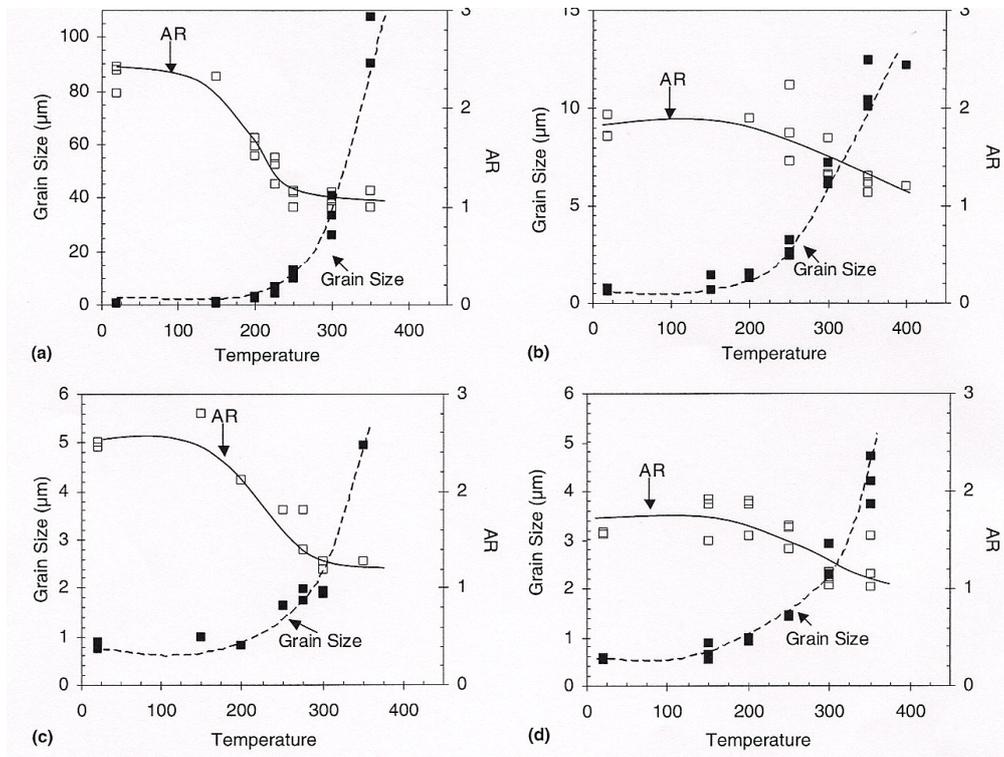


**Abbildung 23:** Änderung des Anteils der Großwinkel-Korngrenzen während der Ausheilung nach der Verformung mit unterschiedlichen Spannungsstufen; (a) Al-0.1Mg, (b) AA1200 und (c) AA8006 [17]

Die lamellenförmige Struktur wird erst rund (das Seitenverhältnis tendiert nach 1) und danach findet das eigentliche Kornwachstum statt (Abb. 24). Nach meiner Vermutung

<sup>4</sup>Dieses Kapitel basiert auf [16]

sollte sich bei Armco-Eisen ein ähnlicher Verlauf ergeben. Dies bildet die Basis meiner Analyse .



**Abbildung 24:** Änderung der Korngröße und des Gebildes(Seitenverhältnis) im stetigen Kornwachstum als Funktion der Temperatur. (a) kleinkörnige Al-0.1Mg Legierung, (b) mittelkörnige und kleinkörnige AA1200, (c) mittelkörnige AA8006 und (d)kleinkörnige AA8006.[17]

## 3 Experiment, Messergebnisse

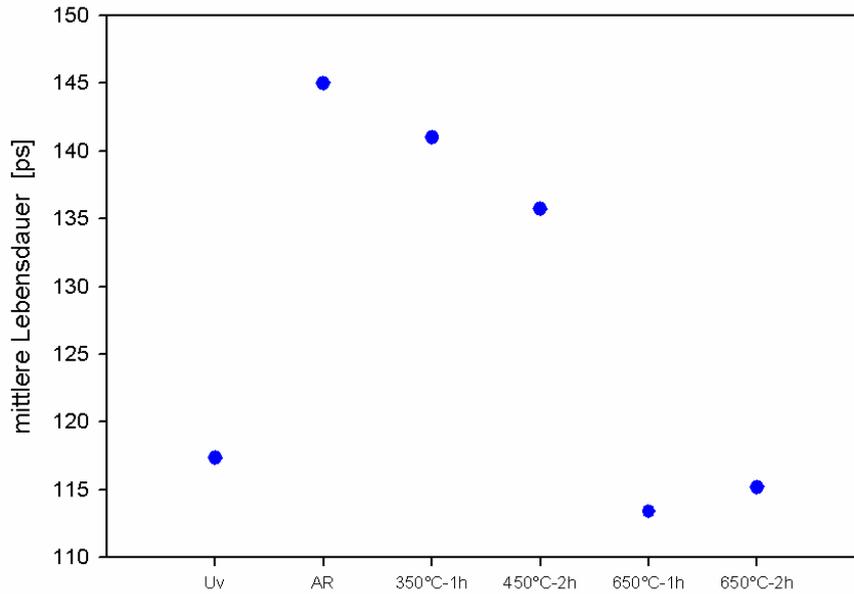
### 3.1 Erste Messserie

Im Erich Schmid Institut in Leoben wurden Armco Eisenproben HPT verformt und nach bestimmten Wärmebehandlungen Scanning Electron Microscope (SEM)-Bilder aufgenommen (Abb. 27-29). Die Aufgabenstellung bestand darin, die HPT verformten Proben nach isothermer Wärmebehandlung mit Hilfe der Positronenannihilationsspektroskopie zu untersuchen. Die Proben werden jeweils bei der vorgegebenen Temperatur wärmebehandelt. Die Wärmebehandlung erfolgt in einem Vakuumofen, um eine Oxidation der Probe bei höheren Temperaturen zu vermeiden (Abb. 25). Zuerst wird die Turbomolekularpumpe eingeschaltet. Erst wenn die Probe sich in einem guten Vakuum befindet, beginnt der Ofen mit einer Heizrate von 10K/min aufzuheizen. Nach dem Glühen wird die Probe im Ofen abgekühlt, um das Einschrecken von Leerstellen zu verhindern. Erst wenn die ganze Wärmebehandlung vorbei ist (die Probe auf Raumtemperatur abgekühlt ist), schaltet man die Vakuumpumpe aus.



**Abbildung 25:** Der für die Temperaturbehandlung benutzte Rohrofen(1), sowie der Pumpstand (2) besteht aus einer Vorvakuumpumpe und einer Turbomolekularpumpe. Ebenso zu sehen ist das Vakuumrohr aus Quarzglas mit dem darin befindlichen Ni-CrNi Thermoelement zur Temperaturmessung.

Die Lebensdauerermessergebnisse sind in Abb. 26 und Tab. 1 dargestellt. Die Bulk-Lebensdauer in Eisen beträgt 110ps [18]. Die Lebensdauer in Versetzung 150ps und in Leerstellen etwa 175ps [18].

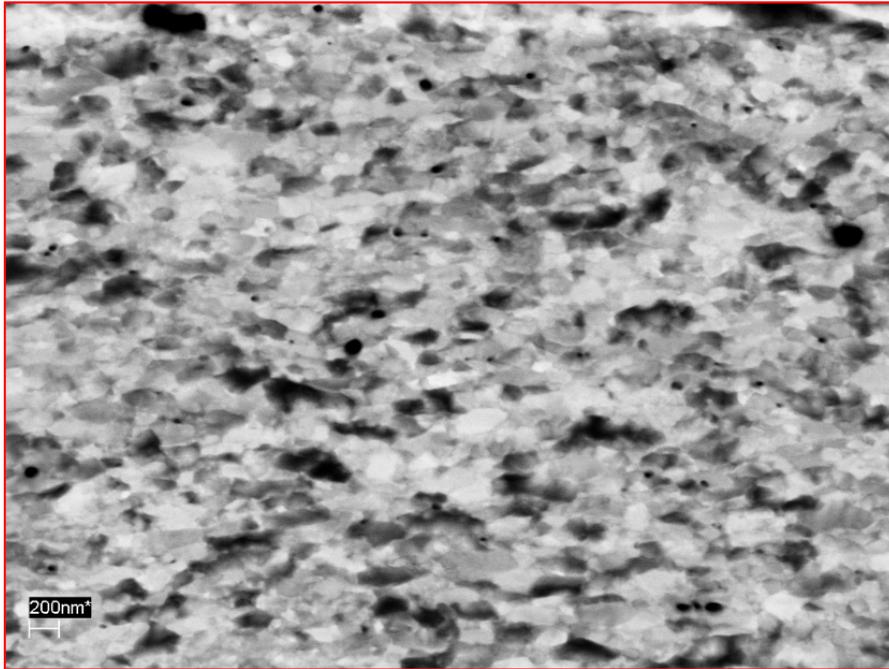


**Abbildung 26:** Abhängigkeit der mittleren Lebensdauer von der Temperaturbehandlung

**Tabelle 1:** Lebensdauern sowie zugehörige Intensitäten für die untersuchten Proben. Ebenfalls eingetragen sind die Bulklebensdauer und die mittlere Lebensdauer.

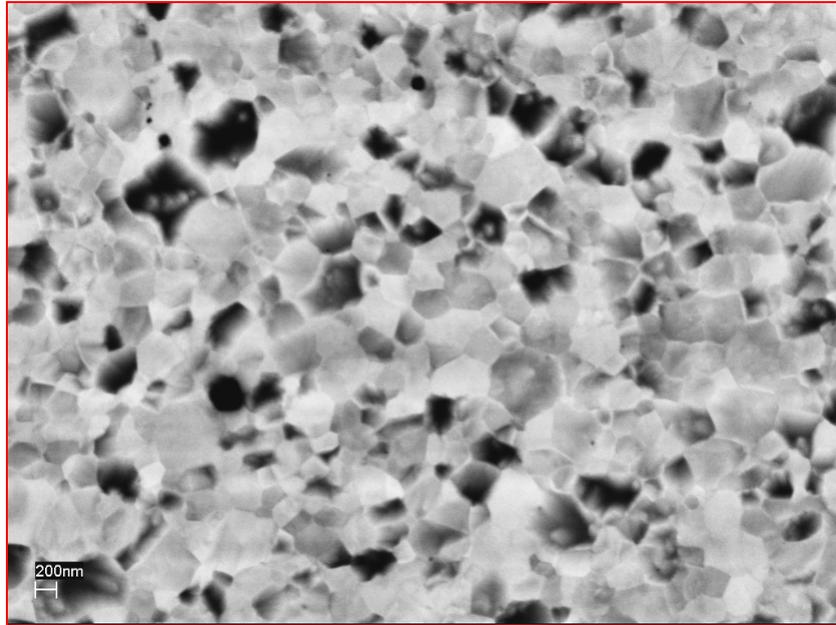
Probe	$\tau_1$	$I_1$	$\tau_2$	$I_2$	$\tau_{bulk}$	$\tau_m$
Armco Fe UV	94	71	172	29	109	117
Armco Fe 10V	-	-	-	-	-	145
Armco Fe 350°C-1h	-	-	-	-	-	144
Armco Fe 450°C-2h	-	-	-	-	-	138
Armco Fe 650°C-1h	89	77	197	23	102	113
Armco Fe 650°C-2h	88	77	196	23	101	114

Die Verformung erzeugt eine fein gekörnte Mikrostruktur. Die durchschnittliche Korngröße beträgt 250nm. Das SEM-Bild des Ausgangszustandes ist in Ab. 27 dargestellt. Man erkennt, dass nach 10 Drehungen bei der HPT-Verformung die Probe aus kleinen Körnern besteht, die in Verformungsrichtung orientiert sind. Die Messung der Positronenlebensdauer ergibt eine mittlere Lebensdauer von 146ps. Die errechnete Bulklebensdauer ist mit 137ps weit höher als 110ps. Das heißt, dass das Trapping-Modell nicht anwendbar ist. Es liegt Sättigungseinfang vor, d.h. alle Positronen sind in Defekten eingefangen.

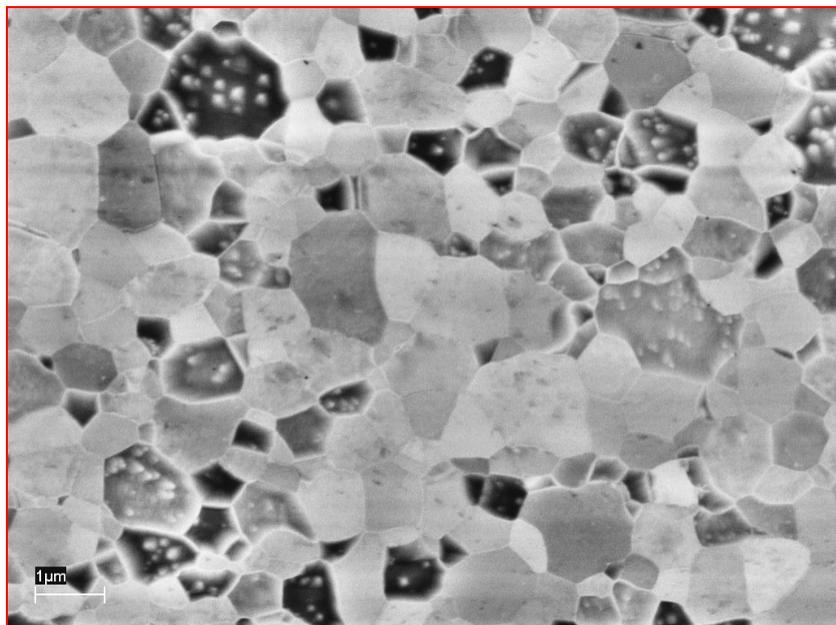


**Abbildung 27:** SEM-Bild der Proben nach HPT-Verformung

Die erste Temperaturbehandlung wurde bei 350°C für eine Stunde durchgeführt. Es ist bereits ein Kornwachstum zu erkennen (Abb. 28). Man erkennt, dass die durchschnittliche Körngröße 300nm beträgt. Die Ergebnisse der Positronenlebensdauermessungen ergeben eine mittlere Lebensdauer von 142ps. Es ist eine Abnahme im Vergleich zum Ausgangszustand (ohne Wärmebehandlung) festzustellen. Die Bulklebensdauer beträgt 136ps, das heißt es liegt noch immer vollständiges Trapping vor. Die Positronen haben in Festkörper eine Diffusionslänge von ca. 100nm. Die vorliegenden Körner haben eine Ausdehnung die etwa das 2 bis 3 fache der Diffusionslänge beträgt. Die Korngrenzen sollten einen gewichtigen Beitrag zum Trapping der Positronen liefern.



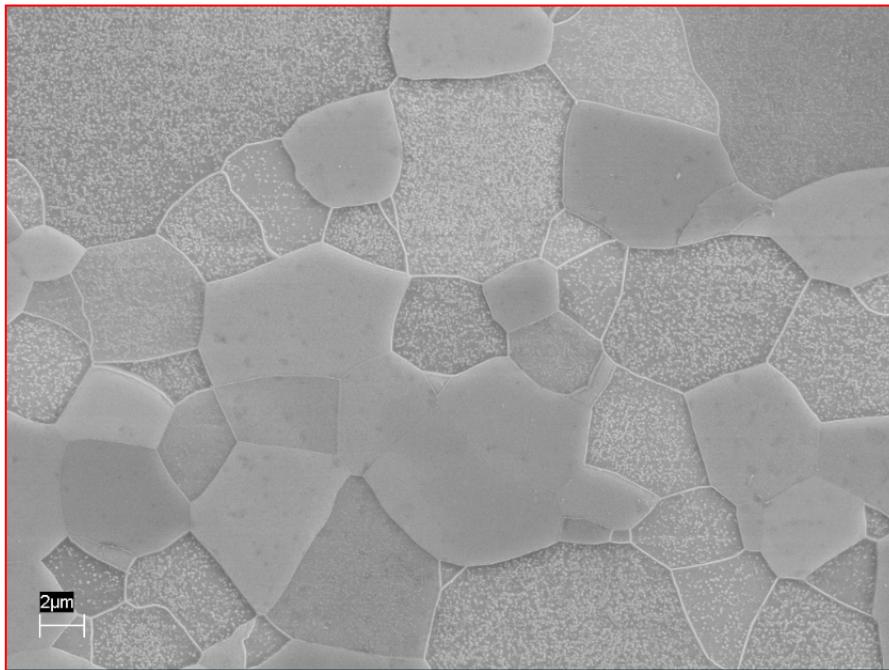
**Abbildung 28:** SEM-Bild nach Wärmebehandlung bei 350°C



**Abbildung 29:** SEM-Bild nach Wärmebehandlung bei 450°C

Die zweite Temperaturbehandlung wurde bei 450°C für zwei Stunden durchgeführt. Bei 450°C beginnt eine nennenswerte Selbstdiffusion. Der Platztausch wird häufiger, die Beweglichkeit des Systems wird größer. Das Kornwachstum ist deutlich zu erkennen, die durchschnittliche Korngröße beträgt 1µm (Abb. 29), die mittlere Positronenlebensdauer beträgt 138ps und die errechnete Bulklebensdauer ergibt sich zu 130ps. Noch immer liegt vollständiges Trapping vor.

Die dritte Temperaturbehandlung wurde bei 650°C für eine Stunde durchgeführt. 650°C entspricht der Hälfte der Schmelztemperatur. Eine starke Kornvergrößerung ist deutlich zu erkennen (Abb. 30). Die mittlere Korngröße beträgt 5µm. Die mittlere Positronenlebensdauer beträgt 113ps. Die Bulklebensdauer befindet sich in der Nähe des Sollwertes. Das heißt, dass das Trapping-Modell gültig ist. Das unverformte Armco-Eisen hat eine mittlere Positronenlebensdauer von 117 ps (siehe Tab.1). Die mittlere Lebensdauer ist hier kürzer als bei der unverformten Probe. Die 1-dim Dopplerverbreitungsspektren zeigen auch einen kleineren S-Parameter (Valenz-Anteil) und größeren W-Parameter (Rumpf-Anteil) nach 650°C-Wärmebehandlung im Vergleich zur unverformten Probe.



**Abbildung 30:** SEM-Bild nach Wärmebehandlung bei 650°C

Der S- und W- Parameter der HPT-verformten Probe nähert sich mit zunehmender Temperatur dem unverformten Zustand an (Abb.31).

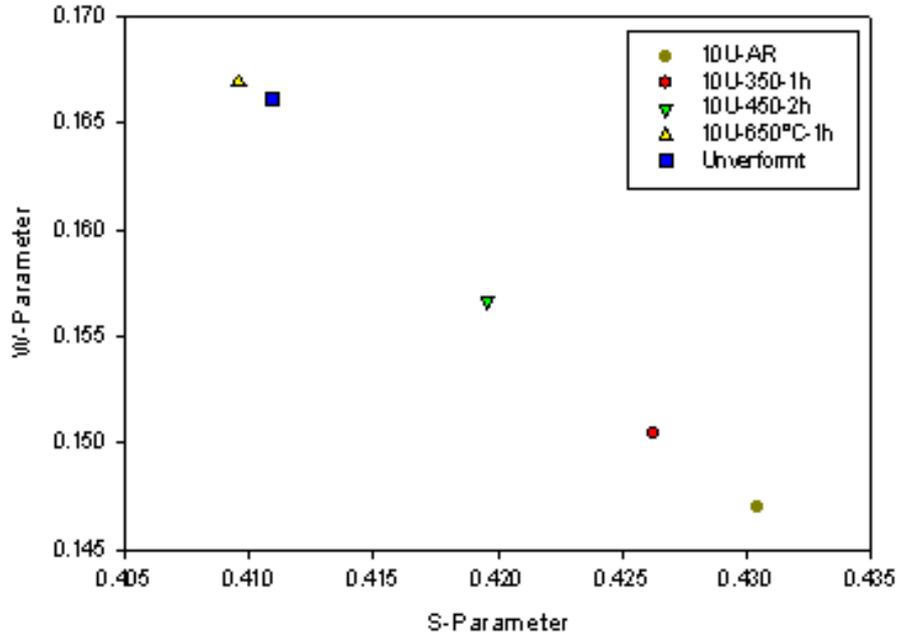
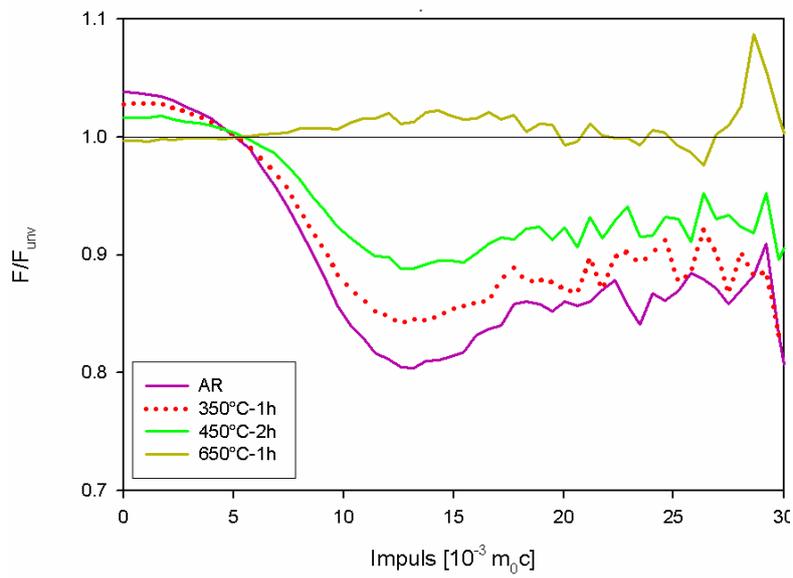
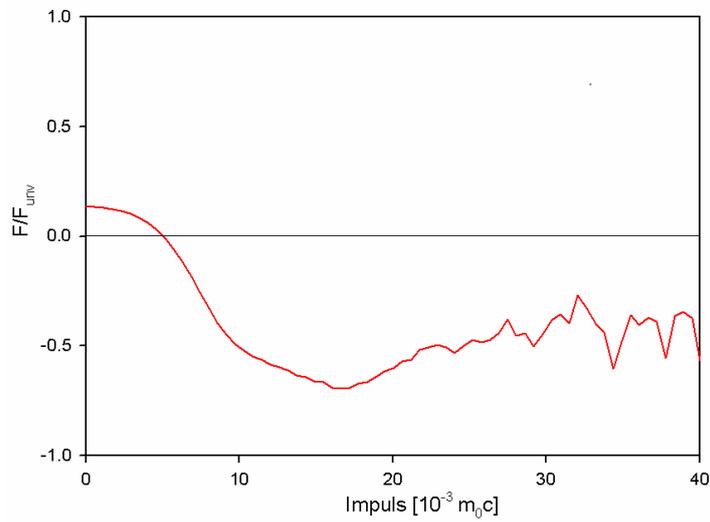


Abbildung 31: S-W Plot aus 1-dim Dopplerspektren

Die Ergebnisse der 2-dimensionalen Doppler Spektroskopie sind in Abb. 32 dargestellt. Die Messdaten sind auf die unverformte Probe normiert (die horizontale 1.0 Linie). Die verformte Probe (ohne Wärmebehandlung) hat den größten Valenzanteil und den niedrigsten Rumpfanteil. Mit zunehmender Wärmebehandlung nähern sich die Kurve dem unverformten Ausgangszustand an. Nach 650°C liegt die Messkurve beinahe auf der Normierungslinie. Abb. 33 zeigt das 2-dim-Dopplerspektrum von unverformtem Armco-Eisen, normiert auf hoch reines Eisen. Es zeigt sich, dass sich das Armco-Eisen von hoch reinem Eisen deutlich unterscheidet.



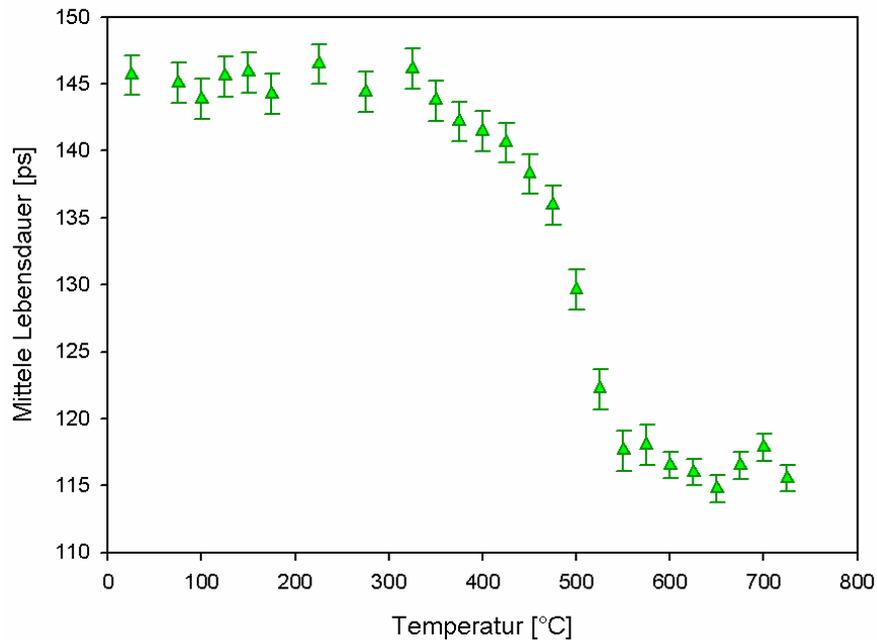
**Abbildung 32:** Auf unverformte Probe normierte Verhältniskurven aus 2d-Dopplerspektren der HPT verformten Probe nach verschiedenen Wärmebehandlungen.



**Abbildung 33:** Auf unverformte Probe normierte Verhältniskurve von Armco-Eisen aus 2 dim-Dopplerspektrum

### 3.2 Zweite Messserie

Nach der ersten Messserie haben wir uns entschlossen noch eine isochrone Temperaturbehandlung durchzuführen. Die verformte Probe wird ab  $75^{\circ}\text{C}$  mit einer Schrittweite von  $25^{\circ}\text{C}$  für jeweils 1 Stunde temperaturbehandelt. Danach wird die Probe langsam abgekühlt und die Messungen bei Raumtemperatur durchgeführt. Der Verlauf der mittleren Lebensdauer ist in Abb. 34 dargestellt.



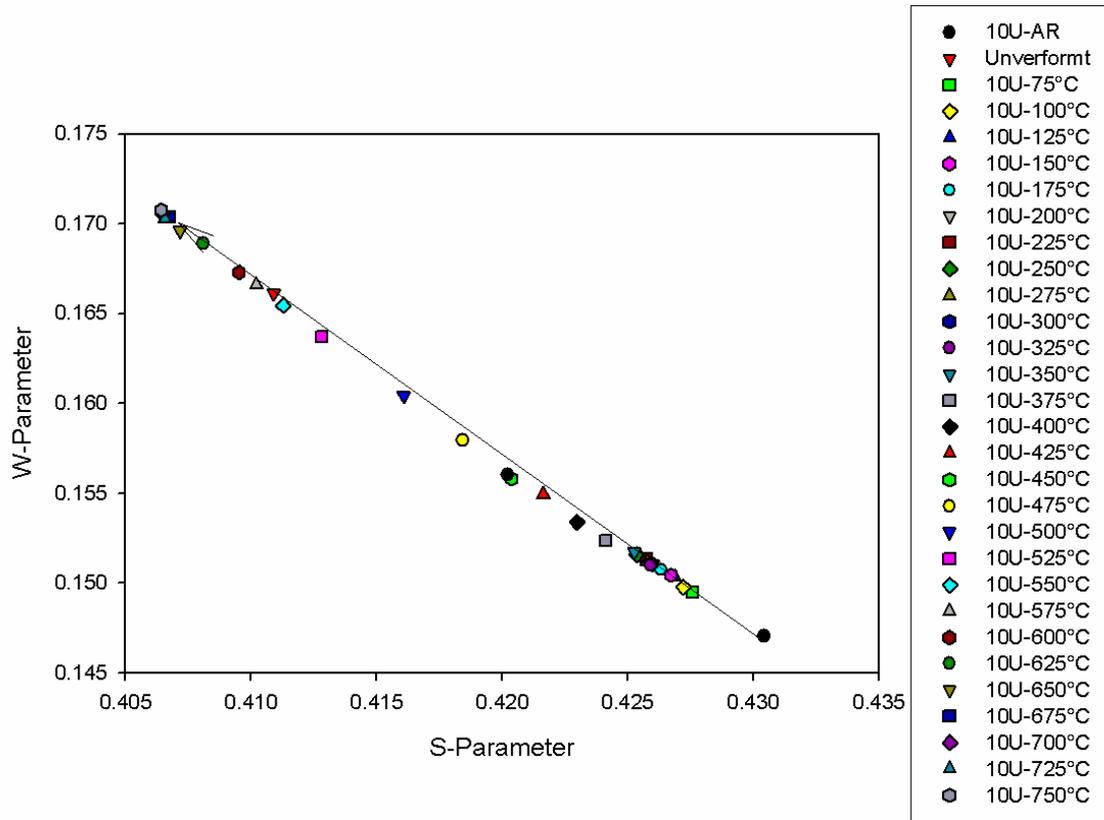
**Abbildung 34:** Mittlere Lebensdauer in Abhängigkeit von der Ausheiltemperatur

Bis  $350^{\circ}\text{C}$  bleibt die mittlere Lebensdauer konstant bei 144 ps. Ab  $350^{\circ}\text{C}$  fängt die mittlere Lebensdauer an abzunehmen. Zwischen  $450^{\circ}\text{C}$  und  $550^{\circ}\text{C}$  sinkt die mittlere Lebensdauer stark (von 138 ps auf 118 ps) ab. Ab  $550^{\circ}\text{C}$  pendelt sich die mittlere Lebensdauer um 115 ps (Abb.34) ein. Die Messwerte sind in Tab. 2 eingetragen. Erst ab  $500^{\circ}\text{C}$  befindet sich die errechnete Bulklebensdauer in der Nähe des Literaturwertes, so dass eine Aufspaltung der Lebensdauern sinnvoll ist. Die Intensität der Defektlebensdauer nimmt am Anfang mit steigender Temperatur ab. Ab  $625^{\circ}\text{C}$  schwankt sie um etwa 21%. Die Verunreinigungen im Armcon-Eisen können Leerstellen-Fremdatom Komplexe bilden. Die Leerstellenkonzentration wird bei  $650^{\circ}\text{C}$  mit Gl.(19) ermittelt (Defekteinfangsrate  $\mu_d = 4 * 10^{14}\text{s}^{-1}$  [19]). Sie beträgt etwa  $3.9 * 10^{-6}$ .

**Tabelle 2:** Lebensdauern und Intensitäten nach isochroner Wärmebehandlung

Probe	$\tau_1$	$I_1$	$\tau_2$	$I_2$	$\tau_{bulk}$	$\tau_m$
Armco Fe UV	94	70	172	30	109	117
Armco Fe 75°C	-	-	-	-	-	145
Armco Fe 100°C	-	-	-	-	-	144
Armco Fe 125°C	-	-	-	-	-	146
Armco Fe 150°C	-	-	-	-	-	146
Armco Fe 175°C	-	-	-	-	-	144
Armco Fe 225°C	-	-	-	-	-	147
Armco Fe 275°C	-	-	-	-	-	144
Armco Fe 325°C	-	-	-	-	-	146
Armco Fe 350°C	-	-	-	-	-	144
Armco Fe 375°C	-	-	-	-	-	142
Armco Fe 400°C	-	-	-	-	-	141
Armco Fe 425°C	-	-	-	-	-	141
Armco Fe 450°C	-	-	-	-	-	138
Armco Fe 475°C	91	36	162	62	126	136
Armco Fe 500°C	88	49	171	49	116	130
Armco Fe 525°C	90	60	176	37	110	122
Armco Fe 550°C	91	68	178	30	107	118
Armco Fe 575°C	94	70	180	27	109	118
Armco Fe 600°C	92	71	183	26	106	117
Armco Fe 625°C	96	78	196	20	107	116
Armco Fe 650°C	94	76	186	22	106	115
Armco Fe 675°C	94	75	190	23	107	117
Armco Fe 700°C	98	77	194	20	109	118
Armco Fe 725°C	95	76	189	21	107	116

Abb.35 zeigt den S-W-Plot aus den 1-dim Dopplerverbreiterungsmessungen. Die Messwerte werden jeweils auf die unverformte Probe normiert. In Abb.36 ist der normierte S-Parameter als Funktion der Temperaturnen dargestellt. Die Kurve zeigt einen ähnlichen Verlauf wie die mittlere Lebensdauer. Bei der Messung der S- und W-Parameter werden jeweils 20 Spektren aufgenommen, die Extrema verworfen und dann der Mittelwert gebildet. Dies führt zu einer geringeren Schwankungsbreite der Messwerte.



**Abbildung 35:** S-W Plot mit der Temperatur als Parameter

Der S-Parameter charakterisiert die Annihilation mit den Valenzelektronen. Es sinkt ab, wenn das freie Volumen der Probe abnimmt. Die Kurve zeigt einen ähnlichen Verlauf wie die mittlere Lebensdauer.

Der W-Parameter charakterisiert die Annihilation mit den Rumpfelektronen. Mit abnehmendem freiem Volumen steigt die Annihilationswahrscheinlichkeit mit Rumpfelektronen. Der W-Parameter zeigt ein gegenläufiges Verhalten zum S-Parameter, wie in Abb. 37 dargestellt ist.

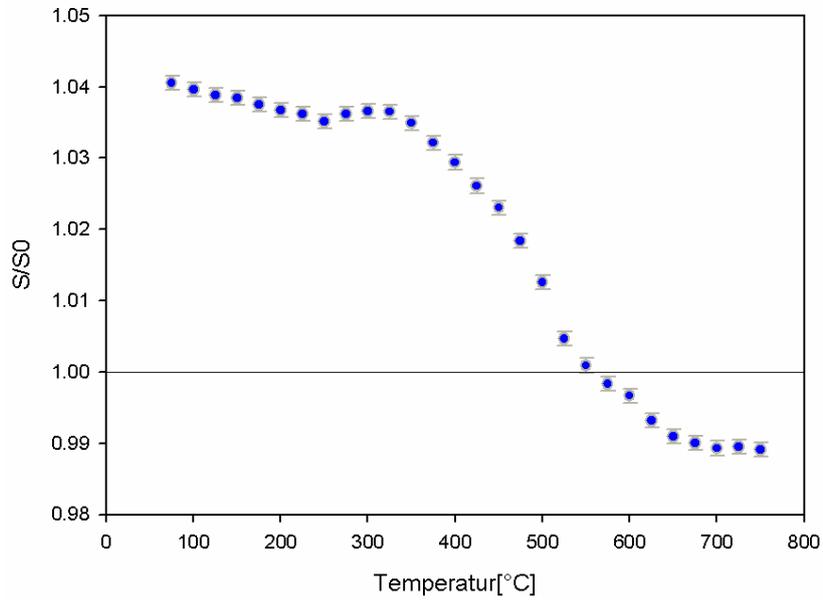


Abbildung 36: Normierter S-Parameter als Funktion der Temperatur

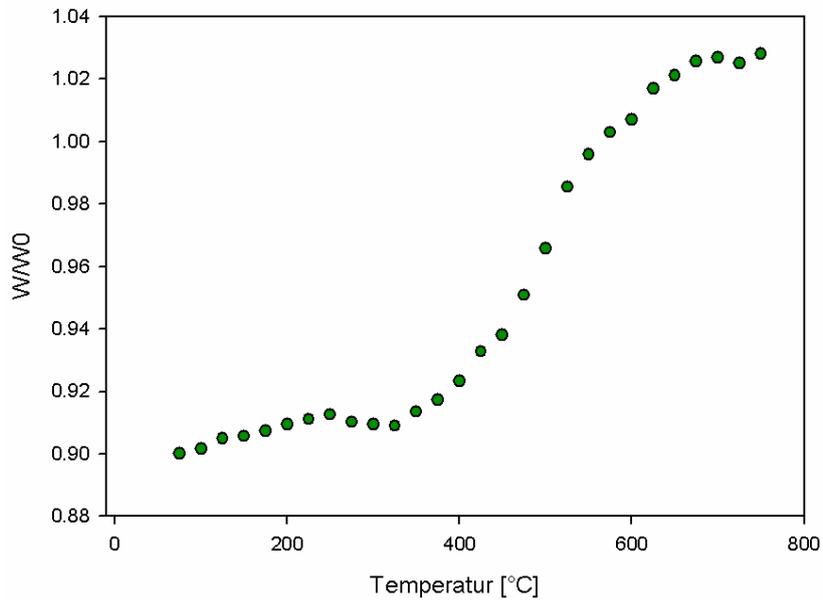
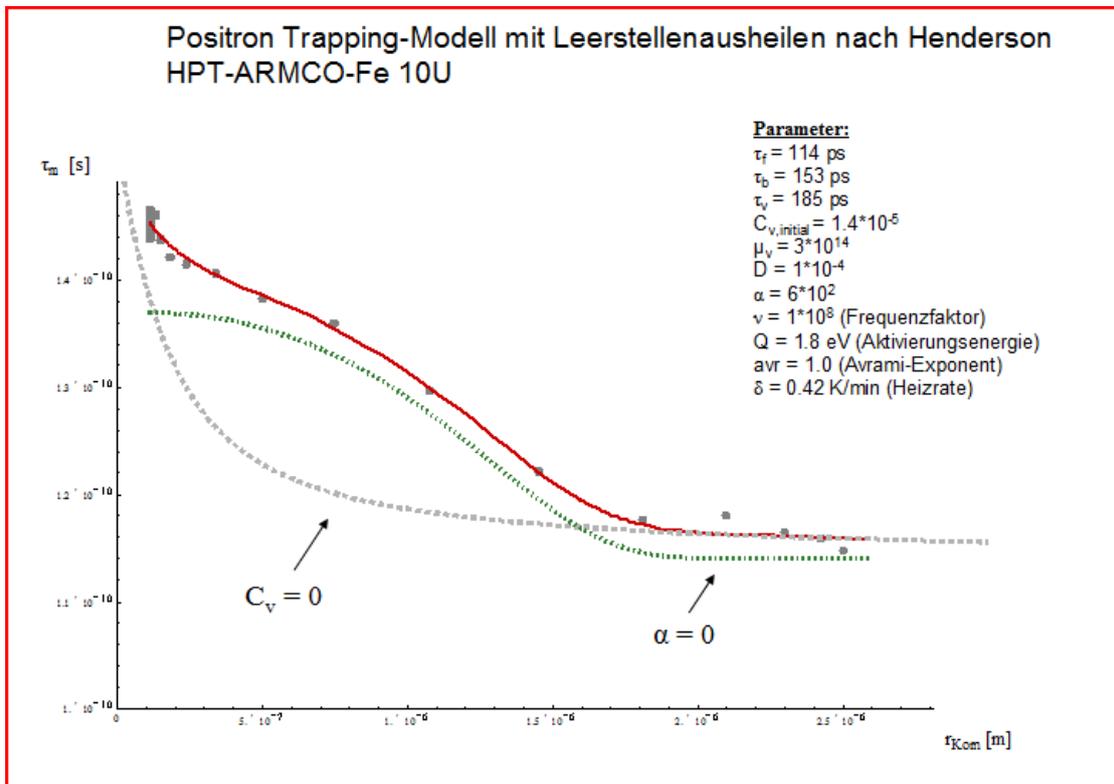


Abbildung 37: Normierter W-Parameter als Funktion der Temperatur

### 3.3 Theoretisches Positron-Trapping Modell

Ein theoretisches Positron-Trapping Modell wurde von B.Oberdorfer und R.Würschum entwickelt [20]. Es beschreibt das Verhältnis des Einfangs der Positronen in den Korngrenzen und den Punktdefekten innerhalb des Korns. Die wichtigsten Faktoren in diesem Modell sind die Korngröße und die Leerstellenkonzentration. Als Ergebnisse bekommt man die Intensität des Korngrenzen-Einfangs und des Punktdefekt-Einfangs. Es wird die mittlere Lebensdauer über die Korngröße aufgetragen. Die Anpassungskurve ist in Abb. 38 dargestellt.



**Abbildung 38:** Anpassung des theoretischen Positron-Trapping Modells an die Messpunkte

**Parameter:**

- $\tau_f$  freie Lebensdauer des Positrons im Armco-Eisen
- $\tau_b$  Lebensdauer des Positrons in der Korngrenze

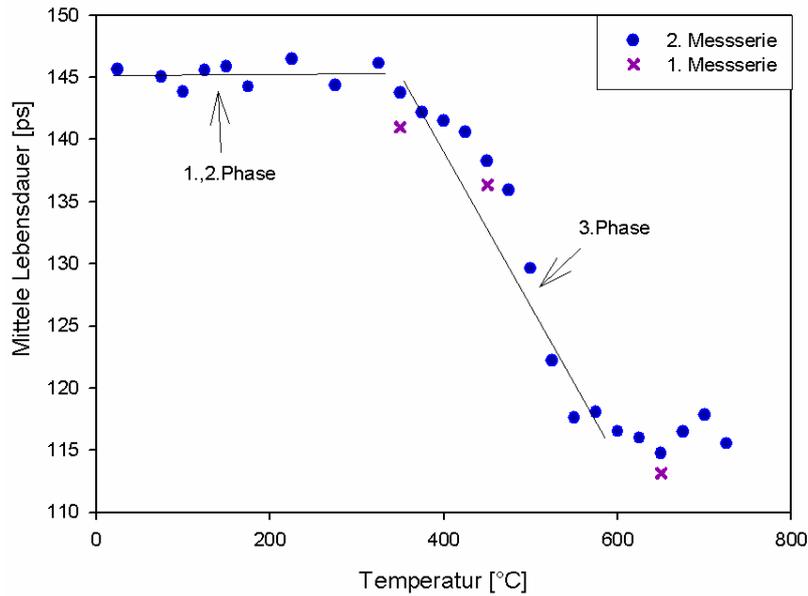
- $\tau_v$  Lebensdauer des Positrons in der Leerstelle
- $C_{v,initial}$  Leerstellenkonzentration des Ausgangszustandes
- $\mu_v$  Einfangrate des Positrons in Leerstellen
- D Diffusionskonstante
- $\alpha$  Einfangrate des Positrons in der Korngrenze
- $\nu$  Frequenzfaktor
- Q Aktivierungsenergie
- $av_r$  Avrami-Exponent, der die Keimbildungsrate und(oder) die Morphologie des Kornwachstums beschreibt
- $\delta$  Heizrate.

Die Daten aus dem Sättigungseinfangsbereich werden nicht eingesetzt, da die mittlere Lebensdauer in diesem Bereich konstant (alle Positronen werden eingefangen) ist und sich keine Information über das Kornwachstum ableiten lässt.

Das Modell lässt sich nur dann anpassen, wenn die Leerstellenausheilung gleichzeitig mit dem Kornwachstum abläuft.

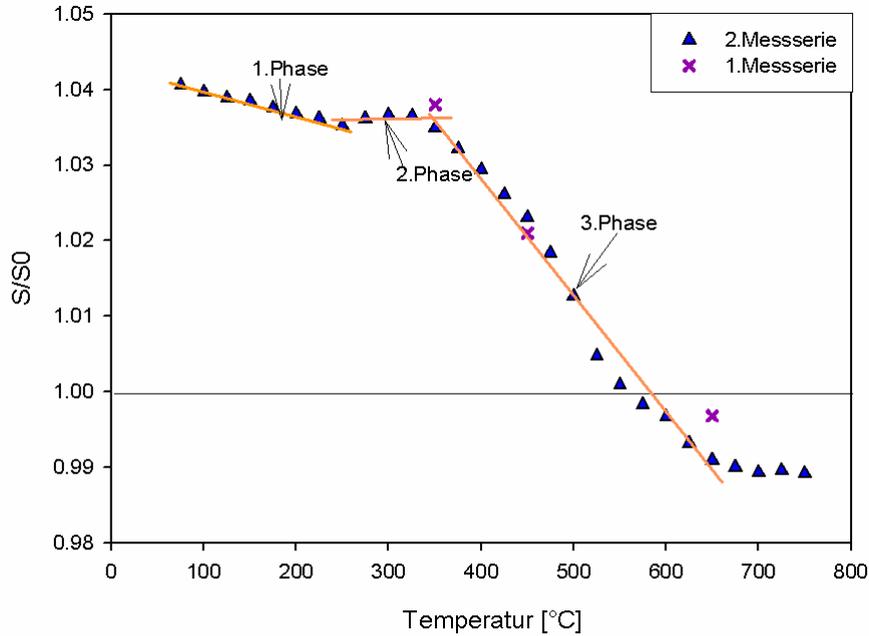
## 4 Diskussion

In Abb. 39 sind die Lebensdauer der ersten und zweiten Messserie als Funktion der Temperatur aufgetragen. In der zweiten Messserie wurde die Probe mit einer weit geringeren effektiven Heizrate (0.5K/min) als in der ersten Messserie (10K/min) aufgeheizt. Die Messpunkte der beiden Messserien liegen nahe beieinander. Daran erkennt man, dass die Heizrate im größten Teil des Ausheilverlaufes nur einen geringen Einfluss hat.



**Abbildung 39:** Mittlere Lebensdauer als Funktion der Temperatur. Die eingezeichneten Geraden dienen zur Sichtbarmachung der einzelnen Phasen

In Abb.40 ist die Abhängigkeit des normierten S-Parameters von der Temperatur dargestellt. Es sind deutlich 3 Phasen zu erkennen. Die erste Phase entspricht der Ausheilung von Leerstellen und Versetzungen, die 2. Phase dem stetigen Kornwachstum und die 3. Phase dem unstetigen Kornwachstum.

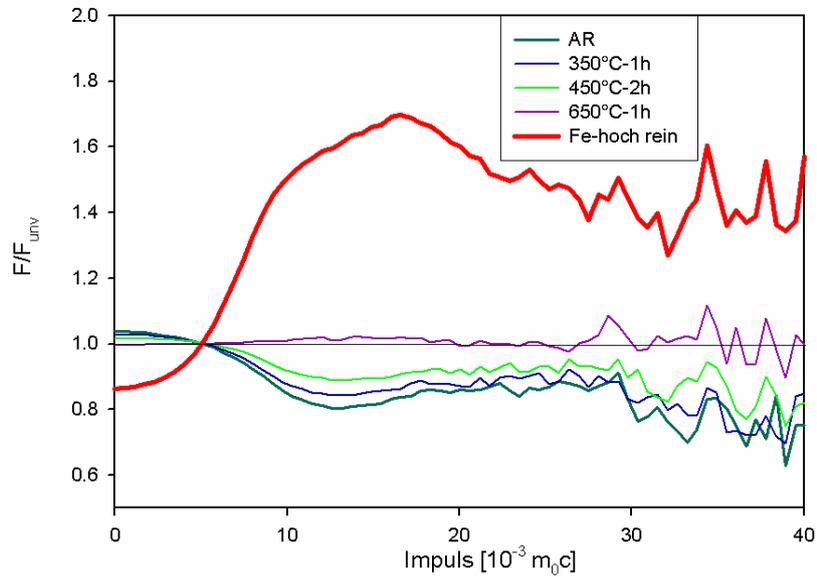


**Abbildung 40:** Normierter S-Parameter  $S/S_0$  als Funktion der Temperatur

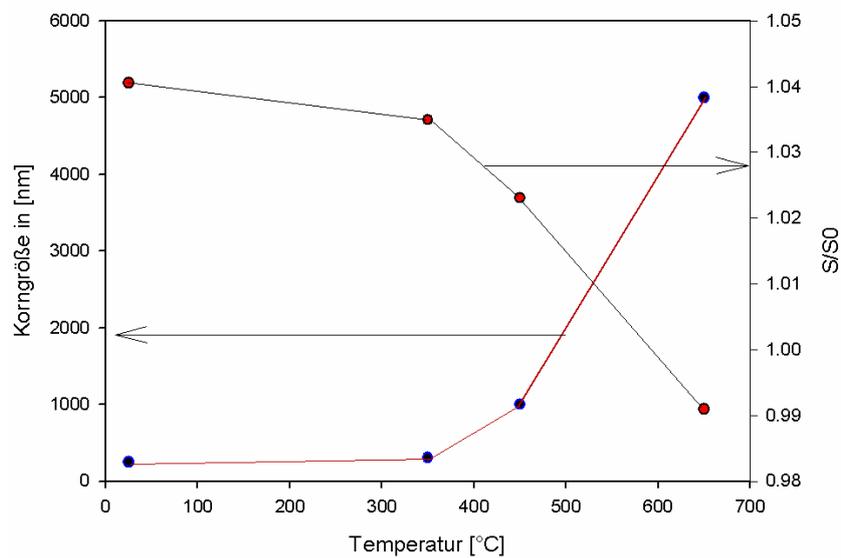
Die 2-dimensionale-Dopplerverbreiterungsmessungen (siehe Abb. 41) zeigen, dass Armo-co-Eisen sich deutlich von hoch reinem Eisen unterscheidet. Das bedeutet, dass man Verunreinigungen in Betracht ziehen muss. Die Lebensdauerermessergebnisse in Tab. 2 zeigen, dass ein deutlicher Anteil der Defekte ständig vorhanden ist, während hoch reines Eisen eine Lebensdauer von 109ps mit 99 % Intensität zeigt. Die Verunreinigungen bilden vermutlich Leerstellen-Fremdatom-Komplexe [21].

Die Korngröße (ermittelt aus den SEM-Bildern) nach der jeweiligen Wärmebehandlung ist in Abb. 42 dargestellt. Man erkennt eine starke Korrelation zwischen dem reduzierten S-Parameter und der Korngröße. Die mittlere Lebensdauer und der S-Parameter zeigen eine ähnliche Abhängigkeit von der Temperatur (Siehe Abb. 43).

In der 1. Phase (bis 200°C) heilen die ein-dimensionalen und null-dimensionalen strukturellen Defekte aus. Die Leerstellen und Versetzungen wandern aus. Die in den Versetzungen gespeicherte Energie wirkt als treibende Kraft für die primäre Rekristallisation. In dieser Phase diffundieren die Positronen aufgrund der geringen Größe der Körner ( $\sim 250\text{nm}$ ) aus der Körnern und annihilieren in den Korngrenzen und den darüberhinaus vorhandenen anderen strukturellen Defekten (vollständiges Trapping).



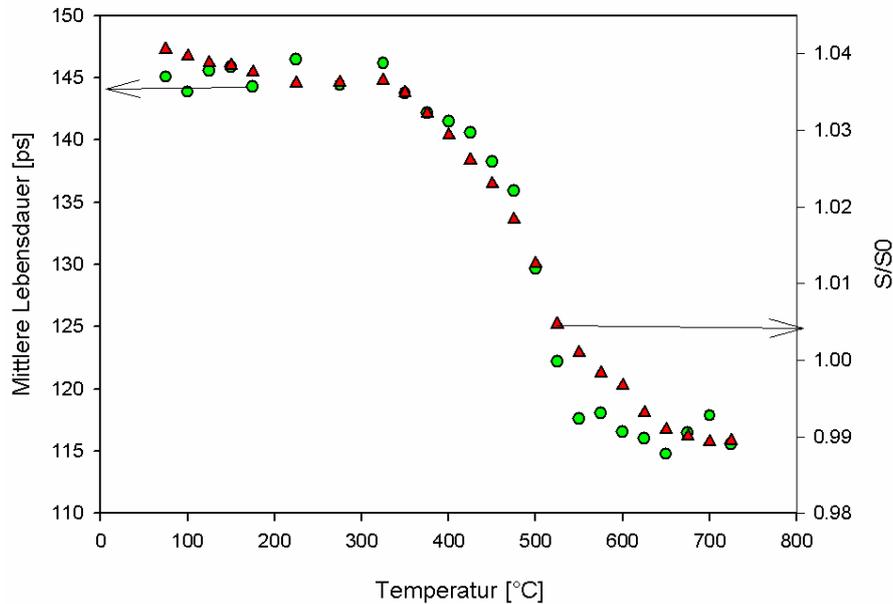
**Abbildung 41:** Verhältnisparameter  $F/F_{unv}$  der gemessenen 2-dim Dopplerspektren (normiert auf unverformtes Eisen)



**Abbildung 42:** Korngröße und normierten S-Parameter als Funktion der Temperatur

In der 2.Phase bleibt der S-Parameter bis 350°C konstant, die Lebensdauer zeigt noch immer keine Abhängigkeit von der Temperatur (vollständiges Trapping). In diesem Bereich endet vermutlich die Leerstellen- und Versetzungsauswanderung und das stetige Kornwachstum findet statt. Das stetige Wachstum ist charakterisiert durch ein gleichmäßiges und langsames Kornwachstum. Beim stetigen Kornwachstum werden vermutlich die Korngrenzflächen schrumpfen. Das bedeutet, dass die freie Volumensänderung hauptsächlich von den Korngrenzflächen herrührt. Da die Änderung der Korngrenzfläche kaum einen Einfluss auf den Valenzelektronenanteil hat, bleibt die 1-dimensionale Dopplerkurve annähernd konstant.

In der 3.Phase (350°C bis 700°C) findet neben dem stetigen Kornwachstum auch das unstetige Kornwachstum statt. Das stetige Wachstum und das unstetige Wachstum sind lokale Begriffe die oft gleichzeitig ablaufen. Das stetige Wachstum läuft viel langsamer als das unstetige Wachstum ab, da die treibende Kraft viel kleiner ist (Siehe Kapitel 2.3.3). Die Körner sind jetzt so groß, dass die Positronen auch innerhalb der Körner annihilieren. Die Lebensdauer innerhalb des Kornes kann man als Armco-Eisen-Bulklebensdauer (etwa 115ps) ansetzen. Dieser Anteil verursacht die Abnahme der mittleren Lebensdauer. Ab 700°C endet das unstetige Wachstum. Das ganze unstetige Kornwachstum hat einen S-förmigen Verlauf.

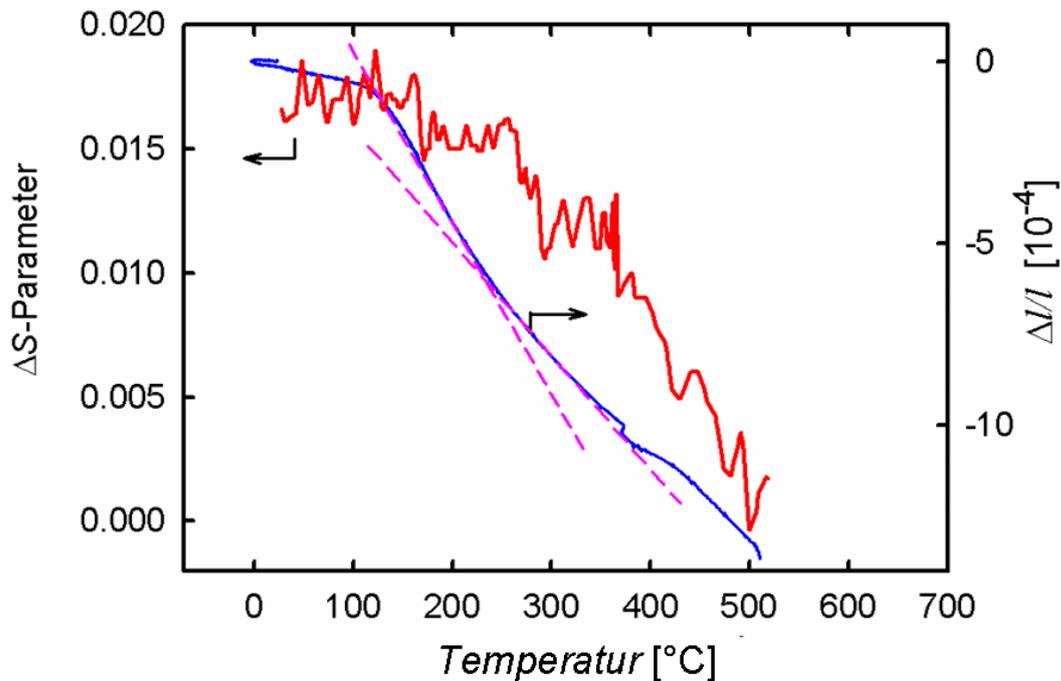


**Abbildung 43:** Mittlere Lebensdauer und normierter S-Parameter als Funktion der Temperatur

#### 4.1 Messung mit variablem hoch intensivem Positronenbeam

Von B.Oberdorfer wurden am FRM II in Garching (Deutschland) an gleichbehandelten Proben Untersuchungen mit der Positronenquelle NEPOMUC durchgeführt. Diese Quelle liefert etwa  $9 \times 10^8$  Positronen pro Sekunde mit einer Energie von 1keV. Da die Intensität dieser Quelle um etwa 2 Größenordnungen höher ist als bei einer Laborquelle sind Messungen des S-Parameters auf einer Zeitskala von Minuten möglich. Damit sind in situ Untersuchungen der Defektkinetik möglich.

Bei diesem Experiment wurde die Probe mit einer Heizrate von 4.7K/min aufgeheizt. Die 1 dimensionalen Dopplerspektren wurden bei der entsprechenden Temperatur aufgenommen. Darüberhinaus wurden auch dilatometrische Messungen bei gleichen Temperaturen durchgeführt [22]. Die Ergebnisse sind in Abb.44 dargestellt.



**Abbildung 44:** S-Parameter und relative Längenänderung  $\Delta l/l$  als Funktion der Temperatur [22]

Die blaue  $\Delta l/l$  Dilatometerkurve nimmt mit zunehmender Temperatur ab und besitzt bei 200° eine Steigungsänderung. Das bedeutet, dass vor und nach 200° die Abnahme des freien Volumens nach 2 unterschiedlichen Kinetiken abläuft, entsprechend der 1. und 2. Phase in unserer Messung (Abb.40).

Da die 1-dim-Dopplermessung während des Aufheizens (in-situ) ausgeführt wurde, muss man auch mögliche thermische Effekte betrachten. Um die Ausdehnung der Gitterkonstanten zu berücksichtigen wird eine unverformte Probe als Referenz gemessen. Die in Abb.44 dargestellte rote Kurve ergibt sich aus der Differenz zwischen verformten und unverformten S-Parametermessdaten und stimmt gut mit unseren Messergebnissen (Abb.43) überein. Die 1. und 2. Phase in unserer Messung lässt sich hier allerdings nicht erkennen und das un stetige Kornwachstum beginnt etwas früher (etwa  $50^\circ$  früher).

Um das zu erklären muss man die von der thermischen Anregung hervorgerufene Änderung in der Struktur betrachten. Unter der thermischen Anregung werden die Abstände zwischen den Atomen größer und die Atome können in den freien Volumen schwingen. Das könnte eine Abnahme der Einfangrate der Leerstellen und Versetzungen verursachen. Die Auswanderung der Leerstellen wird daher vermutlich von den Positronen in den in-situ Messungen nicht detektiert (keine Steigungsänderung zwischen 1. und 2. Phasen in Abb.44).

Das unterschiedliche Einsetzen der 3. Phase zwischen der in-situ Messung (etwa  $300^\circ$ ) und der Messungen bei Raumtemperatur ( $350^\circ$ ) könnte eine Folge der unterschiedlichen Ausdehnungskoeffizienten der Korngrenzen und des Gitters sein [23].

### 4.2 High-Pressure-Torsion Verformung

Nach zehn Umdrehungen der HPT-Verformung kann man annehmen, dass in der Probe neben den Versetzungen und Leerstellen ausschließlich Großwinkel-Korngrenzen vorliegen [17]. Ein großer Teil der Korngrenzen befindet sich nicht im Gleichgewicht [24], da die HPT-Verformung auch eine Spannung in der verformte Struktur bewirkt. Die kleinen Körner befinden sich in einer Umgebung von Großwinkel-Korngrenzen. Wegen des großen Orientierungsunterschiedes besitzt die Korngrenze nur eine geringe Beweglichkeit. Durch thermische Anregung steigt die Beweglichkeit der Korngrenzen. Das könnte je nach Ausheiltemperatur zur einer Relaxation der Korngrenzen (stetiges Kornwachstum) führen und auch eine Wanderung der Korngrenzen (unstetiges Kornwachstum) ermöglichen.

### 4.3 Auswertung der SEM-Bilder

Im niedrigen Temperaturbereich heilen zuerst die durch die starke plastische Verformung erzeugten Versetzungen und Leerstellen aus. Erst danach stellt sich wieder eine Gleichgewichtskonfiguration der Korngrenzen ein:

#### Stetiges Kornwachstum

Die Körner sind nach der HPT-Verformung lamellenförmig und in Richtung der Verformung ausgerichtet. Die Korngrenzen haben einen großen Orientierungsunterschied. Der größere Orientierungsunterschied und die lamellare Form verursacht ein starkes Ungleichgewicht in der Struktur. Durch thermische Anregung steigt die Beweglichkeit der Korngrenze. Wenn die kritische Temperatur ( $200^{\circ}\text{C}$ ) erreicht ist, wird die lamellare Struktur durch gerichtete Bewegung der Korngrenzen abgebaut, um das Gleichgewicht wieder herzustellen. Die SEM-Bilder zeigen diesen Prozess. In Abb.45 befindet sich die Probe noch in der stetigen Kornwachstumsphase. Die noch verzerrten Körner sind in der Ausdehnungsrichtung orientiert. In Abb.28 dagegen ist das stetige Kornwachstum bereits abgeschlossen, die Körner besitzen eine gleichförmige Struktur.

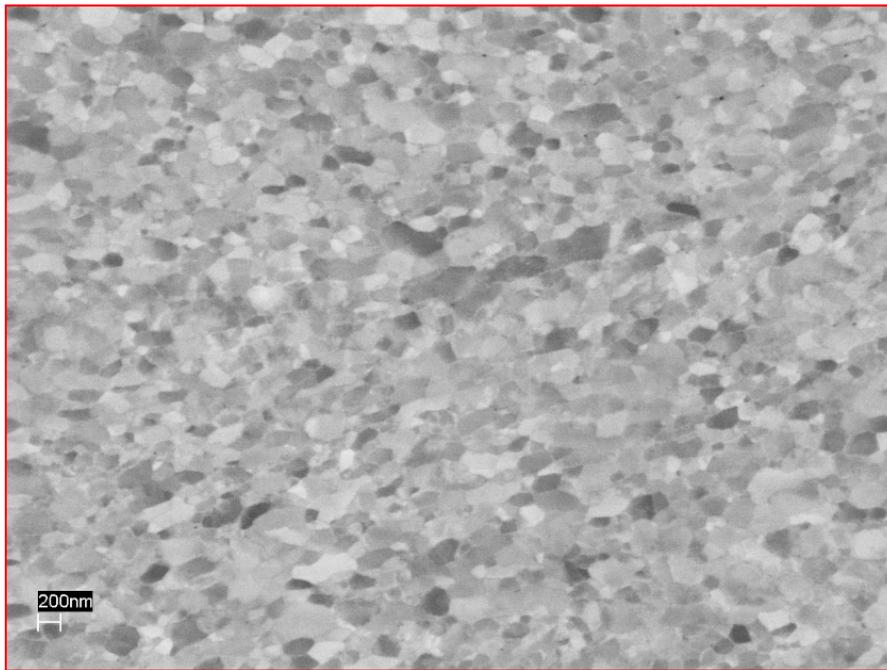
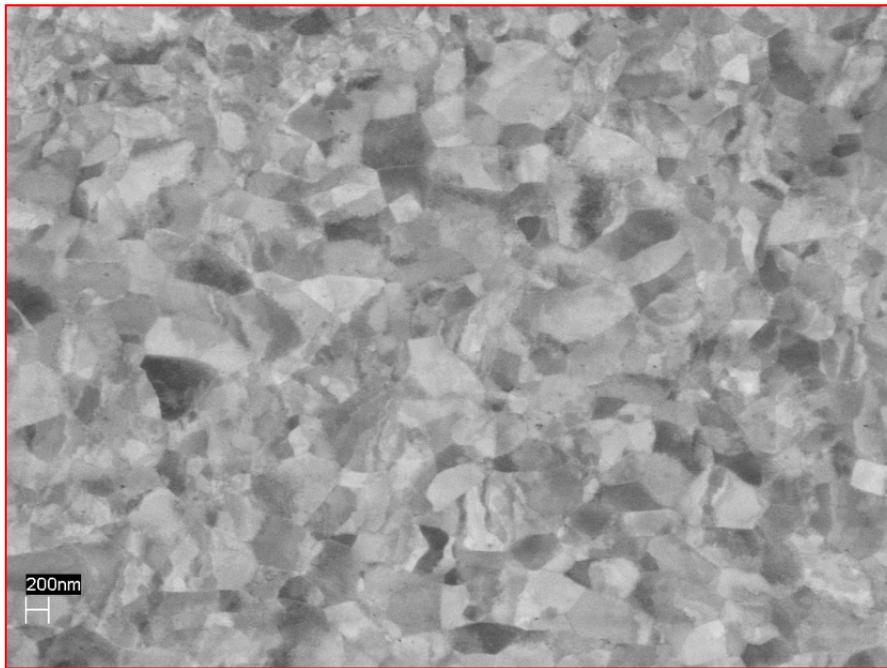


Abbildung 45: SEM-Bild nach 2 Stunden Wärmebehandlung bei  $290^{\circ}\text{C}$

### Unstetiges Kornwachstum

Ab 350°C findet das unstetige Kornwachstum statt. Die Korngrenzen fangen an auszuwandern und die Körner können beginnen zu wachsen (siehe Abb.29 und 30).

Wenn die Probe nach der Verformung 500°C (oberhalb der kritischen Temperatur des unstetigen Kornwachstums) temperaturbehandelt wird, findet nur das unstetige Kornwachstum ohne das stetige Kornwachstum statt. In Abb.46 erkennt man eine ungeordnete Struktur, indem große und kleine Körner nebeneinander bestehen und die Körner unterschiedlich ausgedehnt und gerichtet sind.



**Abbildung 46:** SEM-Bild nach 10 Minuten Wärmebehandlung bei 500°C

#### 4.4 Vergleich mit dem theoretischen Modell

Die mittlere Lebensdauer und die entsprechende Korngröße wurden als Inputdaten in das theoretische Modell von *B. Oberdorfer* eingegeben. Die erhaltene Anpassungskurve ist in Abb. 38 dargestellt. Die Anpassung ist nur möglich, wenn gleichzeitig eine Leerstellenausheilung mit einem Kornwachstum stattfindet.

#### 4.5 Zusammenfassung

Nach HPT-Verformung und Wärmebehandlung entstehen insgesamt drei Phasen:

- 1. Phase (bis 200°C): Auswanderung der Leerstellen und Versetzungen. In dieser Phase zeigen nur Dilatometer und 1-dimensionale Dopplerspektroskopie die Änderung der freien Volumendefekte
- 2. Phase (200°C bis 350°C): Stetiges Kornwachstum. Es ist charakterisiert durch Korngrenzflächenrelaxation. Die Änderung der freien Volumendefekte kann wieder nur mit Dilatometrie und 1-dimensionaler Doppler-Spektroskopie verfolgt werden. Beide weisen auf einen anderen Mechanismus der freien Volumensänderung hin als in der 1.Phase
- 3. Phase (350°C bis 700°C): Unstetiges Kornwachstum. Es ist charakterisiert durch schnelles Kornwachstum und der Bildung von großen, nahezu defektfreien Kristalliten. In dieser Phase ist eine Zuordnung der einzelnen Positronenlebensdauern möglich. Die S-förmige Temperaturabhängigkeit ist in Abb. 34 dargestellt
- Leerstellen-Fremdatom Komplexe bleiben auch bei hohen Temperaturen stabil. Die Konzentration der Defekte  $C_v$  beträgt bei 650°C etwa  $3.9 \cdot 10^{-6}$ .

## **Danksagung**

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

### **Univ.-Prof.Dipl.-Ing.Dr.techn. Werner Puff**

Für die Vergabe der Arbeit und die hervorragende Betreuung.

### **Univ.-Prof.Dr.rer.nat Roland Würschum**

Für die Diskussion und hilfreiche Hinweise.

### **Dipl.-Ing Peter Parz**

Für die dauerhafte Unterstützung im Labor sowie für die Anregungen und Ratschläge beim Verfassen dieser Arbeit.

### **Assoc.Prof.Dipl.-Phys.Dr.rer.nat Wolfgang Sprengel**

Für die Diskussionsbereitschaft und hilfreiche Hinweise.

### **Dipl.-Ing Bernd Oberdorfer**

Für die Diskussionsbereitschaft, die Zurverfügungstellung der Messergebnisse der in-situ Messungen und die Anpassung des Positronen Modells.

### **Die Unterstützung aus dem Institut:**

Dipl.-Ing Steyskal, Eva-Maria

Dipl.-Ing Martin, Lukbauer

### **Erich Schmid Institut Leoben**

Für die Präparation der Proben und der Zurverfügungstellung der SEM-Messungen.

## Literatur

- [1] P. Hautojaervi and A. Vehanen. in *Positrons in solids*. ed. P. Hautojaervi, Berlin, 1979. p. 1.
- [2] C.D. Anderson. *Phs.Rev.* **43** (1933) 491.
- [3] R.N. West. *Adv. Phys.* **22** (1973) 263.
- [4] P. Hautojaervi and C. Corbel. in *Positron spectroscopy of solids*. ed. A. Dupasquier and A.P. Mills, ISO Press, Amsterdam, 1995, p.491.
- [5] W. Puff. *Positronen in Festkoerpern*. Vorlesungsunterlage, 2007. TU-GRAZ.
- [6] *Fast Timing Discriminator: Leading Edge, Constant Fraction, Single and Multiple Input*. <http://www.ortec-online.com/Solutions/modular-electronic-instruments.aspx>.
- [7] P. Mascher, D. Kerr, and S. Dannefaer. *Phys. Rev. B* **40** (1989) 764.
- [8] W. Puff. *Comp. Phys. Commun.* **30** (1983) 359.
- [9] K.G. Lynn, J.R. MacDonald, and E. Bonderup. *Phys. Rev. Lett.* **38** (1977) 241.
- [10] W. Lechner. Dissertation, Institut fur Materialphysik, TU Graz, 2009.
- [11] E-M.Steyskal. Diplomarbeit, Institut fur Materialphysik, TU Graz, 2010.
- [12] A. Hohenwarter, C. Kammerhofer, and R. Pippan. *J Mater Sci.* **45** (2010) 4805.
- [13] G. Gottstein. *Physikalische Grundlagen der Materialkunde*. Springer, Berlin, 2007. Kapitel 3.
- [14] Phasendiagramm. <http://www.maschinenbau-wissen.de/skript/werkstofftechnik/stahl-eisen/23-eisen-kohlenstoff-diagramm>.
- [15] G. Gottstein. *physikalische Grundlagen der Materialkunde*. Springer, Berlin, 2007. Kapitel 7.
- [16] F.J Humphreys and M. Hatherly. *Recrystallization and Related Annealing Phenomena*. Elsevier, 2004. chapter 14.
- [17] H. Jazaeri and F.J Humphreys. *Acta Mater.* **52** (2004) 3251.
- [18] C. Hidalgo, G. Gonzalez-Doncel, S. Linderoth, and J. San. *Phys. Rev. B* **45** (1992) 7017.

- [19] R. Wuerschum, C. Grupp, and H.E. Schaefer. Phys. Rev. Lett. **75** (1995) 97.
- [20] B. Oberdorfer and R. Wuerschum. Phys. Rev B **79** (2009) 184103.
- [21] P. Hautojaervi, J. Johansson, A. Vehanen, and J. Yli-Kauppila. Phys. Rev. Lett. **44** (1980) 1326.
- [22] B. Oberdorfer. Private Mitteilung (wird veröffentlicht).
- [23] A.P. Sutton and R.W. Balluffi. *Interfaces in crystalline materials*. Clarendon Press. Oxford. page 311.
- [24] A. Takayama, X. Yang, H. Miura, and T. Sakai. Mat. Sci. Eng. A **478** (2008) 221.