Aufbau einer Kammer zur PIGE Analyse an Turbinenschaufeln aus TiAl-Legierungen am 2,5 MV Van-de-Graaff-Beschleuniger

Bachelorarbeit

von

Frederik King

Institut für Kernphysik

der Johann Wolfgang Goethe-Universität

Frankfurt am Main

Oktober 2008

Zusammenfassung

Die Aufgabe dieser Bachelorarbeit bestand darin, für ein gemeinsames Forschungsprojekt der DECHEMA und des IKF eine möglichst praktische Vakuumkammer zu bauen, die sowohl den Anforderungen des PIGE- als auch des RBS - Messverfahrens genügen würde. Die neue Vakuumkammer musste zwei wichtige Hauptmerkmale erfüllen. Erstens war eine ausreichende Mindestgröße erforderlich, um in ihr einfach und schnell Umbauten während der Strahlzeit durchführen zu können und um den Objektträger, der Platz für mehrere Proben bieten soll, in sich zu beherbergen. Zweitens war für den Versuch ein Endvakuum von 10^{-6} mbar erforderlich. Um keine neue Vakuumkammer in Auftrag geben zu müssen, wurde eine vorhandene Kammer für die Anwendung adaptiert. Da die Kammer von der Geometrie und Größe es nicht erlaubte alle nötigen Detektoren und Manipulatoren darin unter zu bringen, wurde an die Kammer ein Vorbau aus Standard CF-Rohrteilen angefügt. Hauptsächlich wurde bei der Planung und Konstruktion der Kammer, und auch bei der Auswahl eines geeigneten Konstruktes aus Standard CF Rohrteilen auf die Effektivität geachtet, die bei der späteren Nutzung der Apparatur ein schnelles und erfolgreiches Messen gewährleisten sollte. Bei der Montage der Versuchsapparatur auf die Strahlbank musste berücksichtigt werden, dass eine möglichst große Flexibilität für den späteren Strahlgang zu gewährleisten war.

Da es sich bei der hier vorliegende Bachelorarbeit um den Aufbau des ersten PIGE Messplatzes für reale Bauteile nach Umzug des Institutes auf den Riedberg handelt, musste ein völlig neues Strahlrohr in Auftrag gegeben werden, bevor mit den Messungen begonnen werden konnte. Innerhalb der kurzen Zeit der Bachelorarbeit konnte dieses nicht fertig gestellt werden, weshalb in dieser Arbeit die Konzeption des neuen Messplatzes beschrieben wird, die eigentliche PIGE Messung in dieser Bachelorarbeit aber an schon aufgenommenen Daten erläutert wird.

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung **5**

2 Theoretischer Hintergrund **7**
2.1 Messtechniken der Ionenstrahlanalytik 7
2.2 RBS - Rutherford Backscattering Spectrometry 8
2.3 PIXE - Particle/Proton Induced X-Ray Emisson 9
2.4 PIGE - Particle/Proton Induced Gamma-Ray Emission 11
2.5 Stopping Power 16
2.6 Halogeneffekt 16

3 Vakuumsysteme **17**
3.1 Anforderungen an die Vakuumkammer 17
3.2 Auswahl einer geeigneten Vakuumkammer 17
3.3 Notwendige Umbauten 19
3.4 Aufsetzten der Kammer auf die Strahlbank 20
3.5 Anforderungen an das Multifunktionsrohr 21
3.6 Auswahl eines geeigneten Multifunktionsrohres 21
3.7 An- und Umbauten an dem Multifunktionsrohr 22
3.8 Aufsetzten des Multifunktionsrohres auf die Strahlbank 24
3.9 Vakuumpumpe und Gegenspannung 26
3.10 Detektor 26

4 Messungen **27**
4.1 Kalibrierung der Protonenenergie 27
4.2 Kalibrierung der Ausbeute 29
4.3 Untersuchung des Materials 29
4.4 Untersuchung der Ti_3Al Legierung 31

5 Ausblick **35**

1 Einleitung

In der heutigen Luft- und Raumfahrttechnik, sowie der Automobilindustrie ist der Aspekt des Kraftstoffverbrauchs zu immer größerer Bedeutsamkeit gereift. Ein Grundprinzip ist, dass eine Verringerung des Gesamtgewichtes unter gleich bleibenden Bedingungen einer Kraftstoffersparnis gleich kommt. Dabei erreicht die Verwendung von intermetallischen Legierungen, wie zum Beispiel die TiAl - Legierung ($\rho_{TiAL} \approx 4\frac{\mathrm{g}}{\mathrm{cm}^3}$) in einer Flugzeugturbine eine 50%-ige Reduktion der Schwungmasse im Vergleich zu den herkömmlich verwendeten Ni - Superlegierungen ($\rho_{Stahl} \approx \rho_{Ni-Basis} \approx 8\frac{\mathrm{g}}{\mathrm{cm}^3}$). Auf Grund der physikalisch mechanischen Eigenschaften eignet sich γ - TiAl besonders zur Herstellung extrem leichter und temperaturbeständiger Werkstoffe. Das in Abb. 1.1 gezeigte Phasendiagramm zeigt die Ti- und Al- Mischkristalle und deren intermetallische Phasen. Die gestrichelten Linien im Konzentrationsbereich 55-75 at.% Al geben Phasengleichgewichte wieder, deren Datensatz unzureichend ist.

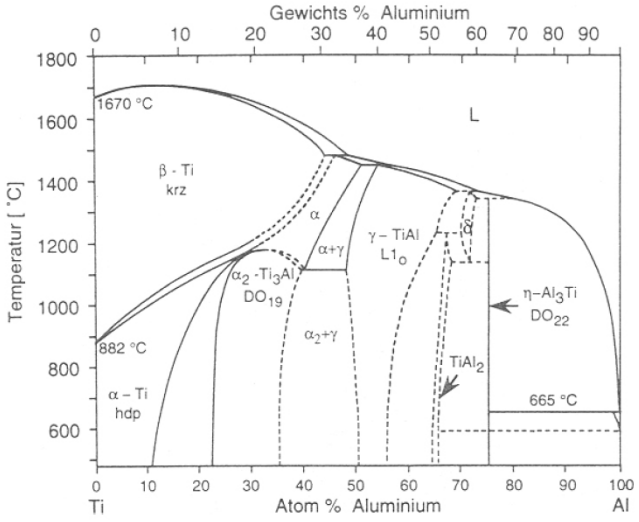

Abbildung 1.1: TiAl-Phasendiagramm. Entnommen aus [1]

Die TiAl - Legierung weist ohne zusätzliche Behandlungen eine Hochtemperatur - Oxidationsbeständigkeit von bis zu 750°C auf. Ab der angegebenen Temperatur befindet sich die Aluminiumoxidreaktion in einem kinematisch gehemmten Zustand, welche zu einer flächenabdeckenden Bildung von Titanoxid führt [7]. Das gebildete Titanoxid ist spröde und führt dazu, dass die Legierung ab der erwähnten Temperatur keine den Grundwerkstoff schützende Oxidationsschicht bilden kann und insbesondere bei thermozyklischen

Belastungen von seinem Trägermaterial abplatzt. Da die Anforderungen in den erwähnten Flugzeugturbinen eine höhere Hochtemperatur - Oxidationsbeständigkeit verlangen, konnten leichtere Legierungen bislang nur in den Niedertemperaturbereichen eines Flugzeuges eingesetzt werden, aber für den Hochtemperaturbereich gab es solche noch nicht. Mit Hilfe des Halogeneffektes ist es aber möglich, eine Reaktion im Festkörper zu erzeugen, die die Hochtemperatur - Oxidationsbeständigkeit und Stabilität der TiAl - Legierung, durch die Bildung von Al_2O_3 und die Unterdrückung der Bildung von Titanoxid, erhöht. Ein weiterer Vorteil von immer höheren Temperaturen, die die Materialien im Stande sind zu bestehen, ist ein höherer durch die Maschine zu erreichender Wirkungsgrad.

Damit der Halogeneffekt in ausreichendem Maße durchgeführt werden kann, ist es erforderlich, dass für die Partialdrücke p(AlF) und p(TiF) gilt: p(AlF)>p(TiF). Dafür ist eine Mindestkonzentration an implantiertem Halogen in der Probe vonnöten. Um die TiAl - Legierungen von der Forschung in die industrielle Nutzbarkeit überführen zu können, ist eine genaue Bestimmung der Fluorkonzentrationen unablässig. Dadurch, dass sich die Ionenstrahlanalytik in den letzten Jahren zu einem wichtigen Werkzeug zur Untersuchung von Festkörpern entwickelt hat, ist es mehr als naheliegend, Konzentrationsbestimmungen durch Techniken der Ionenstrahlanalytik durchzuführen. Die hohe Empfindlichkeit, welche im ppm (parts per million) Bereich liegt, die Möglichkeit Konzentrationsbestimmungen ortsaufgelöst in der Probe zu tätigen und die Eigenschaft die Materialien zerstörungsfrei zu untersuchen, sind die für die Verwendung der Ionenstrahlanalytik sprechenden Hauptargumente. In dem größeren Bereich der Ionenstrahlanalytik empfehlen sich zur Bestimmung von Elementkonzentrationen die PIXE (Particle/Proton Induced X-Ray),die RBS (Rutherford Backscattering Spectrometry) bei schweren Elementen und die PIGE (Particle/Proton Induced Gamma-Ray Emission) bei leichten Elementen als Messverfahren. Um solche Experimente optimal ausführen zu können, ist eine speziell auf die Experimente angepasste Versuchsapparatur unumgängig. Deshalb beschäftigt sich diese Bachelorarbeit mit der Planung und dem Aufbau eines Vakuumsystems und dessen implementierter Messtechnik zum Ausführen einer PIGE - Analyse[2].

2 Theoretischer Hintergrund

Dieses Kapitel soll dazu dienen dem Leser den physikalischen Hintergrund bei den verschiedenen Messverfahren der Ionenstrahlanalytik näher zu bringen.

2.1 Messtechniken der Ionenstrahlanalytik

Wie bereits in der Einleitung erwähnt, ist die Ionenstrahlanalytik ein bedeutender Aspekt, der bei der Analyse von Festkörpern berücksichtigt werden muss. In der theoretischen Betrachtung wird auf die drei Hauptanalysemethoden bei der Ionenstrahlanalytik genauer eingegangen. Dabei handelt es sich um die Verfahren der Particle/Proton Induced X-Ray Emission (PIXE), der Rutherford Backscattering Spectrometry (RBS) und das Verfahren der Particle/Proton Induced Gamma-Ray Emission (PIGE). Das folgende Schaubild [2.1] soll die Unterschiede zwischen den einzelnen Verfahren verdeutlichen, bevor näher auf diese eingegangen wird.

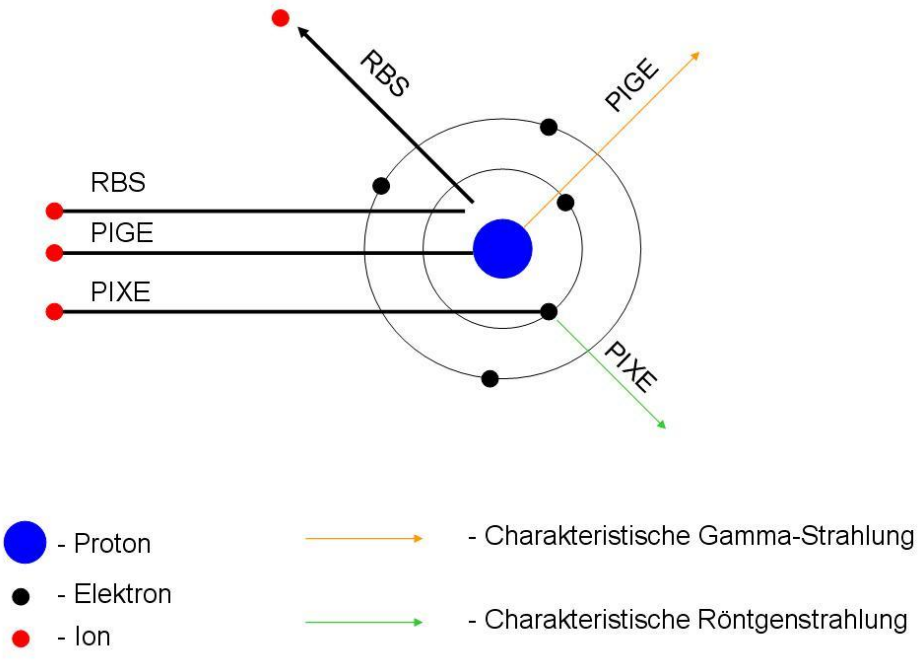

Abbildung 2.1: Schaubild zur Verdeutlichung der RBS,PIXE und PIGE Reaktion

2.2 RBS - Rutherford Backscattering Spectrometry

Wird ein Target mit einem Ionenstrahl beschossen, so lassen sich viele Informationen über das Target gewinnen, wenn die mehrparametrige Streuverteilung der aus der Probe zurückgestreuten Projektile gemessen werden. Für große Kernladungen und relativ kleine Energien wird die Streuung des Projektils am Target völlig von der elektrostatischen Abstoßung der Kernladung bestimmt. Die elektrostatische Abstoßung, die für die Streuung im Schwerpunktsystem (cm) um einen Winkel Θ zur Strahlachse verantwortlich ist, ist durch den Rutherfordstreuquerschnitt

$$\sigma_C(\Theta_{cm}) = \left(\frac{e^2}{16\epsilon_0\pi}\right)^2 \left(\frac{ZZ_T}{E_{cm}}\right)^2 sin^{-4}\left(\frac{\Theta_{cm}}{2}\right) \tag{2.1}$$

$$\sigma_C(\Theta_{cm}) = 1,30 \left(\frac{ZZ_T}{E_{cm}}\right)^2 sin^{-4}\left(\frac{\Theta_{cm}}{2}\right) \frac{\text{mb}}{\text{sr}} \tag{2.2}$$

gegeben.

- Z - Kernladung des Projektils
- E_{cm} - Energie des Projektils in MeV
- Z_T - Kernladungszahl des Targetatoms
- mb = 10^{-27} cm^2

Die Streuwahrscheinlichkeit wächst also mit kleinerem E und Θ sehr stark an. Es ist jedoch darauf zu achten, dass die Divergenz für Θ -> 0 zu vermeiden ist, da sich der Projektilkern und der Targetkern für kleinere Θ immer weiter entfernen und die dadurch wachsende Zahl von Hüllenelektronen die Kernladungen voneinander abschirmen würde. Um eine Transformation von Gleichung (2.2) in das Laborsystem vornehmen zu können, müssen die Werte Θ_{cm} und E_{cm} auf ihre Laborsystemwerte (Θ, E)transformiert werden. Es ergibt sich dabei folgende Gleichung:

$$\sigma_C(\Theta) = 1,30 \left(\frac{ZZ_T}{E}\right)^2 sin^{-4}(\Theta_{cm}) 4 \frac{\left(\sqrt{1-(\xi sin\Theta)^2} + cos\Theta\right)^2}{\sqrt{1-(\xi sin\Theta)^2}} \frac{\text{mb}}{\text{sr}} \tag{2.3}$$

$$\sigma_C(\Theta) = 1,30 \left(\frac{ZZ_T}{E}\right)^2 (sin^{-4}\left(\frac{\Theta_{cm}}{2}\right) - 2\xi^2) \frac{\text{mb}}{\text{sr}} \qquad bei \qquad xi^2 << 1 \tag{2.4}$$

- E - Energie des Projektils in MeV
- $\xi = M/M_T$
- M - Projektilmasse

- $M_T - Targetmasse$

Durch das Ausnutzen der Bedingung der Impuls und Energieerhaltung lässt sich für den gesamten Streuvorgang eine Relation aufstellen, die die Energie des einlaufenden Teilchens (E) und des auslaufenden Teilchens (E') beschreibt.

$$E' = kE \qquad ; \qquad k = \left(\frac{\sqrt{1 - (\xi sin(\Theta_{cm}))^2} + \xi cos(\Theta_{cm})}{1 + \xi} \right)^2 \tag{2.5}$$

- k - kinematischer Faktor

Damit ergibt sich bei dem kinematischen Faktor k für die Projektilmasse M und der Targetmasse M_T nur eine Abhängigkeit von ξ und Θ.

Beschießt man ein schweres Target mit einem leichten Teilchen ($\xi < 1$), so gilt für $v_s' = v_s < v_{cm}$. Somit gilt nach Gleichung (2.5), dass das Target in Rückwärtsrichtung den maximalen Energieverlust hat und gleichzeitig auch eine minimale Austrittsenergie:

$$E' = k_{max}E \qquad ; \qquad k_{max} = \left(\frac{1 - \xi}{1 + \xi} \right)^2 \tag{2.6}$$

- v_s - Geschwindigkeit im Laborsystem des Projektils vor der Streuung
- v_s' - Geschwindigkeit im Laborsystem des Projektils nach der Streuung
- v_cm - Geschwindigkeit im Schwerpunktsystem

Für den Fall $\xi < 1$ ist die Energieseperation der Targetmassen maximal und kann somit zur Analyse von Festkörpern benutzt werden. Es trägt den Namen Rutherford Backscattering Spectrometry, benannt nach E. Rutherford dem 1911 die Entdeckung der Atomkerne durch die Rückstreuung von Alphateilchen an einer Goldfolie gelang.

Nach Gleichung (2.5) kann demnach, sollten unter festgelegtem Rückstreuwinkel Energien und Intensitäten gemessen werden, unter zuhilfenahme von Gleichung (2.4) und (2.2), die Masse, Ladung und Dichte der sich im Target befindlichen Nuklide bestimmt werden [3][4].

2.3 PIXE - Particle/Proton Induced X-Ray Emisson

Der Vorteil eines großen Wirkungsquerschnittes bei RBS - Analyse wird (bei der PIXE - Analyse) durch die Ausnutzung der Wechselwirkung zwischen Projektil und Hüllenelektron des Targetatoms nochmals um einige Größenordnungen überboten, [3]. Bei dem Verfahren werden Elektronen aus der inneren Schale durch das Projektil freigesetzt. Bei der Wiederauffüllung der energetisch günstigeren Zustände durch andere gebundene Elektronen, wird ein für das Element charakteristiches Röntgenemissionsspektrum emittiert (siehe Abbildung [2.2]).

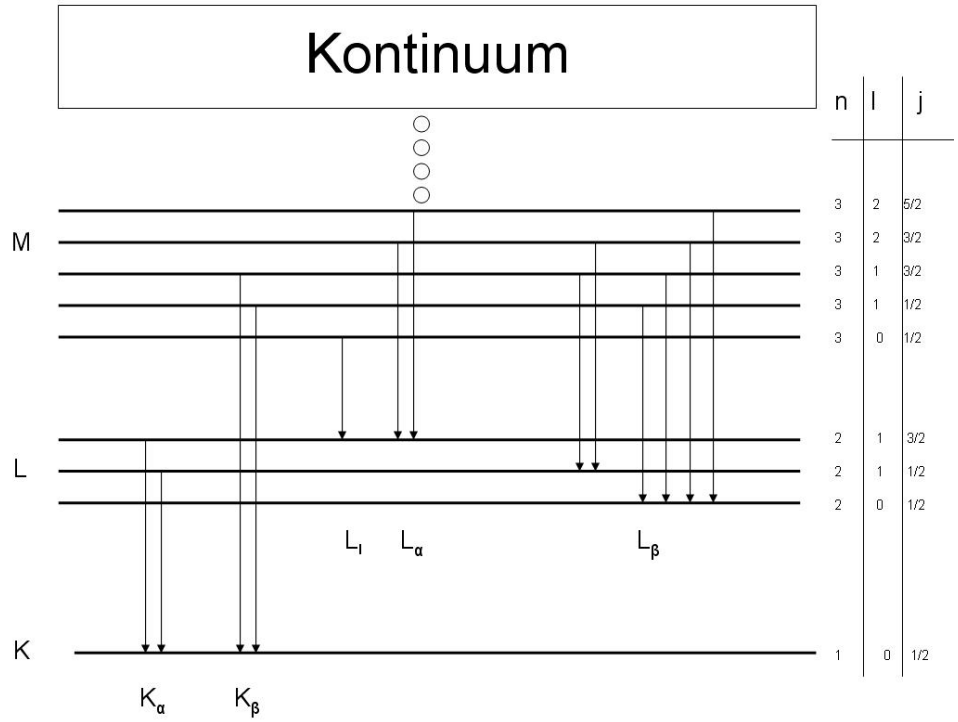

Abbildung 2.2: Entstehung des charakteristischen Röntgenemissionspektrums

Dabei verläuft der oben beschriebene Prozess physikalisch analog zu dem Photoeffekt. Der Wirkungsquerschnitt σ(E,Q) für die Emission eines Photons bei Wiederbesetzung des Hüllenzustandes Q (Q= K,L,M sowie höhere Schale) lässt sich schreiben als:

$$\sigma(E,Q) = \sigma_i(E)\omega(Q) \tag{2.7}$$

- σ_i - Ionisierungsquerschnitt

Der Ionisierungsquerschnitt ist bei $v_p \approx v_e(Q)$ maximal, also wenn die Projektilgeschwindigkeit ungefähr genauso groß ist, wie die Elektronengeschwindigkeit im Zustand Q. ω(Q) wird von der Hüllenphysik bestimmt, wodurch sich eine Abhängigkeit von Z_T^{-10} ergibt. Insgesamt erhalten wir demnach für den Wirkungsquerschnitt eine Proportionalität von:

$$\sigma(E,Q) \propto Z^2 v_p^4 Z_T^{-10} \tag{2.8}$$

Damit ergibt sich für die PIXE Zählrate folgender Ausdruck:

$$N(E,Q) = Nn_T\sigma(E,Q)\Omega \tag{2.9}$$

- N = $\Phi\Delta T$ die Fluenz des auf die Probe gebrachten Stroms Φ der Sondenteilchen
- n_T - Probenatome pro cm^2
- Ω - Nachweiswahrscheinlichkeit des Röntgenzählers

Durch die oben angegebenen Gleichungen zeigt sich, dass es möglich ist, einen Nachweis von $< 10^{-7}$ Atomanteilen bei einer absoluten Nachweisgrenze von $< 10^{-15}$ g des in der Probe befindlichen Elemtes zu erbringen [3].

2.4 PIGE - Particle/Proton Induced Gamma-Ray Emission

Ein Teilchenbeschuss einer Probe mit einem festen Energiewert induziert eine Kernreaktion, die zur Folge hat, dass materialspezifische γ - Strahlung emittiert wird, die die Identifikation der Probe ermöglicht. Weiterhin lässt sich über die Ausbeute an γ - Strahlung bei einer bekannten isolierten Reaktion ein Rückschluss auf die Konzentration eines Elementes in einem Festkörper bestimmen. Die meisten leichten Elemente(Z<30) haben eine starke, scharfe Resonanz in dem Wirkungsquerschnitt der Kernreaktion, die von einem leichten Ion mit geringer Energie (<3 MeV) induziert wurde. Beschießt man ein Target mit einem Protonenstrahl, dessen Energie mit der Resonanzenergie E_r des Targetelementes korrespondiert, so findet eine Kernreaktion an der Oberfläche statt bei der Gammastrahlung emittiert wird. Ist der Protonenstrahl höher energetisch, so muss durch Wechselwirkung mit dem Material (Stopping Power) erst Energie verloren gehen, bevor die Resonanzreaktion eintreten kann. Die Gammastrahlungsausbeute, die bei einer gewissen Teilchenenergie (E_b) gemessen wurde, reflektiert die Konzentration des Targetelementes in der Tiefe der Resonanz. Dabei lässt die Anregungskurve der Resonanzreaktion Y(E_b), aufgetragen zum Beispiel die Gammastrahlungsausbeute gegen die Protonenenergie, einen genauen Aufschluss über die Konzentration zu (siehe Schaubild [2.3]).

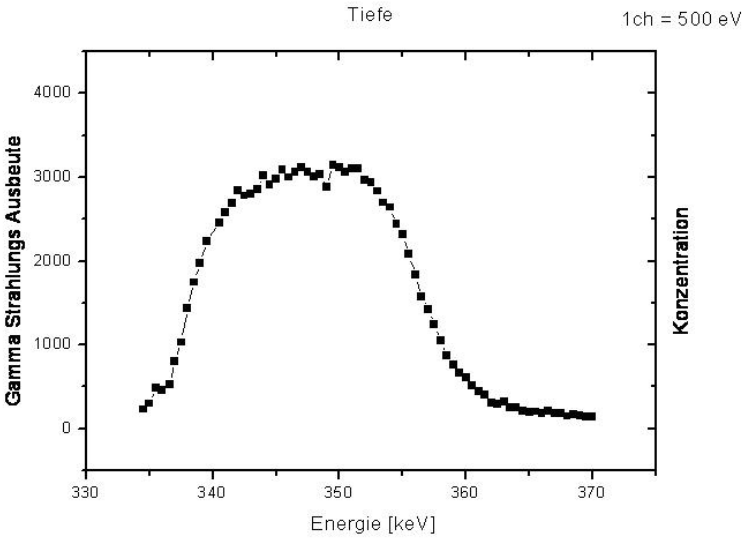

Abbildung 2.3: Darstellung des Zusammenhangs zwischen γ - Strahlungs Ausbeute (bzw. Konzentration) und Energie (bzw. Eindringtiefe)

Abhängig von dem zu untersuchenden Material kann mit leichten Ionen eine unterschiedlich große Tiefe untersucht werden, die maximal 50 μm erreichen kann. Es gibt dabei Effekte, die die maximal zu erreichende Tiefe und die maximale detektierbare Breite des Fluorprofils beschränken. Wie erwähnt, wird es durch höhere Energien möglich, das Material in einer größeren Tiefe zu untersuchen. Bei diesem Vorgang treffen immer höher energetische Ionen auf die Oberfläche des Materials. Ab einer bestimmten Energie wird in dem Material eine höherenergetische Resonanzreaktion an der Oberfläche induziert. Es bleiben genügend Projektile übrig, um eine zweite niederenergetische Resonzreaktion tiefer im Material zu induzieren (sofern dort Fluor vorhanden ist). Diese zweite Resonanzreaktion in der Tiefe des Materials führt zu einer vermehrten Bildung von γ - Strahlen, die die Konzentrationsbestimmung verfälschen. Die Breite des zu untersuchenden Fluorprofils ist demnach abhängig von dem Abstand, den die beiden Resonanzreaktionen zueinander haben. Ausserdem zeigt sich, dass die maximal detektierbare Breite eines Profils ohne Entfaltung von dem Abstand zur nächst höheren Resonanzreaktion bestimmt wird (siehe Schaubild [2.4]) . Es gilt, dass die Tiefenauflösung durch Energy Straggling schlechter wird je tiefer man in die Probe eindringt. Energy Straggling bezeichnet die statistische Schwankungen der Ionenenergie im Target, hervorgerufen durch eine unterschiedliche Anzahl von Stößen mit den Targetatomen. In dem für die Kammer

geplanten Versuch soll Fluor untersucht werden, daher seien hier die Resonanzenergien bei einem Protonenbeschuss angegeben (Die von uns benutzten Resonanzenergien sind fett gedruckt). Die ausgesendete Gammastrahlung hat immer den chakterristischen Wert von 7.12 MeV, 6.92 MeV und 6.13 MeV und es wird ein weiteres α - Teilchen emittiert.

Resonanzenergie [keV]	Γ Width [keV]	γ Wirkungsquerschnitt[mb]
224	1	>0,2
340	3	160
484	0.9	>32
597	30	7.1
672	6	57
835	6.5	19
872	4.5	540
902	5.1	23
935	8.6	180
1090	0.7	>13
1189	19	19
1283	29	29
1348	5.6	89
1375	11	300

Tabelle 2.1: PIGE Resonanzenergien für Fluor. Entnommen aus [4].

Die Breite der Resonanzreaktion wird durch verschiedene Faktoren beeinflusst. Dabei wäre die natürliche Breite der Resonanzreaktion, die Energieauflösung des Protonenstrahls sowie das Energy - straggling während des Energieverlustes E_p-E_r zu nennen. Um sich die genaue Gestalt der Konzentrationsverteilung ableiten zu können, muss man die Gestalt des Wirkungsquerschnittes σ(E), die Energiestreuung des Teilchenstrahls g(E_b, E) und die Gestalt des Energy - stragglings f(E,E',x) der Protonen in einer Tiefe x kennen. Daraus ergibt sich die Formel:

$$Y(E_b) = C \int_0^\infty dx \int_0^\infty dE' \int_0^\infty dE' N(x) g(E_p, E) f(E, E', x) \sigma(E) \tag{2.10}$$

Die Energiestreuung des Teilchenstrahls g(E_b, E) und die Gestalt des Energy - stragglings der Protonen in einer Tiefe f(E,E',x) sind beschleuinigerspezifische beziehungsweise materialspezifische Daten. im Folgenden soll nun aber der Wirkungsquerschnitt σ(E) besprochen werden. Der Wirkungsquerschnitt bei der Induktion von Resonanzreaktionen durch leichte Ionen bei kleinen Energien ($<$ 2MeV) ist bei einer isolierten Resonanz gegeben durch die Breit - Wigner Formel:

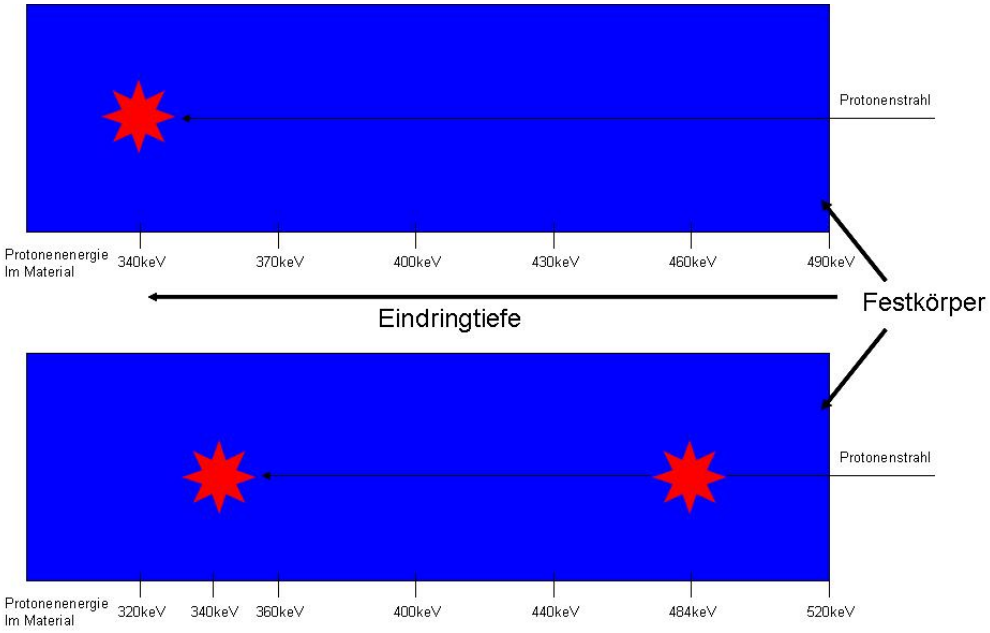

Abbildung 2.4: Darstellung der Uneindeutigkeit des Ursprungs der γ - Strahlen

$$\sigma_{ab}(E) = \frac{\pi\gamma\lambda^2\Gamma_a\Gamma_b}{(E-E_r)^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \tag{2.11}$$

- $_{a,b}$ - gehören zu dem einfallenden (a), ausfallenden (b) Teilchen
- γ - statistischer Parameter implementierend der Spin Nummer
- λ - De Broglie Wellenlänge
- Γ - Resonanzbreite
- Γ_a Γ_b - Partielle Resonanzbreiten

Der Wirkungsquerschnitt wird angegeben in Barn [$1Barn = 10^{-24}cm^2$].

Bei der speziellen Anwendung PIGE werden die oben erwähnten Teilchen durch Protonen ersetzt. Hierbei erfolgt die Konzentrationsbestimmung eines Elementes in einem Target, welches charakteristische γ - Strahlung ausgesendet hat, anhand der Gammastrahlungsausbeute im Vergleich zu den Referenzwerten (Standards).Durch folgende Formel werden die Werte der Gammastrahlungsausbeute der Probe Y_s mit dem Referenzwert Y_{st} verglichen:

$$c_s = \frac{c_{st}S_sY_s}{S_{st}Y_{st}} \tag{2.12}$$

- c_s - Konzentration des in der Probe befindlichen Elementes
- c_{st} - Konzentration der Probe im Standard
- S_s - Stopping Power in der Probe
- S_{st} - Stopping Power der Referenz

Die Empfindlichkeit der Auflösung befindet sich bei der Konzentrationsbestimmung im ppm (parts per million) Bereich. Diese kann jedoch durch äußere Effekte auch verschlechtert werden.

Das folgende Schaubild [2.5] erklärt abschließend wie es bei der PIGE Messtechnik zu der Aussendung der charakteristischen Energie der γ - Strahlen kommt. Dies wird am Beispiel der Fluor Proton Reaktion erläutert (mit Reaktionsgleichung), welche die Reaktion sein wird, die später hauptsächlich in der Kammer vollzogen werden wird. Weiterhin ist die Reaktion und die Reaktionsgleichung des Konkurrenzprozesses angegeben, der in der für die Bachelorarbeit zu Grunde liegenden Versuchsreihen jedoch keine weitere Bedeutung hat [3]-[5].

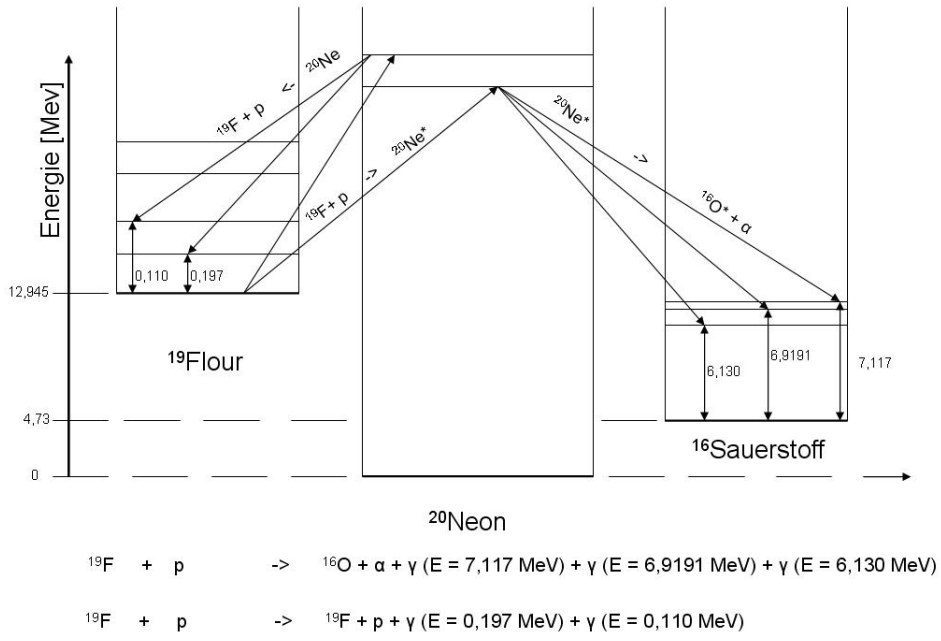

Abbildung 2.5: Reaktionsmechanismus des PIGE-Effekts am Beispiel Fluor

2.5 Stopping Power

Bei der Stopping Power (S) handelt es sich um eine materialspezifische Größe, die eine Beziehung zwischen der im Material verlorenen Energie (dE) und der im Material zurückgelegten Wegstrecke (ds) herstellt. Es gilt

$$\frac{dE}{ds} = N_0 \cdot S \tag{2.13}$$

- dE - Im Material abgegebene Energie
- ds - Im Material zurückgelegte Wegstrecke
- N_0 - Atomdichte, gegeben durch: $N_0 = \rho_{Mat.} \cdot 6.023 \cdot 10^{23} \frac{\text{at}}{\text{mol}} * \frac{1}{\text{M}}$ wobei M die Molare Masse darstellt
- S - Stopping Power

Durch den gegebenen Zusammenhang ist es im Versuch möglich die Fluorkonzentration anstatt gegen einen Energiewert auch gegen eine Tiefenskala auf zu tragen. Dazu wird folgende Umstellung der oben genannten Formel benutzt:

$$\frac{\frac{dE}{S}}{N_0} = ds \tag{2.14}$$

2.6 Halogeneffekt

Der Halogeneffekt ist kein Bestandteil der Ionenstrahlanalytik. Ich werde trotzdem kurz seinen theoretischen Hintergrund erläutern, da dieser Effekt die in der Einleitung beschriebenen Behandlungen erst ermöglicht und so die Grundlage für alle Experimente in der γ - TiAl Forschung bildet.

Durch die Implantation von Halogenen(Fluor, Chlor, Brom, Iod) in eine γ - TiAl Legierung startet unter Hochtemperaturbedingungen (etwa 800 °C) eine chemische Reaktion:

$$4Al_{solide} + 2X_{gasfoermig} \rightarrow 4AlX_{gasfoermig} \quad ; \quad X = F, Cl, Br, I \tag{2.15}$$

Die gasförmige Aluminium - Halogenverbindung diffundiert daraufhin durch das Material in Richtung Oberfläche bis sich der Partialdruck des Sauerstoffes soweit erhöht hat, dass eine zweite chemische Reaktion starten kann:

$$4AlX_{gasfoermig} + 3O_2 \rightarrow 2Al_2O_{3solide} + 2X_2 gasfoermig \tag{2.16}$$

Dieser Vorgang der selektiven Oxidation wird Halogeneffekt genannt. In seiner Auswirkung (auf die γ - TiAl-Legierung) führt er zu einer Unterdrückung der TiO_2 Verbindung und zur Bildung einer Al_2O_3 Oxidationsschutzschicht [6].

3 Vakuumsysteme

In diesem Kapitel wird der Aufbau des Vakuumsystems erläutert. Es wird auf die grundlegenden Ideen eingegangen, die bei dem Aufbau berücksichtigt wurden.

3.1 Anforderungen an die Vakuumkammer

Die Vakuumkammer war geplant für das Ausführen von PIGE und RBS Messungen. Als solche musste sie die Mindestanforderungen im Bereich des zu haltenden Vakuums erbringen. Diese liegen bei mindestens 10^{-6} mbar. Auf Grund der geringen Vakuumanforderungen war es möglich eine große und geräumige Kammer zu wählen, die genügend Platz für Arbeiten in der Kammer bietet, aber auch genügend Platz für den später geplanten Objektträger haben würde. Weiterhin musste die Vakuumkammer genügend Anschlüsse für die Messtechnik, den Objekthalter, die Vakuumpumpe und das Strahlrohr besitzen. Ein weiterer Vorteil wäre es, wenn die Kammer eine gewisse Asymmetrie innehaben sollte, sodass der Objektträger möglichst nahe an einer Seitenwand stehen würde und somit auch die Entfernung zwischen Detektor und Reaktionszentrum minimiert werden könnte.

3.2 Auswahl einer geeigneten Vakuumkammer

Bei der Auswahl der passenden Vakuumkammer kam es darauf an, die Kammer so zu planen und ihre Ausmaße so zu wählen, dass sie auf ihren späteren Einsatz optimal abgestimmt ist. Um nicht eine völlig neue Kammer in Auftrag geben zu müssen, suchten wir eine Kammer, die wir adaptieren konnten. Die gewählte Kammer musste weiteren Arbeitsschritten unterzogen werden, bevor sie sich zur RBS und PIGE Anlayse optimal eignen würde. So bot die Kammer zwar genügend Anschlüsse für die Vakkuummesszellen, die Gegenspannung und den Strahlgang und genügend Platz im Innenraum für den geplanten Objektträger, aber sie war unter anderem in ihrem Innenleben noch mit störenden Zwischenstreben durchsetzt. Die folgende Skizze zeigt die Außenansicht der Kammer vor Beginn der Umbauten:

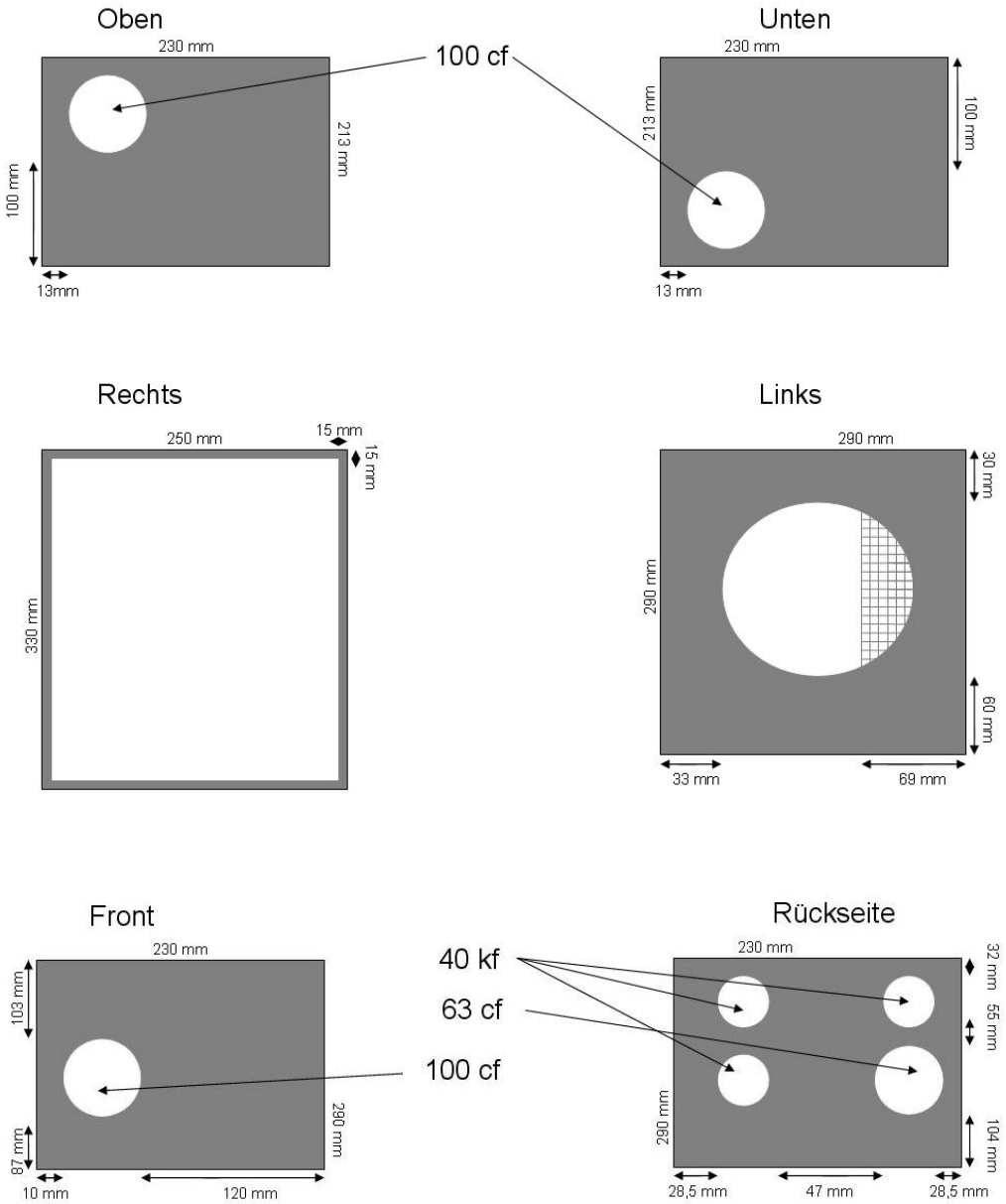

Abbildung 3.1: Schematische Darstellung der Kammer ohne Abdeckungen, Blickrichtung in Strahlrichtung

3.3 Notwendige Umbauten

Die Kammer wurde zunächst gesäubert und von den störenden Zwischenstreben befreit. Bei dieser Gelegenheit wurden die Maße der Kammer überprüft und mit den Plänen des Objektträgers verglichen. Die Kammer war nicht lang genug für den Objektträger. Um diesen Fehler zu beheben, wurden zwei 100 CF Rohrstücke als Verlängerung an die dafür vorgesehnen Öffnungen installiert. An einer Seitenwand wurde ein Kunststoffblindflansch durch einen Blindflansch aus Aluminium ersetzt, da zu befürchten war, dass der Kunststoffblindflansch undicht gewesen ist. Der erste Lecktest an der Kammer zeigte, dass sie das nötige Endvakuum hält. Es konnten kleinere Lecks an den Spannungsdurchführungen der Kammer aufgespürt werden und es wurde erwartet, dass sich durch das Ersetzten der Spannungsdurchführungen ein höheres Endvakuum einstellen würde. Der abschließende Lecktest der Kammer zeigte, dass sich das Endvakuum um den Faktor zwei verbesserte. Die Flansche an denen die Messapparaturen, die Vakuumpumpe und die Spannungsdurchführung an der Kammer angebracht werden sollten, hatten nicht die gleiche Größe, wie die der Messapparaturen, Vakuumpumpe und der Spannungsdurchführungen selbst. Aus diesem Grund mussten diverse Adapter in der Werkstatt in Auftrag gegeben werden.

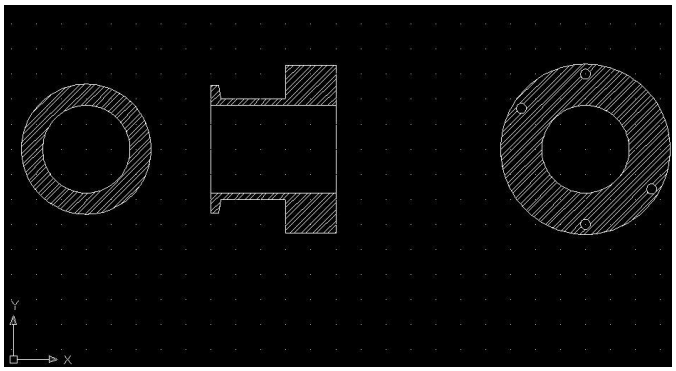

Abbildung 3.2: Exemplarische Darstellung eines Adapters für die Messaparaturen und die Spannungsdurchführungen

Der letzte Arbeitschritt an der Kammer war der Austausch der Abdeckung an der Detektorseite. Die ursprünglich an der Kammer befestigte Abdeckung bestand aus zwei Teilen, dabei diente der zweite Teil der Abdeckung als Abschluss für den ersten Teil, der in der Mitte einen Durchgang hatte und nur einen größeren Teil der Wandseite abdeckte. Die Doppelabdeckung vergrößerte den Abstand des Detektors zu dem Objektträger an dem später die Reaktionen stattfinden sollten. Ein größerer Abstand zwischen Reaktionszentrum und Detektor hat einen kleineren vom Detektor abgedeckten Raumwinkel und deshalb eine kleinere Gammastrahlungsausbeute zur Folge. Um die Ausbeute zu maximieren, ersetzten wir die Doppelabdeckung durch eine Einfachabdeckung aus Aluminium und konnten den Detektor in Folge dieses Umbaus 16 mm näher an das Reaktionszentrum stellen.

3.4 Aufsetzten der Kammer auf die Strahlbank

Die fertig montierte Kammer war das erste Teil des Vakuumssystems, welches auf die Strahlbank gesetzt werden konnte. Es musste aufgrund des noch nicht fertiggestellten Beschleunigerstrahlrohres und aus Gründen der allgemeinen Flexibilität die Kammer sowohl höhen- als auch seitenverstellbar auf die Strahlbank gesetzt werden. Diese nötige Flexibilität erforderte aufgrund der Geometrie der Kammer eine Flexlink®-Konstruktion an ihrer Unterseite. Die Kammer wurde dann durch Winkel an der Bodenkonstruktion befestigt.

Bei der Höhenverstellung musste darauf geachtet werden, dass diese später sowohl die Kammer mit dem Objektträger als auch die Pumpe halten könnte. Zur Gewährleistung der Stabiltät wurde die Höhenverstellung durch vier Schrauben realisiert. Dadurch würde sich auch das spätere Gewicht auf diese vier Schrauben verteilen. Dabei wurden die Schrauben durch Winkel geführt und mit jeweils zwei Muttern an dem Winkel fixiert. Diese Winkel wurden mit der Bodenkonstruktion verbunden.

Die seitliche Flexibilität wurde erreicht, indem wir zwei Flexlink®-Stangen senkrecht auf die Strahlbank setzten und diese mit Winkeln befestigen. Durch Lockern der Schrauben, die die Winkel an der Strahlbank befestigten, war es möglich, die Flexlink®-Stangen nach vorne und nach hinten zu schieben.

Abbildung 3.3: Schaubild der Höhenverstellung

An den beiden Flexlink®-Stangen wurden vier Messingblöcke, an jeder Seite zwei, be-

festigt. Die Messingblöcke hatten in ihrem Zentrum ein Gewinde, in welches die Schrauben, die auch an der Bodenkonstruktion befestigt waren, eingedreht wurden. Am unteren Ende der Schrauben, unterhalb des Messingblockes, wurden zwei Muttern montiert, an denen die Schrauben gedreht werden konnten. Durch das Drehen der Schrauben duch den Messingblock wird eine Höhenverschiebung erreicht.

Da die Kammer nicht genügend Platz für alle Manipulatoren und Messapparaturen bieten konnte, wurde sie mit Standard CF Rohrteilen erweitert. Diese Erweiterung wird in den folgenden Ausführungen Multifunktionsrohr genannt.

3.5 Anforderungen an das Multifunktionsrohr

Das Multifunktionsrohr ist primär dafür geplant die nötige Messapparatur zum Einstellen des Beschleunigerstrahls zu beherbergern. Es hat sich im Laufe des Aufbaues des Rohres jedoch herausgestellt, dass es weiterhin sehr praktisch wäre, die Kamera nicht in der Vakuumkammer zu positionieren, sondern sie am Multifunktionsrohr zu integrieren. Der Laser, der zum Bestimmen des Zielortes des Beschleunigerstrahls gebraucht wird, sollte auch im Multifunktionsrohrsystem integriert sein. Demnach suchten wir ein Konstrukt mit vielen Anschlüssen, das insgesamt möglichst klein sein sollte und das bei einer Vakuumisierung schnell auf das für die Analyse nötige Vakuum gebracht werden konnte. Das zu adaptierende Konstrukt sollte schon den passenden Durchmesser für den Strahlgang haben.

3.6 Auswahl eines geeigneten Multifunktionsrohres

Unser Vorgehen war analog zu dem bei der Vakuumkammer. Wir suchten zunächst bei den vorhandenen Teilen nach passenden Alternativen, da ein Auftrag sehr viel Zeit in Anspruch genommen hätte. Fündig wurden wir bei einem Konstrukt bestehend aus drei Standard CF Rohrteilen, welches unseren Anforderungen entsprach. Zwei der drei Rohrteile waren gleich lang und hatten die gleichen Symmetrien. Die zwei baugleichen Teile bestanden aus einem 100-er CF Rohrstück an dem oben, unten, rechts und links jeweils senkrecht ein Rohr abging. Die Rohre hatten die normierte 36-iger CF Größe. Das dritte Bauteil bestand aus einem 100-er CF Rohr, das ungefähr doppelt so lang war wie die anderen Bauteile und es hatte acht senkrechte abgehende Rohre der normierten Größe 36 CF, jeweils zwei pro Seite. Für den letztendlichen Gebrauch des Multifunktionsrohres waren weitere Arbeitsschritte vonnöten. Die drei Standard CF Rohrteile mussten neu geordnet werden und es wurde ein Handventil eingebaut. Das Handventil schottet den Großteil des Multifunktionsrohres bei der Belüftung der Vakuumkammer ab. Dadurch ist ein schnelleres Vakuumisieren bei Probenwechsel möglich. An dem Rohr waren weiterhin ein Adapter, der das Multifunktionsrohr auf Strahlrohrgröße brachte, einige Blindflansche sowie einige Blenden, die später weiterverwendet wurden, montiert.

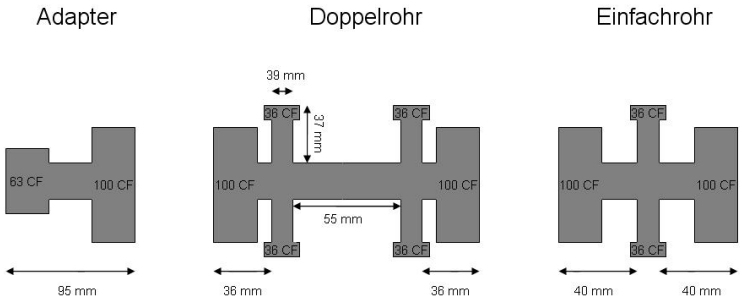

Abbildung 3.4: Schematische Darstellung der Einzelteile des Multifunktionsrohres

3.7 An- und Umbauten an dem Multifunktionsrohr

Da es nicht möglich war die Kamera in der Vakuumkammer zu platzieren, installierten wir sie an dem Multifunktionsrohr. Da die Rohrstücke senkrecht um den Beschleunigerstrahl angeordnet waren, war es unmöglich direkt mit der Kamera auf das Reaktionszentrum zu blicken. Da sich alle Rohrstücke gegenüber lagen war es aber möglich durch einen Spiegel indirekt auf das Reaktionszentrum zu blicken. Bei der Blende handelte es sich um ein höhenverstellbares Metallblättchen, welches es ermöglicht, den auf der Blende montierten Spiegel in einer gewisse Höhe einzustellen und das Licht des Laser (Erklärung folgt) unter einem berechneten Winkel in die Kammer zu leiten. Bei der Projektion kommt es für die Kamera zu Verzerrungen, da es nicht möglich ist die Blättchen auf 45° zu biegen, da sie sonst im Beschleunigerstrahl stehen müssten. Die Verzerrung liegt bei dem gewählten Winkel von 42° bei einer Vergrößerung von 0,137 %. Eine weitere Verminderung der Verzerrung ist aus den oben aufgeführten Gründen nicht möglich. Die Kamera wurde an die nächste Position zur Vakuumkammer postiert. Für die Montage des Lasers wurde auf dasselbe System zurückgegriffen. Die Tatsache, dass der Laser und der Ionenstrahl nie gleichzeitig angeschaltet sein werden ermöglichte es die zweite Spiegelhalterung auf 45° zu biegen. Durch die Höhenverstellung der Blättchen kann der Spiegel in Ionenstrahlhöhe gefahren werden, den genauen Zielpunkt des Ionenstrahls auf dem Target makieren, und zu Beginn der Versuchsreihe aus dem Strahl herausgefahren werden. Der Laser wurde an dem hintersten Platz des Multifunktionsrohres postiert, um beim Markieren des Protonenstrahls denselben Weg durch die Versuchapparatur nehmen zu müssen, den auch der Ionenstrahl nimmt (siehe Schaubild [3.5]).

Als Kollimator benutzen wir einen Kreuzschlitz, den wir aus vier Mikrometerschrauben bildeten. Der Kollimator wurde hinter dem Laser an das Multifunktionsrohr angebaut.

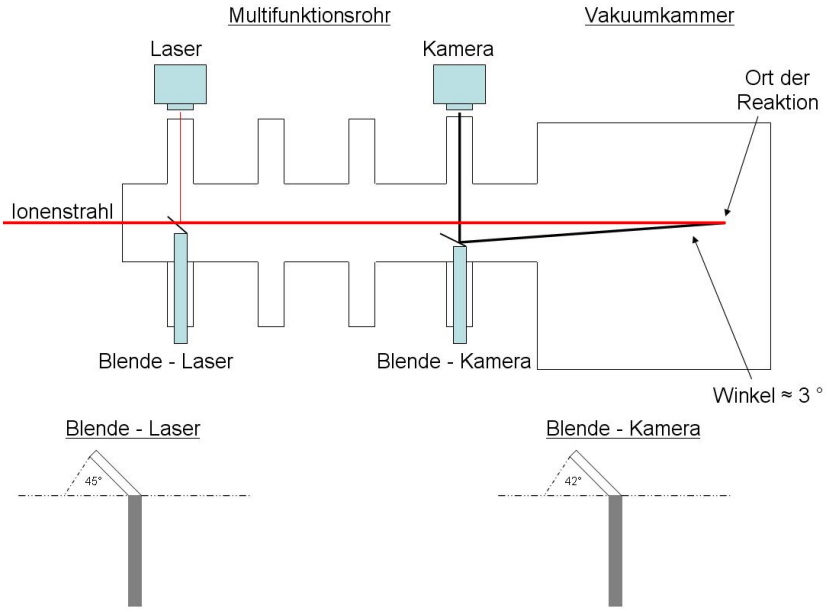

Abbildung 3.5: Schaublid der Implementierung von Kamera und Laser

Da die Länge der Kollimatoren standardisiert sind und das adaptierte Multifunktionsrohr keine Standardlänge für die abgehenden 36 CF Rohre hat, war die Anfertigung von vier Adaptern nötig. Bei den Adaptern handelt es sich um vier Aluminiumstücke mit einem 36 CF Flansch mit O - Ringdichtung. Um die Montage an den teilweise schwer zugänglichen Stellen an den Rohrteilen zu erleichtern, wurden durchgehende Gewinde gewählt.

Hinter dem Kollimator befindet sich das Dreibein. Es wurde ein vorhandenes Dreibein verwendet, bei dem das Ende auf unser Multifunktionsrohr angepasst werden musste. Das Ende des Dreibeins musste verkleinert werden, um in ein 36 CF Rohr zu passen und die aus Edelstahl bestehenden Metallstäbe, die der Strommessung dienten, mussten verlängert werden um in den Ionenstrahl ragen zu können. Zu diesem Zweck wurden die eben angesprochenen Teile neu angefertigt (siehe Schaubild [3.6]).

Die ungebrauchten Anschlüsse des Multifunktionsrohres wurden mit Blindflanschen verschlossen. Ein Lecktest am fertig montierten System zeigte ein ungenügendes Endvakuum. Es handelte sich dabei um eine Leck, hervorgerufen durch eine wiederverwendete Kupferdichtung. Die Dichtung konnte ohne Probleme ausgewechselt werden.

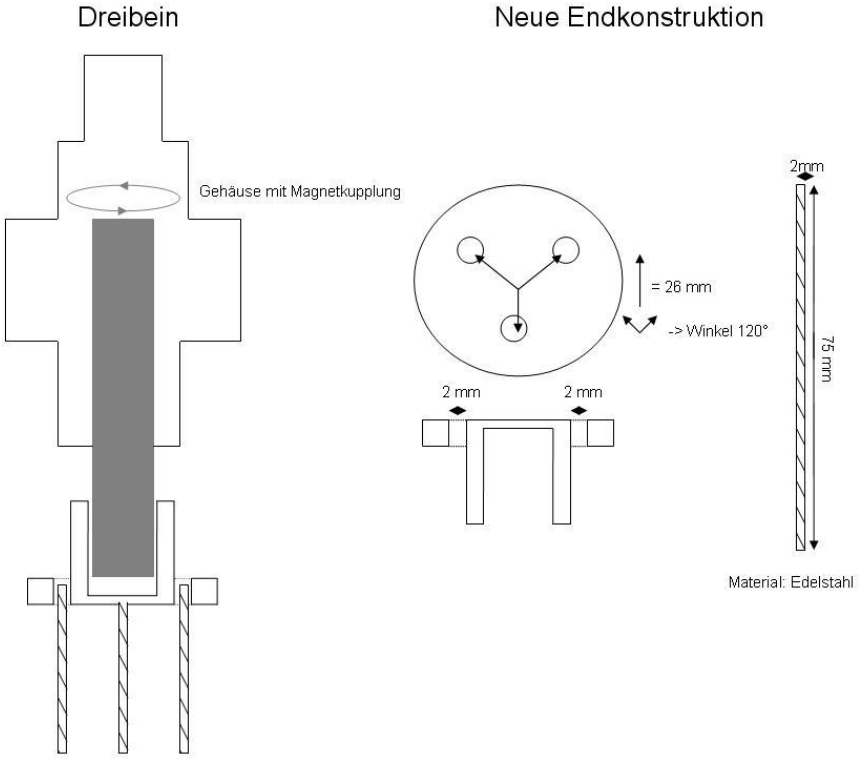

Abbildung 3.6: Schematische Dreibeinzeichnung zum Verdeutlichen der Position der neuen Endkonstruktion

3.8 Aufsetzten des Multifunktionsrohres auf die Strahlbank

Das Multifunktionsrohr wurde wie in Schaubild [3.8] abgebildet zusammengesetzt. Bei der Montage auf die Strahlbank war es nötig eine ähnliche Flexibilität zu gewährleisten, die schon die Vakuumkammer gebraucht hatte, da der Strahlgang noch nicht vorhanden war. Das Gesamtgewicht der Konstruktion war geringer als das Gewicht der Vakuumkammer, deshalb konnte eine praktikabelere Höhenverstellung gewählt werden. Es wurden zwei das Rohr umschliessende Gerüste gebaut. Das Gerüst bestand aus Flexlink® - Stangen, die an bestimmten Punkten (siehe Zeichnung [3.7]) ein Gewinde eingebaut hatten. Vier Schrauben wurden zur Positionierung des Rohres durch die Gewinde gedreht. Die Fixierung, durch die Gewindestangen an den Positionen oben, unten, rechts und links stabilisierten das Multifunktionsrohr und hielten es gleichzeitig beweglich. Ein solches Gerüst positionierten wir am Übergang von Kammer und Multifunktionsrohr und am Ende des Multifunktionsrohres (siehe Schaubild [3.8]).

Die Kammer und das Multifunktionsrohr wurden miteinander verbunden und es erfolgte eine ungefähre Ausrichtung des Vakuumsystems.

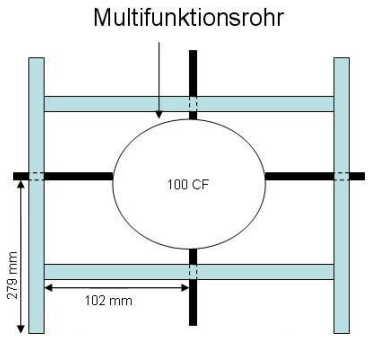

Abbildung 3.7: Schematische Darstellung der Höhenverstellung des Multifunktionsrohres

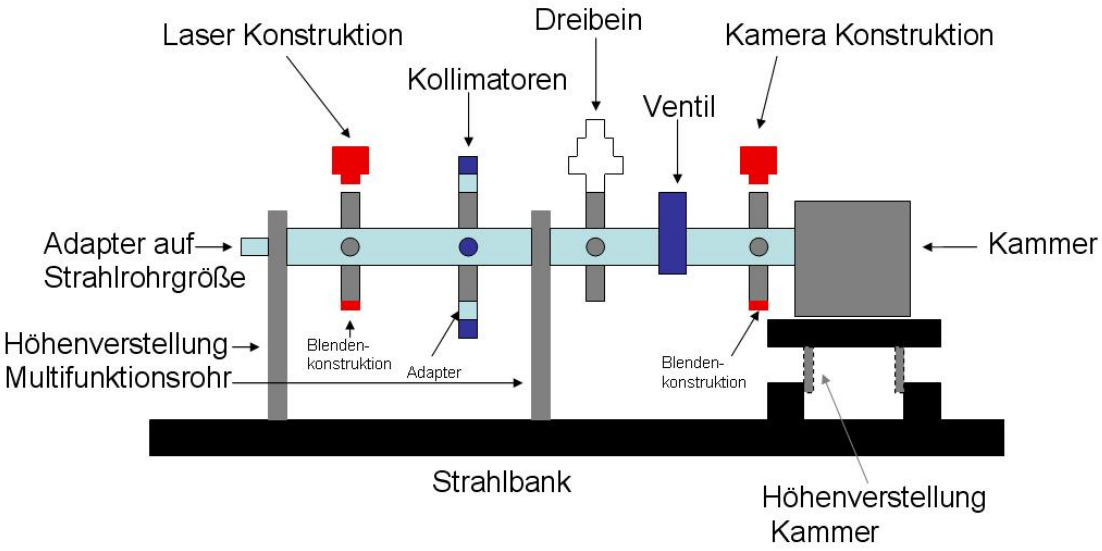

Abbildung 3.8: Schematische Darstellung des Vakuumsystems

3.9 Vakuumpumpe und Gegenspannung

Als Vakuumpumpe wurde eine Pfeifer Turbomolekular - Drag - Pumpe der Bezeichnung „Dn 100 CF - F TMU 261“ mit Wasserkühlung angeschlossen. Die Turbopumpe hat ein Saugvermögen von 210 $\frac{l}{s}$ für N_2. Die Turbopumpe wurde unterhalb des Objektträgers an der Verlängerung angebaut.

An der Kammer wurde eine Spannungsdurchführung angebaut. Diese Spannungsdurchführung ist mit dem isolierten Objekthalter verbunden und bringt diese auf einen gewissen Spannungswert. Für die Zwecke ist es nötig, dass es sich bei den zu untersuchenden Materialien um elektrisch leitende Materialien handelt. Die Gegenspannung wird dafür verwendet, das Material in 0,5 keV Schritten (möglich sind alle Schritte die in der Spannweite der Gegenspannung liegen) zu untersuchen. Dadurch ist es möglich mit einer eingestellten Beschleunigerenergie mehrere Konzentrationen in den jeweiligen Tiefen der Materialien zu untersuchen. Die Gegenspannung kann für diese Messung von -20 kV bis + 35 kV durchgefahren werden. Dies ist die einzig praktikabele Möglichkeit die Proben zu untersuchen. Andere Möglichkeiten die Resonanz in die Tiefe des Materials zu verschieben, durch Veränderung der Beschleunigerenergie, wurden früher durchgeführt, erwiesen sich aber als zu zeitaufwendig und zu ungenau.

3.10 Detektor

Bei der PIGE Analyse von Fluor handelt es um die Detektion eines leichten Elementes (Z=9) in einer Umgebung mit höherer Ladungszahl. Fluor gehört zu den Elementen, die bei induzierten Kernreaktionen gut isolierte Energieresonanzen aufweisten. Aus diesen Gründen wird ein Detektor verwendet, der eine sehr hohe Detektionseffektivität besitzt. Die Energieauflösung war wegen der gut isolierten Resonanzenergien von Fluor nur von minderer Bedeutung. Der ideale Detektor für eine solche Messung ist ein NaI Szintillationszähler. Deshalb wählten wir einen solchen Detektor mit einer 5 Inch großen Detektionsfläche und fügten einen Messverstärker an, um die Detektionseffektivität zu verstärken.

4 Messungen

Da es in den zwei Versuchsmonaten nicht möglich war eine völlig neue Strahlbank fertigen zu lassen, beziehen sich die folgende Auswertungen auf Daten früherer Messungen.

4.1 Kalibrierung der Protonenenergie

Die Kalibrierung der Protonenenergie wird benötigt, um die um die tatsächliche Beschleunigerenergie zu ermitteln. Die Analyse von Fluor benötigt Energien, die am untersten Einstellungsrand des van de Graaff Teilchenbeschleungiers sind. Aus diesem Grund kann es passieren, dass eine eingestellte Beschleunigerenergie um einige keV abweicht. Diese Abweichung gilt es zu bestimmen und sie in den folgenden Messungen zu berücksichtigen. Zur Bestimmung der Protonenenergie wird ein Target mit einem fluorhaltigen Gemisch dünn bedampft. Die Fluorkonzentration des fluorhaltigen Gemisches ist in diesem Fall nahezu irrelevant, wobei sie nicht zu gering sein sollte. Es wäre zu erwarten, dass die Fluorkonzentration an der Oberfläche des Target eine Resonanzreaktion bei 340 keV anzeigt. Die Messung erfolgt indem der Beschleuniger auf eine Energie von 370 keV gebracht wird und sich die Gegenspannung auf dem höchsten positiven Niveau von +35 kV befindet. Zur Bestimmung der realen Beschleunigerenergie wird die Gegenspannung in 0,5 kV Schritten abgesenkt, um das Einsetzen der Resonanz zu verfolgen. Der Graph [4.1] zeigt eine solche Messung für die 340iger Resonanzenergie. Es werden die Counts

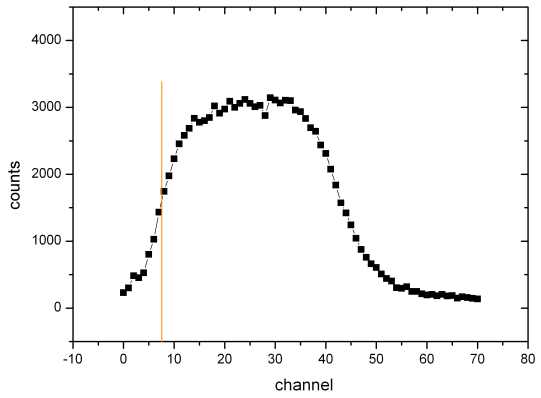

Abbildung 4.1: Kalibrierung der Protonenenergie für 340 keV

der γ - Strahlung gegen die Kanäle, in denen sie gemessen werden, aufgetragen. Jeder Kanal entspricht einem Energiewert. Sowohl die Energie des Beschleunigers, als auch die Resonanzkurve sind gaußförmige Funktionen. Bei der Messung des Fluorprofils erhält man deshalb in erster Näherung (bei einer dünn bedampften Probe) ein Kastenprofil, dessen Kanten gaußförmig abgerundet sind. Zum Bestimmen des Startwertes der Resonanz orientiert man sich an der ansteigenden Gaußkurve. Es wird der Punkt an dem der ansteigende Graph das halbe Maximum erreicht hat, als Startpunkt der Resonanzreaktion betrachtet. In dieser Messung muss dem Resonanzstartpunkt die Energie aus Kanal sieben zugeordnet werden. Demnach setzt die Resonanzenergie für unsere Beschleunigereinstellung bei einem Wert von $370keV - (35keV - 7 \times 0.5keV) = 338,5keV$ ein und nicht etwa bei 340 keV. In den weiteren Auswertungen müssen alle Energiewerte, bei denen diese Resonanz gemessen wurde, um den Offset von 1.5 keV korrigiert werden. Für die Messung der Resonanzenergie bei 484 keV wird analog verfahren (Graph [4.2]). Der Beschleuniger wird auf eine Energie von 510 keV eingestellt und die einzelnen Kanäle haben eine Energiedifferenz von 0,5 keV.

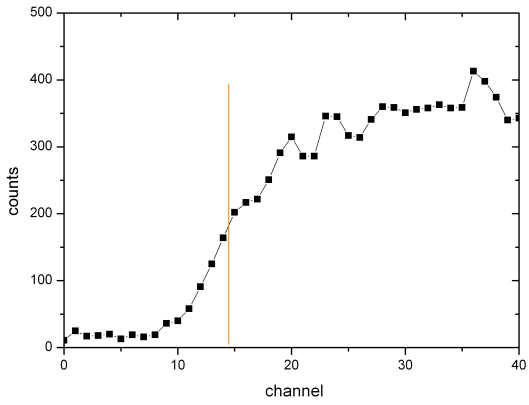

Abbildung 4.2: Kalibrierung der Protonenenergie für 484 keV

Bei der Bestimmung der Resonanzenergien der 340 keV und der 484 keV Resonanzreaktion ist zu erkennen, dass die Ausbeute jeweils bei dem Nullwert startet. Dabei fehlt jeglicher Untergrund durch niederenergetische Resonanzreaktionen. Diese würden bei nicht zu dünnen Materialien tatsächlich erkennbar sein. Die Messung am dünnen Target ermöglicht es den Protonen aber nicht genügend Energie zu verlieren, um die niederenergetische Resonanzreaktion auszuführen. Der halbe Maximalwert der ansteigenden Gaußkurve liegt bei dieser Messung bei dem Energiewert der durch Kanal vierzehn repräsentiert wird. Kanal vierzehn entspricht einer tatsächlichen Beschleunigerenergie von $510keV - (35keV - 14 \times 0.5keV) = 482keV$. Der zu berücksichtigende Offset beträgt zwei keV und muss bei allen folgenden Messungen beachtet werden.

4.2 Kalibrierung der Ausbeute

Die Kalibrierung der Ausbeute wird dazu verwendet die in Gleichung (2.12) geforderte Referenzkonzentration und Referenzausbeute zu stellen. Es ist nicht möglich einen Literaturwert für die Referenzwerte zu benutzen, da sie Messschwankungen unterworfen sind. Zur Bestimmung der Referenzdaten wird ein CaF_2 Kristall, der aus stöchiometrischen Grunden eine Fluorkonzentration von $66\frac{2}{3}$ % aufweist, mit Protonen beschossen. Es werden die Daten für die Resonanzreaktionen benötigt, bei der im Anschluss gemessen werden soll. Eine solche Messung ist in Abbildung [4.3] beziehungsweise [4.4] dargestellt.

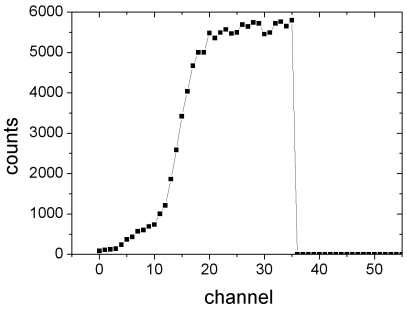

Abbildung 4.3: Kalibrierung der Standardkonzentration für 340 keV

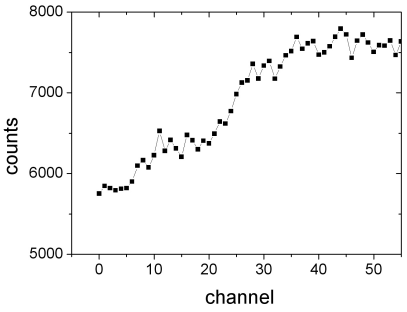

Abbildung 4.4: Kalibrierung der Standardkonzentration für 484 keV

4.3 Untersuchung des Materials

Am Beispiel von Materialien mit und ohne implantiertem Fluor soll die Eindeutigkeit des PIGE - Verfahrens dargestellt werden. Nach den in [4.1] und [4.2] geforderten Ka - librierungen werden die beiden Proben (mit und ohne Fluor) mit Protonen beschossen. Ihre Energie ist so gewählt, dass sie in dem Material, in dem Fluor implantiert wurde, alle relevanten Resonanzreaktion auslösen.

Die beiden Graphen in [4.5] gleichen sich bis auf einen Bereich um den Energiewert den die Kanäle 320 bis 400 repräsentieren. Die Gemeinsamkeiten der beiden Proben die von dem Detektor festgestellt wurden, stammen aus der Gammastrahlung, die durch die Umgebung abgegeben wird. Die Messungen in [4.6] sind ein vergrößerter Teilausschnitt der Messung [4.5] von Kanal 200 bis 500 und sollen die Unterschiede der beiden Graphen verdeutlichen.

In der Region in der sich die hochenergetische γ - Strahlung durch die Resonanzreaktion des Fluors befinden sollte ist bei dem fluorimplantierten Material ein deutlicher Peak im Vergleich zu dem nicht implantierten Material zu erkennen. Es konnte gezeigt werden, dass es keine Interferenzen von Titan oder Aluminium im Energiefenster der Flourreaktion gibt. Damit ist das PIGE Verfahren für unsere Anwendungszwecke eindeutig.

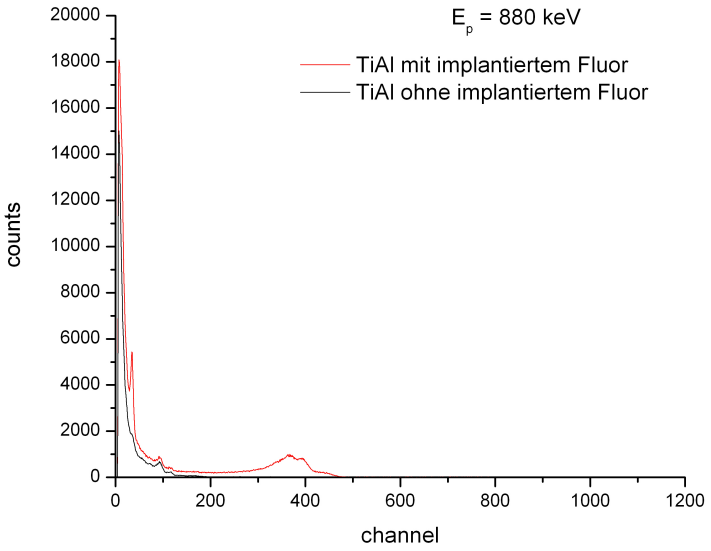

Abbildung 4.5: Gamma Emission bei Probenbeschuss

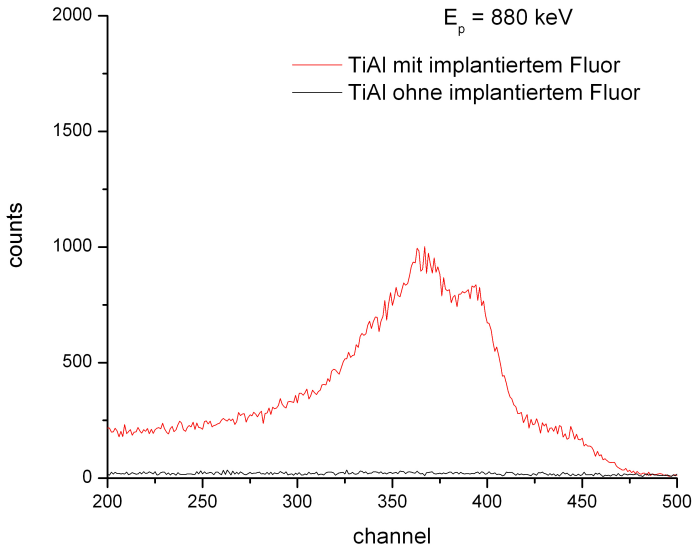

Abbildung 4.6: Vergrößerung der γ - Strahlungsausbeute um Kanal 350

Für die Konzentrationsbestimmung wird als ROI (range of interest) der Energiebereich von Kanal 338 - 414 gewählt. Für jede Projektilenergie wird die gleiche Anzahl Projektile auf die Probe geschossen. Diese Einschränkung ist nötig um die Ergebnisse (Gamma-Ausbeute) der verschiedenen Projektilenergien miteinander vergleichen zu können. Da die gleiche Anzahl an Projektilen einer festen Ladungszahl entspricht, kann die Messung über das Dreibein erfolgen. Für jede Projektilenergie wird über den ROI integriert. Die Integrationsergebnise bilden das Tiefenprofil der Probe.

Für die folgenden Auswertungen wird eine Umformung der X- und Y- Achse in Tiefe [nm] und Konzentration [at-%] anstelle von channel/Energie [keV] und γ - counts vorgenommen. Um eine Umformung der Y - Achse von γ - counts in Konzentration zu erreichen wird Gleichung (2.12) mit den unter 4.2 gewonnen Werten kompiniert. Die Umformung der X - Achse wird mithilfe von Gleichung (2.14) durchgeführt. Dabei ist zu beachten, dass sich die Stopping Power aus der prozentual gewichteten Stopping Power von Fluor und TiAl zusammensetzt. Es ergibt sich für $S_{TiAl+F} = x * S_F + (1-x)S_{TiAl}$.

4.4 Untersuchung der Ti_3Al Legierung

Während der Versuchsreihen mit TiAl wurde auch überprüft, ob eine Legierung aus Ti_3Al dieselben positiven Effekte hätte. Zu dem Vergleich der Eigenschaften der TiAl Legierung und der Ti_3Al wurden den Legierungen Fluor implantiert und sie wurden oxidiert. Es wurden Fluorkonzentrationsbestimmungen an den frisch implantierten Materialien nach 18 stündiger Oxidation und nach 100 stündiger Oxidation durchgeführt.

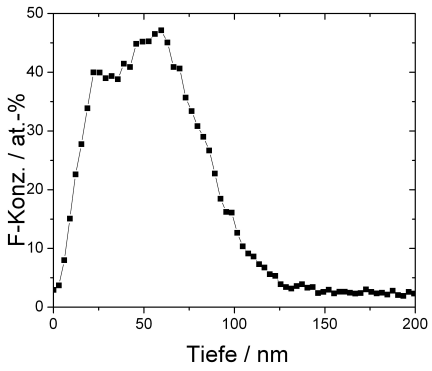

Abbildung 4.7: Ti_3Al Legierung mit frisch implantiert Fluor

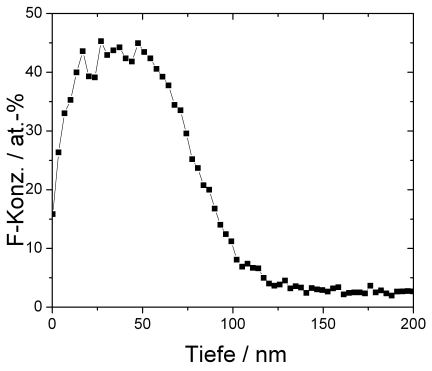

Abbildung 4.8: TiAl Legierung mit frisch implantiert Fluor

Die Ti_3Al Legierung besitzt eine geringe Fluorkonzentration an der Oberfläche, die dann rapide ansteigt bis etwa 25nm unterhalb der Oberfläche und dort ein Plateau bildet, um dann noch einmal ihre höchste Konzentration 65 nm unterhalb der Oberfläche zu erreichen. Danach fällt sie stark ab, bis sie bei 125nm unterhalb der Oberfläche eine konstante Konzentration beibehält. Bei der in größeren Tiefen einsetztenden konstanten

Fluor Konzentration handelt es sich um Messfehler die durch Energy Straggling entstanden sind. Bei der TiAl Legierung erkennt man, aufgrund der höheren Dichte von TiAl, eine höheren Fluorkonzentration an der Oberfläche als bei der Ti_3Al Legierung. Bis zu einer Tiefe von 20 nm steigt die Konzentration an und hält diese Höchstkonzentration bis 50 nm unterhalb der Oberfläche. Der folgende Verlauf der TiAl Konzentrationskurve ist der selbe Verlauf, den auch die Ti_3Al Legierung aufweist. Beide Proben weisen erhebliche Gemeinsamkeiten auf. Sie haben die selbe Maximalkonzentration von $\approx 45\%$ und weisen einen ähnlichen Kurvenverlauf auf. Die Unterschiede an der Oberfläche erklären sich durch die unterschiedlichen Dichten der Materialien.

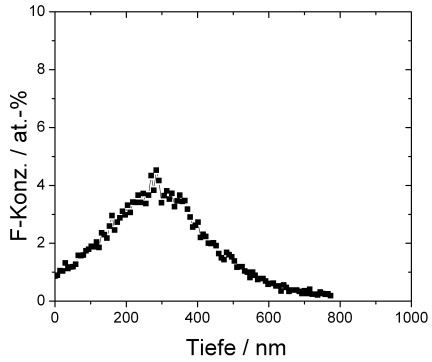

Abbildung 4.9: Ti_3Al Legierung mit implantiertem Fluor nach achtzehn stündiger Oxidation bei 900°C

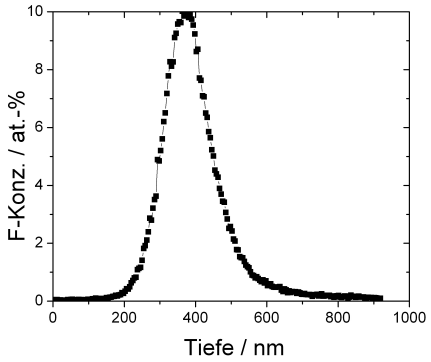

Abbildung 4.10: TiAl Legierung mit implantiertem Fluor nach achtzehn stündiger Oxidation bei 900°C

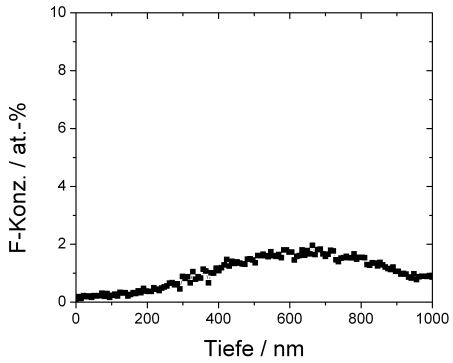

Abbildung 4.11: Ti_3Al-Legierung mit implantiertem Fluor nach hundert stündiger Oxidation bei 900°C

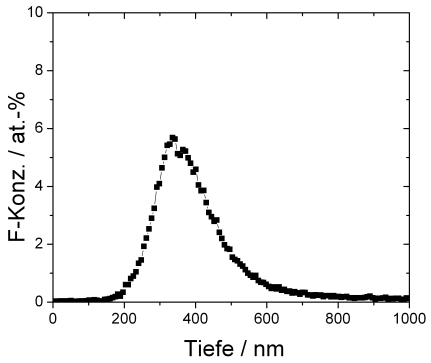

Abbildung 4.12: TiAl Legierung mit implantiertem Fluor nach hundert stündiger Oxidation bei 900°C

Die Fluorkonzentrationsbestimmungen nach 18 (Abb. [4.9],[4.10]) und 100 (Abb. [4.11],[4.12]) stündiger Oxidation zeigen, dass die Ti_3Al keine gute Oxidationsschutzschicht bilden konnte. In der Ti_3Al Legierung ist die Konzentration des Fluors nach 18 Stunden nur noch bei maximal 5% und nach 100 Stunden nur noch bei 2%. Die TiAl Legierung weist eine sehr viel höhere Maximalkonzentration von 10% und 8% auf. Das Fluor ist im TiAl sehr viel konzentrierter angeordnet als im Ti_3Al, dessen Fluorbestand auch in Richtung Oberfläche diffundiert ist. Dort zeigt sich der gravierendste Unterschied zwischen den beiden Legierungen. Bei der TiAl Verbindung ist kein Fluor an der Oberfläche vorhanden. Eine mögliche Interpretation wäre eine Oxidationsschutzschicht, gebildet aus Al_2O_3, welche für Sauerstoff als auch für das größere Fluor undurchlässig wäre und verhindern würde, dass das Fluor durch die Oxidschicht nach aussen diffundiert. Bei der Ti_3Al Legierung existiert ein gewisser Restprozentsatz der Fluorkonzentration an der Oberfläche. Deswegen ist anzunehmen, dass sich keine Al_2O_3 Schutzschicht gebildet hat und sich an der Oberfläche hauptsächlich sprödes TiO_2 entwickelte.

Um die Annahmen zu bestätigen, wird eine RBS - Analyse durchgeführt, die die Materialien bestimmt, die sich dicht an der Oberfläche befinden. Für die Auswertung wird mithilfe einer RBS - Messung ein Tiefenprofil der Elemente mit Hilfe des Programms SIMNRA [8] erstellt.

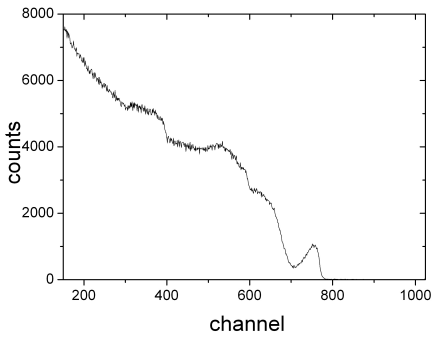

Abbildung 4.13: RBS Analyse für TiAl

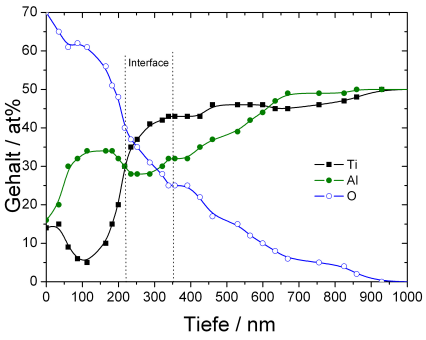

Abbildung 4.14: SIMNRA Analyse der RBS Messung

In der SIMNRA Analyse wird verdeutlicht, dass sich bei der TiAL Legierung ein Titantal an der Oberfläche gebildet hat, während die Konzentration von Aluminium dementsprechend höher ist. Dies lässt sich durch den Halogeneffekt erklären, der genügend Aluminium an die Oberfläche transportieren konnte und somit die Bildung von Al_2O_3 forcierte und die Bildung von TiO_2 unterdrückte.

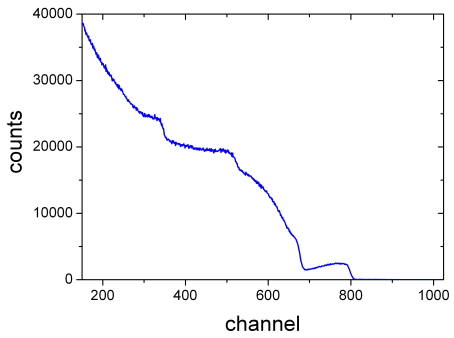

Abbildung 4.15: RBS Analyse für Ti_3Al

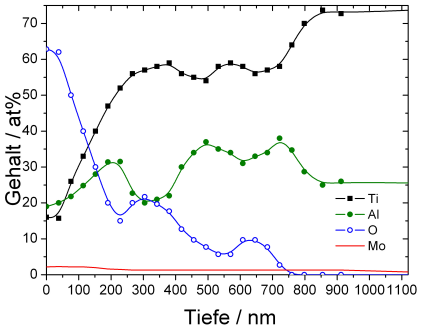

Abbildung 4.16: SIMNRA Analyse der RBS Messung

Bei der Ti_3Al Legierung fehlt das Titantal gänzlich. Die Titankonzentration steigt fast monoton. Demnach ist bei der titanhaltigeren Legierung der Anteil des Titan viel zu groß, weshalb der Aluminiumgehalt zu niedrig ist und auch nicht durch den Halogeneffekt genügend erhöht werden kann. Die Oxidation führt dann zu einer vermehrten Bildung von TiO_2, welches das Material nicht vor Sauerstoff schützen kann und durch seine spezifischen Materialeigenschaften abplatzen kann. Durch die Kombination der PIGE und RBS Analyse konnte gezeigt werden, dass die für TiAl - Legierung gültige Methodik nicht auf die Ti_3Al Legierung übertragen werden kann.

5 Ausblick

Durch die beschränkte Zeit, die einer Bachelorarbeit zur Verfügung steht, konnten nicht alle gesteckten Ziele erreicht werden. Leider war der geplante Probenhalter eines dieser Ziele. Es war jedoch möglich diesen zumindest zu entwerfen und diesen Entwurf hier zu präsentieren:

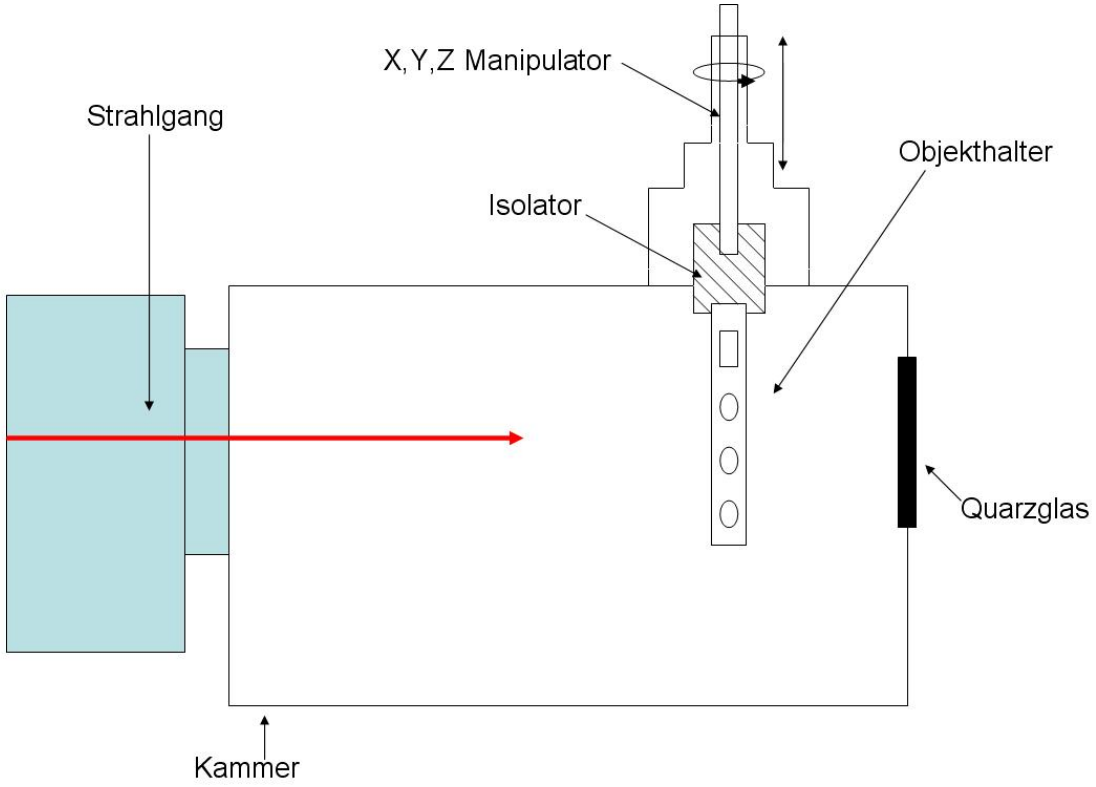

Abbildung 5.1: Schematische Darstellung des X,Y,Z Manipulators mit Probenhalter eingebaut in der Kammer

Durch die besondere Geometrie der Turbinenschaufeln war es nötig, dass der Probenhalter es ermöglichen würde, eine senkrechte Einstellung zwischen zu untersuchendem Punkt an der Turbinenschaufel und dem Ionenstrahl ferstellen zu können. Daher planten wir den Probenhalter mit drehbaren Greifarmen auszustatten, die der Probe die Möglichkeit der Rotation um die eigene Achse geben würden. Ohne diese Möglichkeit wäre, um eine Probe wirklich komplett zu untersuchen, ein Belüften der Kammer und ein manuel-

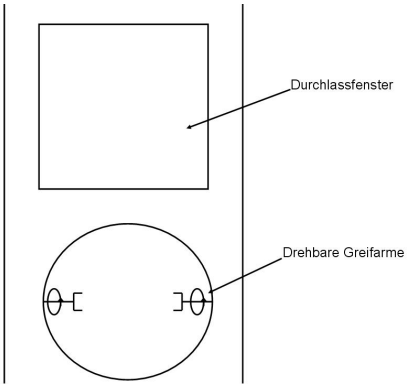

Abbildung 5.2: Schematische Darstellung des vergrößerten Probenhalters mit Greifarmen

les Drehen der Proben nötig. Unter Berücksichtigung eines Grundkonzeptes der ganzen Planung, der Zeitersparnis während des Messens, statteten wir den Objektträger mit drei Plätzen, die für Proben vorgesehen waren, und einem Platz mit einem Durchlassfenster aus. Somit ergibt sich für uns die Möglichkeit mehrere Objekte zu untersuchen ohne das Vakuum zu brechen. Das Durchlassfenster ist zur Untersuchung des Strahls gedacht. Bewegt sich der Strahl durch das Fenster hindurch, trifft er auf den dahinter liegenden Blindflansch, in dem ein Fenster bestehend aus Quarz eingearbeitet ist. Durch Wechselwirkungen des Ionenstrahls mit dem Quarzglas kann die Position und Größe des Ionenstrahls festgestellt werden. In anderen Versuchsreihen wird es auch möglich sein das Durchlassfenster mit einem Quarzglas zu füllen. Zusammenfassend lässt sich sagen, dass der Probenhalter die effektive Messzeit verlängert, da die Zeit, die zur Vakuumisierung nötig ist, drastisch reduziert würde.

Sobald die Konstruktion am Probenhalter und der Aufbau des Strahlrohrs beendet ist, kann man mit der Anwendung der Kammer begonnen werden. Dabei wird sie sich in folgenden Gebieten besonders hervorheben können.

1. Es kann damit begonnen werden die Turbinenschaufel aus TiAl-Legierung mit Hilfe des PIGE Verfahrens zu untersuchen, um die Fluor Verteilung auf der komplexen Geometrie zu bestimmen.

2. Es können weitere Tiefenprofile von Elementkonzentrationen an elektrisch leitenden Festkörpern durchgeführt werden. Die Tiefe der Analyse wird nur durch Eigenschaften der Elemente begrenzt. Die Elementauswahl ist beliebig, sofern die zur Verfügung stehende Beschleunigerenergie ausreichend ist und es zu keinen Interferenzen zwischen zu untersuchendem Material und Trägermaterial kommt. Die Analysiertiefe wird nur duch die Beschleunigerenergie begrenzt.

3. Weiterhin können auch andere Analysen mit anderen Messtechniken der Ionenstrahlanalytik optimal durchgeführt werden. Dabei sei nur auf die bereits im theoretischen Teil verwiesenen Möglichkeiten der RBS- und PIXE - Analyse verwiesen.

Durch die Fertigstellung der Kammer und der mit ihr verbundenen Apparaturen ergeben sich auch weitere Aufgabenfelder. So konnte sich zur Zeit noch keine Methode etablieren, die die Beamline-Implantation ersetzten könnte. In der Vergangenheit wurden den Laborproben durch den 60 kV Implanter des IKF bestimmte Fluorkonzentrationen injektiert. Aufgrund der schon vorher erwähnten umständlichen, im physikalischen Sinne, Geometrie der Turbinenschaufel ist dies nicht mehr möglich. Alternativen hierzu wären die Probe in ein HF Bad zu tauchen, sie mit Teflon-Spray zu behandeln oder mithilfe der Plasma Immersions Ionenimplantation Technik zu bearbeiten. Weitere Versuchsreihen müssen zeigen, welche dieser Möglichkeiten sich für die späteren industriellen Anforderungen als angemessen erweist . Es zeigt sich also, dass die von uns gebaute Kammer auch durch die von uns vorgenommenen Optimierungen, in nächster Zeit für diverse Messungen bei der Analyse von Festkörpern benutzt werden wird.

Literaturverzeichnis

[1] J.L. Murray, Phase Diagrams of binary Titanium Alloys, ASM, Metals Park, Ohio, USA, 1987

[2] T. Majewski, Spurenbestimmung metallischer Verunreinigungen in γ - TiAl und den hochreinen Ausgangsmaterialien Al und Ti mittels ICP Massenspektrometrie,Dissertation Universität Hannover, 2002

[3] W.T. Hering, Angewandte Kernphysik, Teubner Studienbücher, 1999

[4] Joseph R. Tesmer, Michael Nastasi, Handbook of Modern Ion Beam Materials Analysis, Materials Research Society,1995

[5] J.R. Bird, J.S. Williams, Ion Beams for Materials Analysis, Academic Press, 1989

[6] A. Donchev, M. Schütze, Improvement of the oxidation resistance of - TiAl alloys by ion implantation, TurboMat Bonn, 2002

[7] M. Peters, C. Leyens, Titan und Titanlegierungen, WILEY-VCH Verlag GmbH und Co. KGaA, 2002

[8] Dr. Matej Mayer, SIMNRA Version 6.03

Abbildungsverzeichnis

1.1 TiAl-Phasendiagramm. Entnommen aus [1] 5

2.1 Schaubild zur Verdeutlichung der RBS,PIXE und PIGE Reaktion 7
2.2 Entstehung des charakteristischen Röntgenemissionspektrums 10
2.3 Darstellung des Zusammenhangs zwischen γ - Strahlungs Ausbeute (bzw. Konzentration) und Energie (bzw. Eindringtiefe) 12
2.4 Darstellung der Uneindeutigkeit des Ursprungs der γ - Strahlen 14
2.5 Reaktionsmechanismus des PIGE-Effekts am Beispiel Fluor 15

3.1 Schematische Darstellung der Kammer ohne Abdeckungen, Blickrichtung in Strahlrichtung 18
3.2 Exemplarische Darstellung eines Adapters für die Messaparaturen und die Spannungsdurchführungen 19
3.3 Schaubild der Höhenverstellung 20
3.4 Schematische Darstellung der Einzelteile des Multifunktionsrohres 22
3.5 Schaublid der Implementierung von Kamera und Laser 23
3.6 Schematische Dreibeinzeichnung zum Verdeutlichen der Position der neuen Endkonstruktion 24
3.7 Schematische Darstellung der Höhenverstellung des Multifunktionsrohres . 25
3.8 Schematische Darstellung des Vakuumsystems 25

4.1 Kalibrierung der Protonenenergie für 340 keV 27
4.2 Kalibrierung der Protonenenergie für 484 keV 28
4.3 Kalibrierung der Standardkonzentration für 340 keV 29
4.4 Kalibrierung der Standardkonzentration für 484 keV 29
4.5 Gamma Emission bei Probenbeschuss 30
4.6 Vergrößerung der γ - Strahlungsausbeute um Kanal 350 30
4.7 Ti_3Al Legierung mit frisch implantiert Fluor 31
4.8 TiAl Legierung mit frisch implantiert Fluor 31
4.9 Ti_3Al Legierung mit implantiertem Fluor nach achtzehn stündiger Oxidation bei 900°C 32
4.10 TiAl Legierung mit implantiertem Fluor nach achtzehn stündiger Oxidation bei 900°C 32
4.11 Ti_3Al-Legierung mit implantiertem Fluor nach hundert stündiger Oxidation bei 900°C 32
4.12 TiAl Legierung mit implantiertem Fluor nach hundert stündiger Oxidation bei 900°C 32

4.13 RBS Analyse für TiAl 33
4.14 SIMNRA Analyse der RBS Messung 33
4.15 RBS Analyse für Ti_3Al 34
4.16 SIMNRA Analyse der RBS Messung 34

5.1 Schematische Darstellung des X,Y,Z Manipulators mit Probenhalter eingebaut in der Kammer 35
5.2 Schematische Darstellung des vergrößerten Probenhalters mit Greifarmen 36

Tabellenverzeichnis

2.1 PIGE Resonanzenergien für Fluor. Entnommen aus [4]. 13

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen Personen danken, die durch ihre Unterstützung an dieser Bachelorarbeit mitgewirkt haben.

Vor allem möchte ich mich bei Sven Neve bedanken, der mir bei der Ausarbeitung der Bachelorarbeit jederzeit mit seinem Rat zur Seite stand. Des Weiteren möchte ich mich ausdrücklich bei Prof. Dr. Reinhard Dörner für die freundliche Aufnahme in seine Arbeitsgruppe und seine Hilfsbereitschaft bedanken. Weiterhin danke ich Dr. Hans - Eberhard Zschau für die kunstruktiven Diskussionen.
Abschließend möchte ich meiner Familie und meiner Freundin für die Unterstüzung während der oftmals stressigen Zeit danken.

Eidesstattliche Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die Arbeit selbstständig und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Quellen und Hilfsmittel verfasst habe. Alle Stellen der Arbeit, die wörtlich oder sinngemäß aus Veröffentlichungen oder aus anderen fremden Texten entnommen wurden, sind von mir als solche kenntlich gemacht worden. Ferner erkläre ich, dass die Arbeit - auch nicht auszugsweise - für eine andere Prüfung verwendet wurde.

Frankfurt am Main, den 23. Oktober 2008

Frederik King