

Diplomarbeit in Physik
angefertigt im
Helmholtz - Institut für Strahlen- und Kernphysik

Aufbau und Test eines Hochtemperaturmessofens für γ - γ -Winkelkorrelationsmessungen

vorgelegt der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der
Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

von
Marius Arenz

Bonn, September 2010

Diplomarbeit in Physik
angefertigt im
Helmholtz - Institut für Strahlen- und Kernphysik

Aufbau und Test eines Hochtemperaturmessofens für γ - γ -Winkelkorrelationsmessungen

vorgelegt der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der
Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

von
Marius Arenz

Bonn, September 2010

Anfertigung mit der Genehmigung
der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

Referent: Privatdozent Dr. Reiner Vianden

Korreferent: Prof. Dr. K.-T. Brinkmann

Hiermit versichere ich, dass ich diese Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt sowie die Zitate kenntlich gemacht habe.

Bonn, den 30.9.2010

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
2. Der Hochtemperaturmessofen	3
2.1 Materialauswahl	3
2.2 Aufbau des Hochtemperaturmessofens	8
2.2.1 Der Graphitheizer	8
2.2.2 Die Stromdurchführung	10
2.2.3 Die Elektrodenkühlung	11
2.2.4 Der Elektrodenhalter	12
2.2.5 Das Kreuzstück	13
2.2.6 Die Thermoelementzuführungen	14
2.2.7 Die obere Ofenummantelung	16
2.2.8 Der Ofenfuß	18
2.2.9 Die Probenhalter	19
3. Temperaturgenauigkeit des Hochtemperaturmessofens	23
3.1 Temperaturverteilung entlang des Heizers	23
3.2 Temperaturanisotropie des Heizers	27
3.2.1 Einfluss der Elektrodenkühlung	28
3.2.2 Einfluss der Fertigungstoleranzen	29
3.3 Einsatzbereich und dessen Grenzen	30
4. Die Vierdetektoranlage	33
4.1 Der ursprüngliche Aufbau	33
4.2 Der Umbau der Vierdetektoranlage	34

5. Theoretische Grundlagen der PAC	37
5.1 Die ungestörte γ - γ -Winkelkorrelation	37
5.2 Die gestörte γ - γ -Winkelkorrelation	38
5.2.1 Die Störfunktion bei elektrischer Quadrupolwechselwirkung	39
5.3 ^{111}In als Sondenkern	40
5.4 Messdatenanalyse	41
6. Erste Messungen	43
6.1 Probenpräparation	43
6.1.1 Implantation und Ausheilen	43
6.1.2 Einschmelzen	44
6.2 Schmelzpunktmessungen	44
7. Zusammenfassung	49
Anhang	51
Abbildungsverzeichnis	64
Danksagung	65

1. Einleitung

Der Einfluss von Halbleitern und Halbleitertechnologie auf unsere Gesellschaft wächst seit Jahren stetig. Die Einsatzgebiete sind vielfältig und reichen von alltäglichen integrierten Schaltungen in Computern, Unterhaltungs- und Mobilfunkelektronik über die immer fortschrittlichere Photovoltaik bis hin zu wissenschaftlichen Anwendungen wie Halbleiterdetektoren.

Die Weiterentwicklung und fortschreitende Miniaturisierung sowie Erweiterungen der Anwendungsgebiete erfordern ein immer tieferes Verständnis vom Aufbau und den in Halbleitern ablaufenden Prozessen. Auch die Entwicklung neuer Halbleitermaterialien erfordert Einsichten in Vorgänge die zum Beispiel beim Dotieren stattfinden.

Häufig zur Untersuchung von Halbleitern eingesetzte kernphysikalische Methoden sind neben der gestörten γ - γ -Winkelkorrelation (PAC, Perturbed Angular Correlation) auch kernmagnetische Resonanz und Mößbauer-Spektroskopie. Alle drei Methoden gehören zu den hyperfeinspektroskopischen Methoden und sind lokale Methoden, die gewonnenen Informationen stammen aus der direkten Gitterumgebung der Kerne.

Im Vergleich zur PAC ist die Population der Hyperfeinniveaus bei beiden anderen Verfahren allerdings von der Temperatur abhängig. Der Vorteil der PAC gegenüber der anderen Methoden ist also, dass sich temperaturabhängige Messungen durchführen lassen, wobei die Temperatur theoretisch nicht nach oben begrenzt und die Grenze lediglich durch deren technische Realisierbarkeit gegeben ist.

Temperaturabhängige PAC Messungen eignen sich unter anderem zur Untersuchung von Defekten wie Leerstellen, substitutionellen Gitterdefekten in Metallen und Halbleitern. Hierbei kann deren Dynamik mit steigender oder fallender Temperatur studiert werden kann. Messungen im Bereich des Schmelzpunktes ermöglichen ferner die Untersuchung von Phasenübergängen und Rekristallationsprozessen.

Bei den in der Arbeitsgruppe durchgeführten Messungen spielt die Temperaturabhängigkeit eine große Rolle. Bedingt durch die lange Dauer einer Messung sind die Kapazitäten für Messungen an einem PAC-Ofen stark begrenzt, so dass der Aufbau eines weiteren Messplatzes angebracht ist.

Mit dieser Diplomarbeit wird ein PAC-Ofen in dritter Generation im HISKP der

Universität Bonn konstruiert. Viele der in den bereits existierenden Aufbauten eingesetzten Bauteile hatten sich im Laufe der Jahre bereits bewährt. Es wird also nicht nur ein weiterer Messplatz aufgebaut, sondern alle Erfahrungen, die mit den bisherigen Apparaten gesammelt wurden, fließen in die Konstruktion des neuen PAC-Ofens ein, um diesen besser an die Messanforderungen anzupassen. Diese Diplomarbeit widmet sich vor allem dem mechanischen Aufbau der Apparatur. Eine detaillierte Beschreibung der Kühlsysteme, der Stromversorgung sowie der Temperatursteuerung findet sich in [Coj10] mit dessen Kooperation dieses Projekt realisiert wurde.

2. Der Hochtemperaturmessofen

Der Bau dieses PAC-Ofens stellt höchste Anforderungen sowohl an die verwendeten Werkstoffe, als auch an die konstruierten Teile selbst. Um die Ausbeute an γ -Quanten zu optimieren bedarf es einer aufwändigen Geometrie und Materialien, die trotz hoher Temperaturbeständigkeit nur einen geringen γ -Absorptionsquerschnitt haben. In diesem Kapitel werden die für die Konstruktion des PAC-Ofens benutzten Materialien sowie die einzelnen Komponenten vorgestellt und deren Funktionsweise und Montage beschrieben.

2.1 Materialauswahl

Bevor auf die Konstruktion des PAC-Ofens eingegangen wird, sollen einige Materialien und deren für den Aufbau des PAC-Ofens relevante physikalische Eigenschaften vorgestellt werden. Von Interesse sind vor allem das Verhalten unter hoher thermischer Belastung, die Einsatzfähigkeit im Vakuum, das Verhalten in Anwesenheit von großen Strömen, die Absorption von γ -Strahlung sowie die Verarbeitbarkeit des Materials. Eine Zusammenfassung der physikalischen Eigenschaften der verwendeten Materialien findet sich in Tabelle 2.1.

2.1.1 Macor

Das Material Macor der Firma Corning ist eine Glaskeramik, die mit herkömmlichen Werkzeugen spanend¹ bearbeitet werden kann. Es ist somit möglich, Teile aus Macor in der feinmechanischen Werkstatt des HISKP fertigen und den experimentellen Bedingungen anpassen zu lassen, ohne auf kostenintensive und mit langen Lieferfristen behaftete Sonderanfertigungen zurückgreifen zu müssen.

Macor kann dauerhaft bei Temperaturen bis zu 800 °C eingesetzt werden bevor es sich verformt und verkohlt. Die thermische Ausdehnung ist ebenso wie die Wärmeleitfähigkeit gering. Macor ist ein guter Isolator mit einer hohen Durchschlagfestigkeit und gast unter Vakuum nicht aus. Wegen einer niedrigen Ordnungszahl

¹ Unter Spanen versteht man Bearbeitungsverfahren von Werkstoffen, bei denen das Werkstück durch Abtragen von Spänen in die gewünschte Form gebracht wird. Spanende Bearbeitungsmethoden sind zum Beispiel Fräsen, Drehen, Bohren und Schleifen.

der Bestandteile und einer geringen Dichte ist die γ -Absorption akzeptabel. Macor setzt sich zusammen aus: 46% SiO₂, 17% MgO, 16% Al₂O₃, 10% K₂O, 7% B₂O₃ und 4% F [Cor].

Material	E $\left[\frac{\text{kV}}{\text{mm}}\right]$	$\alpha \cdot 10^{-6}$ $\left[\frac{1}{\text{K}^{-1}}\right]$	T_c [°C]	\bar{Z}
Macor	9,4 (25 °C)	12,6 (25 - 800 °C)	800 [1000]	9,9
Quarzglas	4-5 (500 °C)	0,48 (0 - 900 °C)	1160 ² [1300]	10
Graphit	-	3,9 (20-200°C)	3550 ³	6
Aluminium	-	23,8 (0-100°C)	659	13
Aluminiumoxid	k.A.	8,5 (20-1000°C)	1950	10
Bornitrid	6 (k.A.)	4,1 (1000 °C)	2100	6,1
Teflon	20 (k.A.)	165,0 (k.A.)	260 [300]	7,9

Material	ϱ $\left[\frac{\text{g}}{\text{cm}^3}\right]$	R [Ωcm]	λ $\left[\frac{\text{W}}{\text{m}\cdot\text{K}}\right]$	Quelle
Macor	2,52	$>1\cdot 10^{16}$ (25 °C)	1,46 (25 °C)	[Cor]
Quarzglas	2,2	$13\cdot 10^4$ (1200 °C)	2,68 (950 °C)	[Her09] ⁴⁵
Graphit	1,84	$14\cdot 10^{-4}$ (k.A.)	90,0 (k.A.)	[SGL]
Aluminium	2,7	$28\cdot 10^{-7}$ (20 °C)	204,0 (20°C)	[Fis08]
Aluminiumoxid	3,7-3,95	$1\cdot 10^7$ (1000°C)	30,0 (100 °C)	[Fri]
Bornitrid	2,2	$85\cdot 10^9$ (k.A.)	25,0 (1000 °C)	[Mül90]
Teflon	2,17	$1\cdot 10^{16}$ (k.A.)	0,23 (k.A.)	[Ams03] ⁵

Tabelle 2.1: Zusammenstellung relevanter physikalischer Eigenschaften der genutzten Materialien. Angegeben sind Durchschlagfestigkeit (E), linearer thermischer Ausdehnungskoeffizient (α), maximale Einsatztemperatur (T_c), mittlere Ordnungszahl (\bar{Z}), Dichte (ϱ), spezifischer Widerstand (R) und thermische Leitfähigkeit (λ). Bei temperaturabhängigen Größen ist entweder der Gültigkeitsbereich oder eine entsprechende Temperatur angegeben. Die Einsatztemperaturen gelten nur für Vakuum, die Temperaturen in eckigen Klammern gelten nur für kurzzeitigen Einsatz.

² Die vom Hersteller angegebenen Einsatztemperatur stellt sicher, dass beim Abkühlen keine starken Spannungen entstehen. Eine detaillierte Diskussion der Einsatztemperatur findet sich in Kapitel 2.1.2.

³ Angabe aus [Fis08]

⁴ Alle Angaben gelten für elektrisch geschmolzenes Quarzglas, die häufigste Herstellungsart.

⁵ Das Material stammt aus Lagerbeständen, der Hersteller ist nicht mehr zu ermitteln. Die angegebenen Materialeigenschaften dienen somit nur als Richtwert. Je nach Hersteller und Herstellungsverfahren können die physikalischen Eigenschaften leicht variieren.

2.1.2 Quarzglas

Bei Quarz- oder Kieselglas handelt es sich um ein Glas aus sehr reinem SiO_2 ; Beimengungen anderer Stoffe liegen je nach Fertigungsqualität im ppm- oder sogar im ppb-Bereich.

Die Verarbeitung von Glas ist schwierig und aufwendig, verglichen mit Materialien, die spanend verarbeitet werden können. Eine Bearbeitung ist in der Glasbläserei des Chemisches Instituts der Universität Bonn möglich.

Quarzglas verhält sich auch bei hohen Temperaturen chemisch neutral und ist auch dann ein guter Isolator mit hoher Durchschlagfestigkeit. Die thermische Ausdehnung ist ebenso wie die Wärmeleitfähigkeit äußerst gering. Im Vakuum gast es nicht aus und die γ -Absorption ist wegen der geringen Dichte und der niedrigen Kernladungszahl der Bestandteile akzeptabel.

Da das benutzte Quarzglas aus Lagerbeständen stammt, ist der Hersteller und das Herstellungsverfahren nicht bekannt. Beispielfhaft werden hier Werte von elektrisch geschmolzenem Quarzglas, dem häufigsten Herstellungsverfahren, von [Her09] genannt. Wie für amorphe Stoffe üblich, ist es nicht möglich, einen Schmelzpunkt anzugeben. Stattdessen wird der untere Kühlpunkt (1125°C), der obere Kühlpunkt (1220°C) und der Erweichungspunkt (1710°C) angegeben.

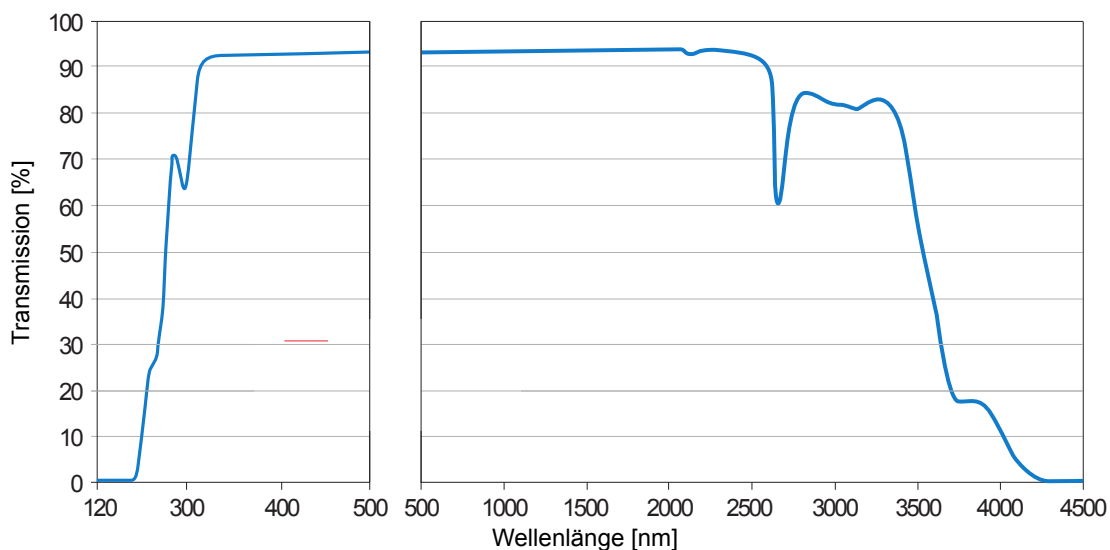


Abbildung 2.1: Die Transmissionskurve von Quarzglas bei 10 mm Glasstärke.[Her09]

Je weiter man Quarzglas über den unteren Kühlpunkt erhitzt, umso schneller beginnen sich innere Spannungen abzubauen. Beim Abkühlen von Glas können sowohl temporäre als auch permanente Spannungen entstehen. Ein schnelles Abkühlen ab einer Ausgangstemperatur, die 10°C unterhalb des unteren Kühlpunktes liegt, hinterlässt keine permanenten Spannungen im Glas. Fällt die Temperatur

jedoch von einer über dem unteren Kühlpunkt liegenden Ausgangstemperatur schnell ab, so bleiben beim Abkühlen Spannungen im Glas zurück. Eine dauerhafte Erhitzung des Materials über die empfohlene Einsatztemperatur ist unbedenklich, solange das Bauteil keinen mechanischen Belastungen ausgesetzt ist, unter denen das verspannte Quarzglas brechen könnte. Erreicht man den Erweichungspunkt, so verformt sich das Material durch sein Eigengewicht [Mac00].

Quarzglas hat einen niedrigen linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten welcher eine hohe Temperaturwechselbeständigkeit zur Folge hat. Der lineare thermische Ausdehnungskoeffizient von Quarzglas liegt mit $0,48 \cdot 10^{-6} \text{ 1/K}$ etwa einen Faktor 20 unter dem von normalem Glas (10^{-5} 1/K im Temperaturbereich von 0°C bis 50°C [Hor08]). Die Temperaturwechselbeständigkeit von Quarzglas ist deswegen deutlich höher. Bei Anwendungen mit schnellen Temperaturwechseln oder bei Vorhandensein starker Temperaturgradienten ist Quarzglas normalem Glas vorzuziehen.

Quarzglas ist nicht nur im optischen Bereich transparent, sondern verfügt über eine Transmission von über 90% im Wellenlängenbereich von 200 nm bis 2500 nm; die Transmissionskurve von Quarzglas aus [Her09] ist in Abbildung 2.1 dargestellt.

2.1.3 Graphit

Der hier zum Einsatz kommende Kohlenstoff ist der sogenannte Elektrographit, der nach dem Glühen einer weiteren Hitzebehandlung, dem Graphitieren, unterzogen wird. Das genutzte Material EK93 wird nicht mehr produziert, war jedoch noch im Institut vorrätig. Es war kein Datenblatt mehr vom Hersteller SGL Carbon verfügbar, als vergleichbar wurde vom Hersteller der Elektrographit R6650, ehemalige Bezeichnung EK98, genannt [SGL].

Graphit verfügt über einen sehr hohen Schmelzpunkt von etwa 3550°C , ab 500°C oxidiert es unter sauerstoffhaltiger Atmosphäre rasch. Es ist ein guter Leiter, verhält sich chemisch neutral und dampft bei Raumtemperatur im Vakuum nicht aus. Wegen seiner geringen Ordnungszahl und Dichte ist die γ -Absorption gering.

Graphit lässt sich sehr gut spanend bearbeiten. Die Fertigung von Teilen daraus ist ausnahmslos in der feinmechanischen Werkstatt des HISKP möglich.

2.1.4 Aluminium

Aluminium hat eine relativ niedrige Schmelztemperatur, jedoch eine große Wärmeleitfähigkeit. Es dampft im Vakuum nicht aus und ist so leicht zu bearbeiten, dass viele Aluminiumteile, die nicht mit zu hoher Genauigkeit benötigt werden,

selbst gefertigt werden können. Mit seiner für ein Metall geringen Dichte und niedrigen Ordnungszahl ist die γ -Absorption vergleichsweise gering.

Weiterhin hat Aluminium eine hohe Reflektivität, vor allem im infraroten Bereich. Eine Darstellung der Reflektivitätskurve aus [Ple06] findet sich in Abbildung 2.2.

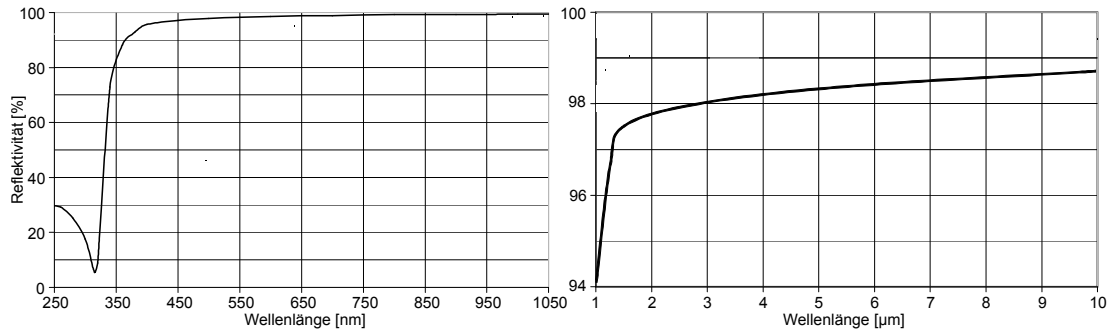


Abbildung 2.2: Die Reflektivitätskurve von Aluminium. Vor allem im infraroten Bereich liegt die Reflektivität über weite Strecken über 98%. [Ple06]

2.1.5 Aluminiumoxid

Bei Aluminiumoxid, Al_2O_3 , handelt es sich um eine hoch temperaturbeständige Oxidkeramik, die permanente Einsatztemperaturen von 1950°C ermöglicht. Die Wärmeleitfähigkeit ist für eine Keramik recht hoch, es verhält sich chemisch neutral, gast im Vakuum nicht aus und ist ein guter Isolator.

Nachteilig ist vor allem, dass sich Aluminiumoxid schlecht verarbeiten lässt. Es kann nur mit speziellen Diamantsägeblättern unter Wasser geschnitten werden und muss so direkt in der gewünschten Form bestellt werden.

2.1.6 Bornitrid

Bornitrid, BN, ist eine chemische Verbindung, die im Idealfall zu gleichen Teilen aus Bor und Stickstoff besteht. Sie ist hohtemperaturbeständig und hat einen kleinen linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten sowie eine geringe thermische Leitfähigkeit. Bornitrid verhält sich chemisch neutral und gast im Vakuum nicht aus. Es besitzt einen hohen Widerstand und eine hohe Durchschlagfestigkeit. Durch eine moderate Dichte und eine niedrige Ordnungszahl der Bestandteile ist die γ -Absorption gering.

Bornitrid ist zwar einfach zu bearbeiten, ist jedoch brüchig und so nicht gut geeignet, um filigrane oder dünnwandige Bauteile herzustellen.

2.1.7 Teflon

Polytetrafluorethylen, kurz PTFE, besser bekannt unter dem Handelsnamen Teflon der Firma Dupont⁶, ist ein teilkristalliner Thermoplast mit der Summenformel C_2F_4 . Durch seine niedrige thermische Leitfähigkeit, seinen hohen Widerstand sowie der hohen Durchschlagfestigkeit ist es ein hervorragender thermischer und elektrischer Isolator. Teflon ist nur bis zu relativ niedrigen Temperaturen von 260 °C permanent einsetzbar und besitzt einen großen linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten.

Teflon verhält sich chemisch neutral und gast unter Vakuum nicht aus. Es ist weich und damit leicht zu bearbeiten. 100 μm starkes Teflonband dient an allen Gewinden, die vakuum- oder wasserdicht sein sollen, als Dichtungsmaterial.

2.2 Aufbau des Hochtemperaturmessofens

In diesem Kapitel wird der mechanische Aufbau des PAC-Ofens und die Aufgabe und Funktionsweise aller Komponenten beschrieben. Die Materialauswahl sowie die gewählte Geometrie der Bauteile wird diskutiert. Zu der nicht immer einfachen Montage der PAC-Ofenkomponenten werden Hinweise gegeben. Die Abbildungen in diesem Kapitel verstehen sich als Illustrationen, Konstruktionspläne finden sich in Kapitel 7.

2.2.1 Der Graphitheizer

Als Heizelement wird im PAC-Ofen ein geschlitztes Graphitröhrchen von 0,75 mm Wandstärke genutzt. An ihm werden bis zu 20 V angelegt, wobei Ströme bis zu 73 A fließen. Der Widerstand des Heizers beträgt 0,4 Ω bei Raumtemperatur und 0,3 Ω bei etwa 2000 °C [For92]. Im Vergleich zu anderen Heizmethoden, wie zum Beispiel dem Heizen über einen Heizdraht, hat der Graphitheizer einige Vorteile, die seine Nachteile deutlich überwiegen.

Da der Heizer die Probe umgeben sollte, um so eine möglichst isotrope Temperaturverteilung zu erzielen, trägt das Heizelement zur Absorption der zu untersuchenden Strahlung bei. Es ist also von besonderem Interesse, die Ordnungszahl und Dichte des Heizelements gering zu halten, um unnötige Absorption zu vermeiden, denn die Verluste durch Absorption können nur bedingt durch eine Erhöhung der Aktivität der Probe ausgeglichen werden (siehe Gleichung 5.19). Als Heizwendel sind in früheren PAC-Öfen Wolfram und vor allem Tantal zum Einsatz gekommen, deren Absorption deutlich stärker als die von Graphit ausfällt. Soll mit einem

⁶ <http://www.dupont.com>

Heizdraht eine isotrope Temperaturverteilung erreicht werden, so muss der Draht eng gewickelt werden.

Da die Drahtspirale zusätzlich stabil genug sein muss, um der mechanischen Belastung beim Ein- und Ausbauen des Probenhalters standzuhalten, benötigt man Drähte mit einem Durchmesser von etwa 1 mm. Vor allem bei Wolframglühwendeln stellt sich zusätzlich das Problem der Versprödung des Materials nach einmaligem Aufheizen. Außerdem sind die Schweißpunkte, mit denen die Glühwendeln befestigt sind, starken thermischen Spannungen ausgesetzt und können brechen [Mül90]. Ein derart dicht gewickelter Draht des genannten Durchmessers stellt jedoch einen guten Absorber für die zu untersuchende Strahlung dar [For92].

Mit seinem hohen Schmelzpunkt und seinem zum Heizen ausreichend hohen Widerstand eignet sich Graphit gut als Heizmaterial, vor allem, weil der Heizer auch nach mehrfachem Heizen auf hohe Temperaturen mechanisch noch stabil ist. Die Entnahme des Probenhalters gelingt üblicherweise ohne Beschädigung des Heizers. Die Fertigung der Graphitheizer ist durch die gute Verarbeitbarkeit von Graphit verhältnismäßig einfach und kann in der feinmechanischen Werkstatt des HISKP auf Vorrat erfolgen. In geringem Maße kann der Innendurchmesser an den Durchmesser der genutzten Probenhalter angepasst werden.

Nachteilig an den benutzten Graphitheizern ist, dass diese vor allem bei hohen Temperaturen Material abdampfen. Hochtemperaturmessungen führen zwangsläufig zu einer Zerstörung des Heizers nach einigen Messungen; die mechanische Belastbarkeit nimmt nach Hochtemperaturmessungen oder mehrfachem Heizen auf Temperaturen über 1000 °C merklich ab. Das Vakuum wird durch die abdampfenden Kohlenstoffatome leicht beeinträchtigt.

Die schnelle Oxidation von Graphit bei Temperaturen ab 500 °C setzt Vakuum im PAC-Ofen voraus, je schlechter das Vakuum ist, desto kürzer ist die Lebensdauer des Heizers. Das Vakuum ist weiterhin erforderlich, um Konvektion als Wärmetransportme-

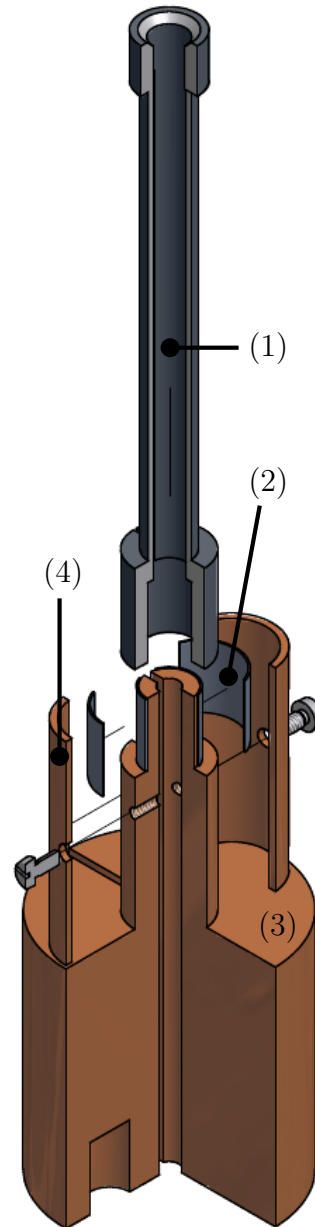


Abbildung 2.3: Eine Explosionszeichnung des Heizers (1) einschließlich Kupferblöcken (2), Tantalblättchen (3) und Klemmen (4) im Dreiviertelschnitt.

chanismus zu unterbinden und so einen großen Wärmeverlust des Heizers zu verhindern.

Während der Experimente treten Hinweise auf eine nicht exakt isotrope Temperaturverteilung innerhalb der Heizer auf, welche in Kapitel 3.2 im Detail diskutiert werden.

2.2.2 Die Stromdurchführung

Die Stromversorgung des Heizers im PAC-Ofen ist durch eine handelsübliche vakuumdichte Stromdurchführung der Firma Hositrad ⁷ realisiert. Die Durchführung sitzt auf einem NW 35 CF-Flansch, der am DN 40 CF-Flansch des Kreuzstückes (siehe Kapitel 2.2.5) angebracht wird. Die Stromdurchführung muss folgende Anforderungen erfüllen:

Die Elektroden der Stromdurchführung müssen sowohl thermisch, als auch elektrisch gegen den restlichen PAC-Ofen isoliert sein. Beides ist durch die Keramikstutzen der Stromdurchführung gut realisiert.

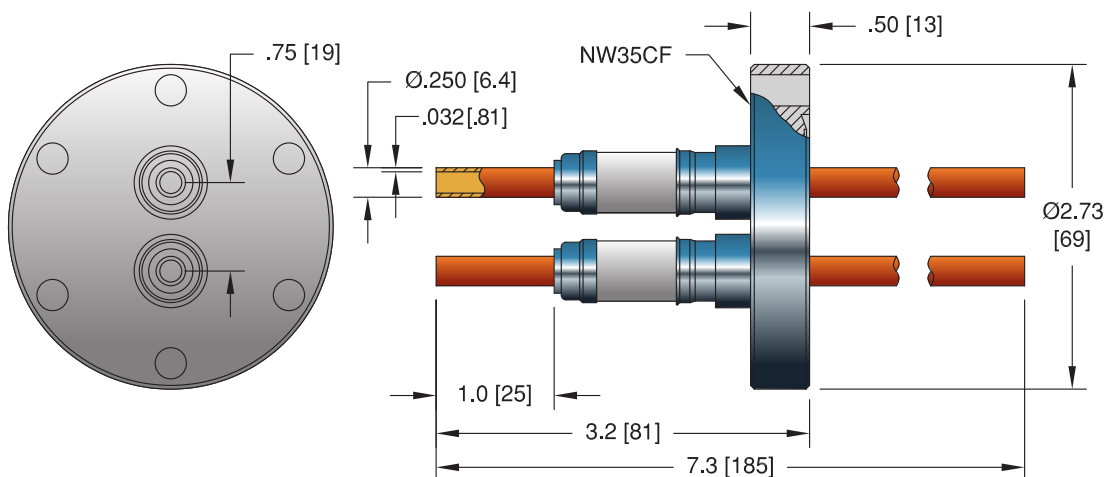


Abbildung 2.4: Die Stromdurchführung der Firma Hositrad [Hos] mit Bemaßung in Zoll und Millimetern (in eckigen Klammern).

Zur Befestigung des Heizers sind auf der Stromdurchführung zwei Kupferblöcke aufgelötet, auf die der Heizer aufgeklemmt werden kann. Die beiden halbzyylinderförmigen Teile sind so gearbeitet, dass sie sich nicht berühren und am oberen Ende nebeneinander gestellt einen Zylinder mit einem Außendurchmesser von 7 mm ergeben. Dieser entspricht dem Innendurchmesser des Graphitheizersfußes. Der Heizer wird daraufgesteckt und mit zwei Kupferklemmen seitlich festgeklemmt (siehe Abbildung 2.3). Zwischen Heizer und Kupferblock sowie Heizer und Klemme

⁷ Artikelnummer laut [Hos]: 16705-02-CF

wird jeweils ein Tantalblättchen eingebracht. Tantal hat, im Vergleich zu Kupfer ($384 \frac{\text{W}}{\text{m}\cdot\text{K}}$), eine geringe Wärmeleitfähigkeit von $54 \frac{\text{W}}{\text{m}\cdot\text{K}}$, mit $0,124 \frac{\Omega\cdot\text{mm}^2}{\text{m}}$ einen geringen spezifischen Widerstand und einen hohen Schmelzpunkt von 2996°C . Es eignet sich somit gut, den Heizer thermisch von den Kupferklemmen abzukoppeln, ohne einen großen elektrischen Widerstand zu erzeugen.

Um ein Aufheizen der Elektroden durch OHM'sche Verluste zu vermeiden, sollten die Elektroden einen möglichst geringen Widerstand haben. Da aber eine Aufheizung zum einen durch den Kontakt mit den Klemmen in denen der Heizer befestigt wird und zum anderen durch die genannten OHM'schen Verluste nicht gänzlich zu vermeiden ist, müssen die Elektroden gekühlt werden. Die Realisierung der Kühlung wird in Kapitel 2.2.3 behandelt.

Da der Heizer direkt auf den Elektroden befestigt wird, müssen diese ausreichend stabil sein um den Belastungen, vor allem während der Montage, standhalten zu können ohne zu verbiegen. Dies ist aufgrund des weichen Kupfers, aus denen die Elektroden gefertigt sind, nicht der Fall. Zur Stabilisierung wurde ein Einsatz für einen Stützring entwickelt, der die Elektroden in der gewünschten Position hält und stabilisiert (siehe Kapitel 2.2.4).

2.2.3 Die Elektrodenkühlung

Wie in Kapitel 2.2.2 beschrieben, müssen die Elektroden der Stromzuführung gekühlt werden. Eine entsprechende Kühlung wurde in [SR93] entworfen und im Wesentlichen übernommen. Die Kühlung der Elektroden erfolgt über den in jedem Labor mit Zu- und Abflüssen versehenen Hauskühlmittelkreislauf, als Kühlmittel wird also Wasser benutzt.

Die Kühlflüssigkeit soll bis in die Kupferblöcke geführt werden, auf die der Heizer

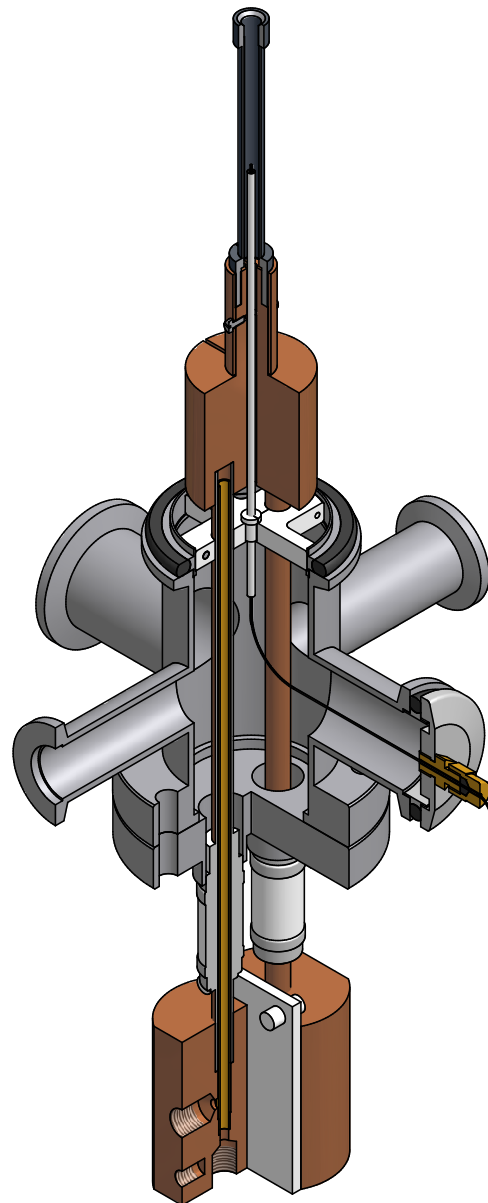


Abbildung 2.5: Eine Illustration der gesamten Elektrodenkühlung mitsamt Kreuzstück und unterem Thermoelement im Dreiviertelschnitt.

aufgeklemt wird. Eine der Elektroden als Zu- und die andere als Abfluss zu nutzen ist nicht möglich ohne beide leitend zu verbinden. Aus diesem Grund werden dünne Kupferröhrchen in die hohlen Elektroden der Stromdurchführung eingebracht, die als Abfluss dienen. Die Kühlflüssigkeit wird zwischen Elektrode und Abfluss bis an die Kupferblöcke gepumpt und fließt durch das innere Röhrchen wieder ab. Die Kühlung beider Elektroden erfolgt sequentiell, wobei der Durchfluss mit einem Durchflusswächter überwacht wird.

Im Idealfall haben Zu- und Abfluss die gleiche Querschnittsfläche. Dieses Ziel stieß durch die Verfügbarkeit der Kupferrohre an Grenzen. Der Innenradius des äußeren Röhrchens ist hierbei durch die an der Stromzufuhr verbauten Elektroden mit 2,3 mm vorgegeben, das innere Röhrchen wurde mit einem Außenradius von 2 mm und einem Innenradius von 1,5 mm gewählt, womit der Querschnitt des Zuflusses 4,1 mm und der des Abflusses 7,1 mm beträgt. Am unteren Ende der Elektroden ist jeweils ein Kupferstück angelötet. An diesem Kupferstück befindet sich sowohl eine Schraube zum Anschluss der Stromversorgung, als auch zwei G 1/8 28 Gewinde um Zu- und Ablauf der Elektrodenkühlung anzuschließen.

Zwischen den beiden Kupferblöcken wird eine Teflonplatte eingebracht, welche thermisch und elektrisch isolierend wirkt (siehe Kapitel 2.1.7) und bei den Montagearbeiten an den empfindlichen Elektroden ein festes Einspannen in einen Schraubstock erlaubt, ohne diese zusammenzudrücken. Es ist dringend anzuraten diese Möglichkeit bei jeder Montagearbeit zu nutzen, da sonst, wie in der Vergangenheit bereits geschehen, die Keramikstutzen der Stromdurchführung reißen können. Eine detaillierte Beschreibung des Kühlsystems findet sich in [Coj10], in Abbildung 2.5 ist die gesamte Kühlung dargestellt.

2.2.4 Der Elektrodenhalter

Wie in Kapitel 2.2.2 bereits angesprochen, sind die Kupferrohre der Stromdurchführung nicht besonders stabil. Heizer sowie Probe werden aber nur von diesen beiden Kupferrohren gehalten und eine mechanische Belastung beim Ein- und Ausbauen des Heizers und der Probe ist nicht zu vermeiden.

Bei den Vorgängern dieses PAC-Ofens führte dies zu verbogenen Elektroden und damit zu einer dezentralen Position des Heizers und folglich auch der Probe. Beim Richten der Elektroden werden die empfindlichen Keramikstutzen der Stromdurchführung mechanisch belastet.

Da eine zentrale Position von Probe und Heizer im PAC-Ofen erforderlich ist, um die Detektoren alle in den gleichen Abstand von der Probe bringen zu können, wird eine Vorrichtung zur Stabilisierung der Elektroden eingesetzt.

Der Elektrodenhalter sitzt exakt zwischen den Elektroden und muss daher zwingend isolierend sein. Desweiteren sollte das Material thermisch isolierend sein und

darf im Vakuum nicht ausdampfen. Da Macor diese Anforderungen einschließlich guter Bearbeitbarkeit erfüllt (siehe hierzu Kapitel 2.1.1), wurde der Elektrodenhalter aus diesem Material gefertigt. Dieser sitzt oberhalb des Kreuzstückes in einem Zentrierring, in den eine Nut eingedreht wurde, um ein Durchfallen in das Kreuzstück zu verhindern.

Der Elektrodenhalter muss zweiteilig sein, um die Montage zu ermöglichen, umfasst beide Elektroden fest und sitzt passgenau in dem für ihn ausgedrehten Zentrierring. Um die Bewegung der Gase beim Evakuieren nicht zu stark zu behindern, besitzt er vier seitliche Ausfräsungen. Mittig ist eine Bohrung angebracht in die ein seitlich eingeschlitzter Teflonstöpsel eingepasst wurde. Durch diesen wird das Aluminiumoxidröhrchen, welches das untere Thermoelement aufnimmt, gesteckt (Kapitel 2.2.6). Beim Verschrauben der beiden Elektrodenhalterteile wird das Aluminiumoxidröhrchen durch den Teflonstöpsel festgeklemmt.

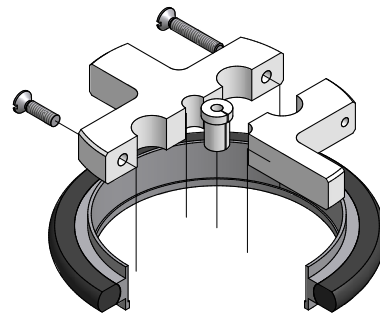


Abbildung 2.6: Eine Explosionszeichnung des Elektrodenheizers einschließlich Zentrierring mit ausgedrehter Nut im Dreiviertelschnitt.

2.2.5 Das Kreuzstück

Das sogenannte Kreuzstück ist das zentrale Verbindungsglied zwischen den einzelnen PAC-Ofenkomponenten. Auf der vertikalen Achse ermöglicht es die Befestigung der oberen Ofenummantelung sowie der vakuumdichten Elektrodendurchführung und stellt in der dazu rechtwinkligen Ebene die Anschlüsse für den Vakuumschlauch und die Zuführung eines Thermoelements bereit.

Das Kreuzstück besteht aus sechs Standardflanschen, die aneinandergeschweißt wurden. Jeweils gegenüber liegen sich zum einen zwei DN 16 ISO-KF-Flansche und zwei DN 25 ISO-KF-Flansche die in der Aufsicht ein Kreuz aus vier Flanschen bilden. Die beiden DN 25 ISO-KF-Flansche dienen zum Anschluss des Vakuumschlauches und zur Montage der Durchführung des unteren Thermoelements. Die beiden DN 16 ISO-KF-Flansche sind bisher nicht belegt und mit Blindflanschen verschlossen. Sie stellen optionale Zuführungen für zukünftige Experimente dar. Der untere DN 40 CF-Flansch ermöglicht das Anbringen der Stromdurchführung, die in Kapitel 2.2.2 beschrieben wird. Oben ist ein DN 40 ISO-KF-Flansch angebracht, der das vakuumdichte Aufsetzen der oberen Ofenummantelung, deren Aufbau in Kapitel 2.2.7 erläutert wird, erlaubt. Das Kreuzstück ist in Abbildung 2.5 mit einigen anderen Komponenten dargestellt.

2.2.6 Die Thermoelementzuführungen

Eine präzise Steuerung der Proben­temperatur im PAC-Ofen setzt neben einem genauen und schnell reagierenden Steuerkreis (siehe hierzu [Coj10]) eine genaue Kenntnis der Proben­temperatur voraus. Wegen der starken Temperaturgradienten im PAC-Ofen, die in Kapitel 3.1 genauer betrachtet werden, ist eine probennahe Positionierung des Thermoelements erforderlich. Aus diesem Grund ist der PAC-Ofen mit zwei Thermoelementzuführungen ausgestattet.

Beim Messen mit pulverartigen Proben, die in einer Quarzglasampulle abgefüllt sind, bietet es sich an, das Thermoelement unter und in Kontakt mit der Quarzglasampulle zu positionieren. Ein Einführen von oben ist nicht möglich, da die Quarzampullen, um ein Austreten der radioaktiven Probe zu verhindern, oben verschlossen sind und ein Kontakt von Probenpulver und Thermoelement zu vermeiden ist. Das entsprechende Thermoelement wird durch eine Durchführung, die am Kreuzstück montiert wird, in den PAC-Ofen eingebracht. Durch ein Aluminiumoxidröhrchen wird das Thermoelement parallel zu den Elektroden durch eine Aussparung in den Klemmen, die zur Befestigung des Heizers dienen, geführt und steht so frei im Heizer. Um ein Durchrutschen des Röhrchens nach unten zu Vermeiden wird dieses mit einem Teflonstöpsel in der Elektrodenhalterung eingeklemmt (Kapitel 2.2.4). Die von oben eingeführte Quarzglasampulle steht also direkt auf dem Thermoelement. Eine genaue Bestimmung der Proben­temperatur ist so trotz einer Differenz zwischen am Thermoelement und an der Probe herrschenden Temperatur möglich. Eine detaillierte Darstellung des Zusammenhanges zwischen beiden Temperaturen findet sich in Kapitel 3.

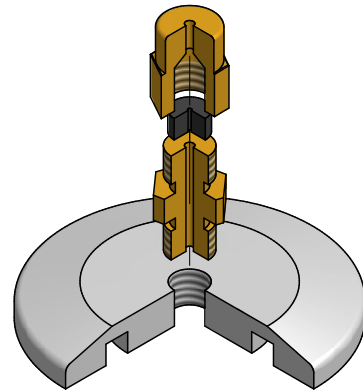


Abbildung 2.7: Eine Explosionszeichnung der Thermoelementdurchführung durch einen DN 25 ISO-KF-Flansch im Dreiviertelschnitt.

Soll mit einkristallinen Proben gemessen werden, ist die Thermoelementposition des unteren Thermoelements weniger gut geeignet, da die Probe nicht am unteren Ende des Probenhalters sitzt. Weiterhin sollte die Einführtiefe des Thermoelements variabel sein, weil die Probenposition in verschiedenen Probenhaltern unterschiedlich hoch ausfallen kann. Auch das ist durch die feste Montage des unteren Thermoelements nicht möglich. Die Zuführung des Thermoelements muss also möglichst flexibel sein und auf die obere Ofenummantelung aufgesetzt werden.

Da zum einen eine optische Kontrolle der Thermoelementposition wünschenswert ist, zum anderen eventuelle Pyrometermessungen (siehe hierzu Kapitel 3.3) einen

durchsichtigen Verschluss des PAC-Ofens erfordern, musste eine Durchföhrung durch transparentes Material realisiert werden. In bisherigen Aufbauten wurde das Thermoelement durch eine Glasplatte mit einem kleinen Loch geföhrt. Dieses wurde mit Vakuumdichtmasse verschlossen. Die Nachteile dieser Kontruktion liegen vor allem darin, dass sich das Loch in der Dichtmasse bei Beröhrung des Thermoelements weitet und dass die Dichtmasse bei höheren Temperaturen weicher wird und sich so in das im PAC-Ofen herrschende Vakuum hineinziehen kann. Ersterem Problem kann man mit großen Mengen an Vakuumfett entgegenwirken, jedoch ist bei jeder Messung eine Reinigung und ein erneutes Einfetten der Durchföhrung nötig.

Bei der Fertigung der Durchföhrung wird kein herkömmliches Fensterglas, sondern Quarzglas verwendet. Die Vorteile von Quarzglas liegen bei dieser Anwendung vor allem bei einer deutlich höheren Temperaturwechselbeständigkeit im Vergleich zu Fensterglas (siehe Kapitel 2.1.2).

In Kapitel 3.3 wird der Zusammenhang zwischen der PAC-Ofen- und Glastemperatur dargestellt, die dort auftretenden Temperaturen rechtfertigen den Einsatz von Quarzglas. Im Verlauf der Testmessungen ist eine fälschlicherweise für Quarzglas gehaltene Scheibe geplatzt.

Die Durchföhrungen durch die Glasscheibe (siehe Abbildung 2.8) und durch den DN 25 ISO-KF-Blindflansch (siehe Abbildung 2.7) sind technisch identisch realisiert. Eine Quetschverschraubung sorgt dafür, dass das Thermoelement vakuumdicht in den PAC-Ofen eingeföhrt werden kann. Hierzu werden O-Ringe mit einem Innendurchmesser von 0,5 mm benötigt. Da keine derartigen Dimensionen im Handel verfügbar sind, wird ein Stück aus einem 5 mm starken O-Ring herausgeschnitten. Der entstehende Gummizylinder wird mit einer 0,5 mm dicken Injektionsnadel mittig durchstochen, das Thermoelement wird durch die entstehende Öföffnung gesteckt. Die Durchföhrung durch den Flansch wird mit einem Gewinde in den Flansch eingeschraubt, die Durchföhrung durch die Glasplatte mit Zweikomponenten-Epoxydharzkleber⁸ in eine Bohrung in der Glasplatte eingeklebt. Alle Gewinde werden mit Teflonband abgedichtet.

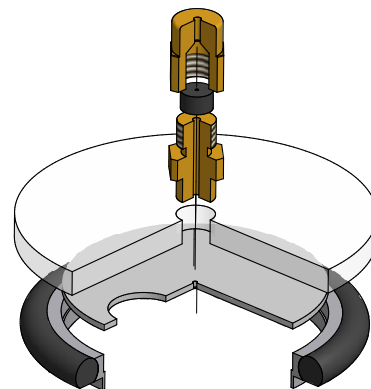


Abbildung 2.8: Eine Explosionszeichnung der Thermoelementdurchföhrung durch eine 4 mm starke Quarzglasscheibe mit Hitzeschild im Dreiviertelschnitt.

⁸ Uhu Endfest 300 plus

2.2.7 Die obere Ofenummantelung

Die obere Ofenummantelung wurde in [Mül90] entwickelt und hat sich seitdem bewährt, so dass keinerlei Verbesserungen vonnöten waren. Sie umschließt den Heizer sowie dessen Anschlussklemmen und wird mit einem DN 40 ISO-KF-Flansch auf das Kreuzstück aufgeschlanscht. Die obere Ofenummantelung umschließt die genannten Bauteile einschließlich Probe vakuumdicht und sorgt durch die integrierte Kühlung dafür, dass die Temperatur außerhalb der Ofenummantelung nicht zu stark ansteigt.

Ein Temperaturanstieg ist vor allem wegen einer geringen Temperaturwechselbeständigkeit vieler Szintillatorkristalle zu vermeiden, ein Anstieg an den Sekundärelektronenvervielfacherkathoden würde außerdem elektronisches Rauschen begünstigen.

Die Geometrie und die Materialwahl bei der Konstruktion der oberen Ofenummantelung werden maßgeblich von der benutzten Messmethode beeinflusst. Um einen möglichst hohen Anteil der emittierten γ -Quanten zu detektieren haben die Szintillatorkristalle die Form von Kegelstümpfen, um so möglichst nah an den PAC-Ofen beziehungsweise die darin enthaltene Probe herangefahren werden zu können. Damit kann ein größtmöglicher Raumwinkel abgedeckt werden. Da ein großer Teil des Untergrundes zufällige Koinzidenzen sind, deren Anzahl proportional zum Quadrat der Aktivität der Probe ist, lässt sich durch ungünstige Detektoranordnung verlorene Zählrate nicht durch eine höhere Aktivität der Probe kompensieren (siehe Gleichung (5.19)).

Die Ausdehnung der oberen Ofenummantelung muss im Bereich der Probe also so

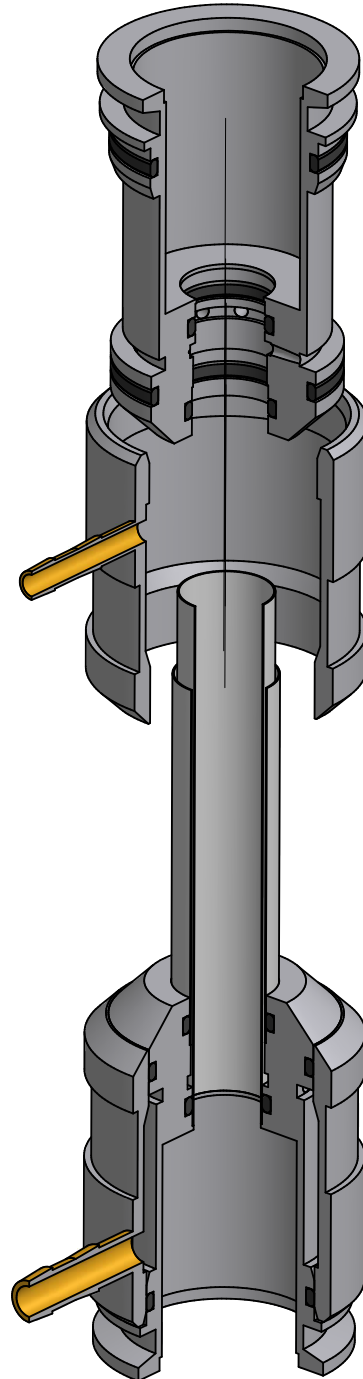


Abbildung 2.9: Eine Explosionszeichnung der oberen Ofenummantelung im Dreiviertelschnitt.

klein wie möglich sein, andererseits muss im PAC-Ofen noch ausreichend Platz für den Heizer, sowie für die Platzierung von eventuellen Hitzeschilden für Messungen ab 1200 °C sein. Diese werden in Kapitel 3.3 beschrieben. Zusätzlich muss die obere Ofenummantelung um die Probe herum sehr dünnwandig und aus einem Material von niedriger Ordnungszahl und Dichte gefertigt sein, um die γ -Absorption gering zu halten.

Die von [Mül90] entwickelte Ofenummantelung besteht im Bereich der Probe aus zwei konzentrischen Aluminiumröhrchen mit einer Wandstärke von 0,3 mm. Durch die für ein Metall geringe Dichte und Ordnungszahl eignet sich Aluminium besser als andere Metalle für diesen Teil der Ofenummantelung. Zudem besitzt Aluminium eine hohe Reflektivität (siehe Kapitel 2.1.4), was die Aufheizung der Ummantelung sowie den Energieverlust durch Strahlung im Inneren gering hält. Die beiden Röhrchen werden oben und unten von einer Edelstahlhalterung aufgenommen. Diese Halterung ist, um eine einfache Reinigung zu gewährleisten, aus zwei Teilen gefertigt.

Durch den zwischen den beiden Röhrchen entstehenden Zwischenraum wird eine Mischung aus destilliertem Wasser und herkömmlichem Frostschutzmittel als Kühlmittel geleitet. Der geschlossene Primärkühlkreislauf kann nicht mit Leitungswasser betrieben werden, da sonst elektrolytische Effekte eine Zersetzung der Aluminiumröhrchen binnen weniger Wochen bewirken. Das Kühlmittel in diesem Kreislauf wird über einen handelsüblichen Laborkühler durch Wasser aus dem Hauskühlmittelkreislauf gekühlt. Details hierzu finden sich in [Coj10].

Die Montage der oberen Ofenummantelung muss wegen der sehr dünnwandigen Aluminiumröhrchen mit äußerster Vorsicht geschehen. Es muss vor allem darauf geachtet werden, dass keine nicht axialen Kräfte entstehen können. Da die O-Ringe sehr stramm sitzen, ist großer Druck notwendig, um die Aluminiumröhrchen in den oberen und unteren Teil der Kühlung einzubringen. Sowohl die Aluminiumröhrchen, als auch die O-Ringe müssen vor dem Einbau großzügig mit Silikonöl eingerieben werden. Die Montage erfolgt an der Drehbank, wo ausschließlich axialer Druck auf die Röhrchen ausgeübt werden kann. Hierzu werden zunächst innerer und äußerer Teil der Zu- und Ableitung zusammengefügt. Der Zulauf wird dann in die Drehbank eingespannt und erst das äußere, dann das innere Aluminiumröhrchen eingepresst. Dazu wird ein Bohrfutter mit vollständig zurück gefahrenen Spannbacken in den Reitstock eingespannt. Nun wird das Aluminiumröhrchen vorsichtig mit dem Vorschub des Reitstockes eingepresst. Dem Aluminiumröhrchen ist ein Plastikstück zu unterlegen, um Beschädigung zu vermeiden. Zuletzt wird der Ablauf in gleicher Art aufgespresst.

2.2.8 Der Ofenfuß

Der gesamte PAC-Ofen, also alle bisher diskutierten Bauteile, sind auf dem sogenannten Ofenfuß montiert, der nach dem Vorbild aus [SR93] gefertigt wurde. Dieser besteht aus drei Teilen: einem Aluminiumrohr und zwei Stirnplatten.

Das Aluminiumrohr

Um den PAC-Ofen in der richtigen Höhe zu halten, wird ein 100 mm Aluminiumrohr mit zwei Ausbrüchen verwendet. Der Vorteil von Rohren gegenüber anderen Konstruktionen besteht vor allem in einer hohen Beständigkeit gegen Torsion und Verbiegung. Gleichzeitig schützt das Rohr die sehr empfindlichen Elektroden vor Stößen und den Experimentator vor eventuellem Berühren der Hochstrom führenden Elektroden.

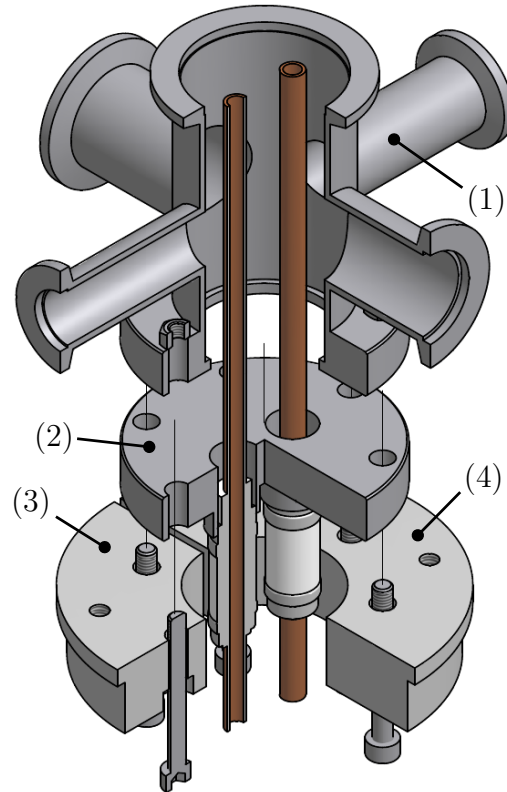


Abbildung 2.10: Eine Explosionszeichnung des Kreuzstückes (1), der Stromdurchführung (2) und der oberen Stirnplatte des Ofenfußes (3) & (4) im Dreiviertelschnitt.

Die obere Stirnplatte

Die obere Stirnplatte verbindet den PAC-Ofen mit dem Ofenfuß. Sie ist, um die Montage trotz der aufgelöteten Elektrodenanschlüssen zu ermöglichen, zweigeteilt.

Beim Verschrauben des DN 40 CF-Flansch zwischen Kreuzstück und Stromdurchführung werden die beiden Teile der oberen Stirnplatte mit den beiden vorher genannten Teilen verschraubt (siehe Abbildung 2.10). Hierbei sollte die Stirnplatte bereits in das Aluminiumrohr eingesetzt werden bevor die Schrauben festgezogen werden, denn die beiden Teile können so gegeneinander verrutschen, dass die Stirnplatte nicht mehr in das Aluminiumrohr hineinpasst. Nun kann der ganze PAC-Ofen mit zwei Klemmen befestigt werden.

Die untere Stirnplatte

Die Befestigung des gesamten PAC-Ofens an einem Kreuztisch, einem kleinen Tisch, der millimetergenaues Positionieren des PAC-Ofens erlaubt, wird über die

untere Stirnplatte realisiert. Die untere Seite ist so gearbeitet, dass sie genau auf den Kreuztisch passt und ein Verkippen schon ohne die Befestigungsschraube, für die eine Bohrung vorhanden ist, unmöglich ist. Die untere Stirnplatte wird wie auch die obere in das Aluminiumrohr eingelassen und dort festgeklemmt. Da in der Vergangenheit bei dem bereits existierenden PAC-Ofen aufgrund mechanischer Einwirkungen an den Elektroden die Keramikstutzen der Stromdurchführung gerissen sind, wurden die Klemmen nun als Aluminiumwinkel konstruiert, an denen Zugentlastungen für die stromzuführenden Kabel angebracht sind. Zunächst gab es eine Zugentlastung für beide Kabel. Die Montage beider Kabel daran ist aufgrund des hohen Kabelquerschnitts und der damit verbundenen Steifheit der Kabel jedoch nicht ohne ein großes Maß an mechanischer Belastung der Elektroden möglich. Es wurde eine weitere Zugentlastung konstruiert, auf jeder Seite des Ofenfußes kann nun ein Kabel befestigt werden.

2.2.9 Die Probenhalter

Die Notwendigkeit einer exakten Probenplatzierung verlangt im Falle des PAC-Ofens nach mehreren Lösungen für verschiedene Anwendungen. Zum einen werden pulverartige Proben, sowie Proben, die während der Messung geschmolzen werden, zum anderen einkristalline Proben in Form von maximal $5 \cdot 5 \text{ mm}^2$ großen Plättchen, vermessen. Für beide Probentypen werden Messungen bei tiefen und hohen Temperaturen durchgeführt. Kein Probenhalter darf über einen deutlich höheren Ausdehnungskoeffizienten als Graphit verfügen, da der Probenhalter ansonsten den Heizer sprengen würde.

Quarzglasampullen

Quarzglasampullen werden bevorzugt dann verwendet, wenn die Probe entweder pulverförmig ist, oder, wie in Kapitel 3 beschrieben, die Probe im PAC-Ofen geschmolzen werden soll. Der im Vergleich zu Graphit sehr niedrige lineare thermische Ausdehnungskoeffizient, der hohe spezifische Widerstand sowie der Einsatzbereich von bis zu 980°C machen Quarzglas zu einem geeigneten Material, um Probenhalter zu fertigen. Da das Auftreten von Spannungen im Probenhalter wegen nicht vorhandener mechanischer Belastung kein Problem darstellt, sollten Einsatztemperaturen bis kurz unter dem Erweichungspunkt, also bis etwa 1500°C möglich sein.

Bei der Fertigung wird ein handelsübliches Quarzglasröhrchen mit 5 mm Außendurchmesser und 3 mm Innendurchmesser mit einem Handbrenner für Wasserstoff-Sauerstoffgemische an einem Ende zugeschmolzen. Nach dem Einfüllen der Probe wird das andere Ende ebenfalls verschlossen. Hierbei ist darauf zu achten, dass der Durchmesser an keiner Stelle über 5 mm liegt, damit der Probenhalter in den

Heizer passt und nicht stecken bleibt. Bei Verwendung eines geringfügig zu dicken Quarzröhrchens kann der Heizer beschädigt werden. Die Quarzglasampulle steht auf dem unteren Thermoelement.

Macor-Probenhalter

Für Temperaturen bis etwa 800 °C vereint das Material Macor alle wünschenswerten Eigenschaften um einen Probenhalter zu fertigen. Der thermische Ausdehnungskoeffizient ist nicht deutlich größer als der von Graphit und es ist ein guter Isolator.



Abbildung 2.11: Die drei genutzten Probenhaltervarianten. Oben links, eine zuge-schmolzene Quarzglasampulle für pulverartige, oder zu schmelzende Proben, oben rechts ein Macor-Probenhalter und unten ein Quarzglas-Probenhalter. Die beiden letzteren werden für einkristalline Proben genutzt.

Der im Verlauf von [Nie09] entwickelte und in dieser Arbeit vor allem im Hinblick auf die Fertigung leicht optimierte Probenhalter für Messungen bis 800 °C, besteht aus einem Macor-Röhrchen mit Griff, durch die das Thermoelement von oben eingeführt werden kann. Am unteren Ende ist eine seitliche Ausfräsung, die das Röhrchen nahezu halbiert. In dieser Ausfräsung wird sowohl die Probe mit einer kleinen Drahtklammer festgeklemmt, als auch die Thermoelementspitze positioniert. Das Röhrchen ist genau in die Graphitheizer eingepasst, so dass ein Verkippen ausgeschlossen und eine zentrale Position im Heizer gewährleistet ist. Zusätzlich markiert eine Fase am Griff die Seite auf der die Probe sitzt und ermöglicht so eine genaue Orientierung der Probe. Der Probenhalter liegt mit dem Griff auf der oberen Kante des Heizers auf.

Quarzglas-Probenhalter

Sollen Messungen von kristallinen Proben im Temperaturbereich über 800 °C durchgeführt werden, werden die Probenhalter aus Quarzglas gefertigt, wobei für die maximale Einsatztemperatur die gleichen Überlegungen, wie sie in Kapitel 2.2.9 angestellt wurden, gelten.

Als Ausgangsmaterial dient wieder ein handelsübliches Quarzglasröhrchen mit 5 mm Außendurchmesser und 3 mm Innendurchmesser. An dessen Ende wird mit

einem Diamantsägeblatt eine etwa 1,5 cm lange Aussparung von der Tiefe des Radius herausgesägt. In das Röhrchen wird nun ein um nahezu 180° gebogener Draht eingebracht. In Höhe der Aussparung wird nun die Probe zwischen Draht und Glasröhrchen eingeklemmt. Da der Probenhalter nach unten offen ist, steht er auf den Heizerklemmen.

3. Temperaturgenauigkeit des Hochtemperaturmessofens

Bei der Konstruktion des PAC-Ofens wird großer Aufwand betrieben die Temperatur des Heizers möglichst konstant und die restlichen Komponenten kühl zu halten. Hierzu gehört der Einsatz von Kühlsystemen sowie die thermische Abkoppelung des Heizers von der Stromzuführung. Um Temperaturgradienten im Bereich der Probe klein zu halten, wird ein Graphitheizer anstelle einer eng gewickelten Heizspirale verwendet. Um die Temperaturgenauigkeit, das Temperaturverhalten und den Temperaturgradienten an der Probe zu bestimmen, werden verschiedene Messungen durchgeführt.

3.1 Temperaturverteilung entlang des Heizers

Die im PAC-Ofen zu untersuchenden Proben haben eine Breite von bis zu 5 mm. Grundsätzlich ist ein Temperaturgradient im Bereich der Probe während der Messung nicht erwünscht. Die Temperatur entlang der Probe soll so gleichmäßig wie möglich sein. Es ist demnach von Interesse, die Temperaturverteilung entlang des Heizers zu kennen, um die Probe im Bereich geringster Temperaturvariation und damit so nah am heißesten Punkt wie möglich zu positionieren. Um diesen zu bestimmen wird die Temperaturverteilung entlang der Längsachse des gesamten Heizers vermessen.

Die Temperatur des PAC-Ofens wird bei diesen Messungen mit dem unteren Thermoelement auf eine konstante Temperatur geregelt, während ein zweites Thermoelement durch die obere Thermoelementdurchführung eingebracht wird und die Temperatur im PAC-Ofen so in verschiedenen Höhen h gemessen werden kann. Die Höhe h bezeichnet den Abstand des Thermoelements vom Heizerfuß (siehe Abbildung 3.2). Bei diesen Messungen ist es, da das von oben eingeführte Thermoelement leicht verbogen ist, nicht zu vermeiden, dass das Thermoelement die innere Wand des Heizers berührt. Exemplarisch wird die Messung bei 700 °C deswegen zusätzlich mit einem in den Heizer gestellten Quarzglasröhrchen und mit einem auf das Thermoelement gesteckten Macor-Gleiter, der das Thermoelement nicht in Kontakt mit der Heizerwand kommen lässt, wiederholt. Die auf diese drei

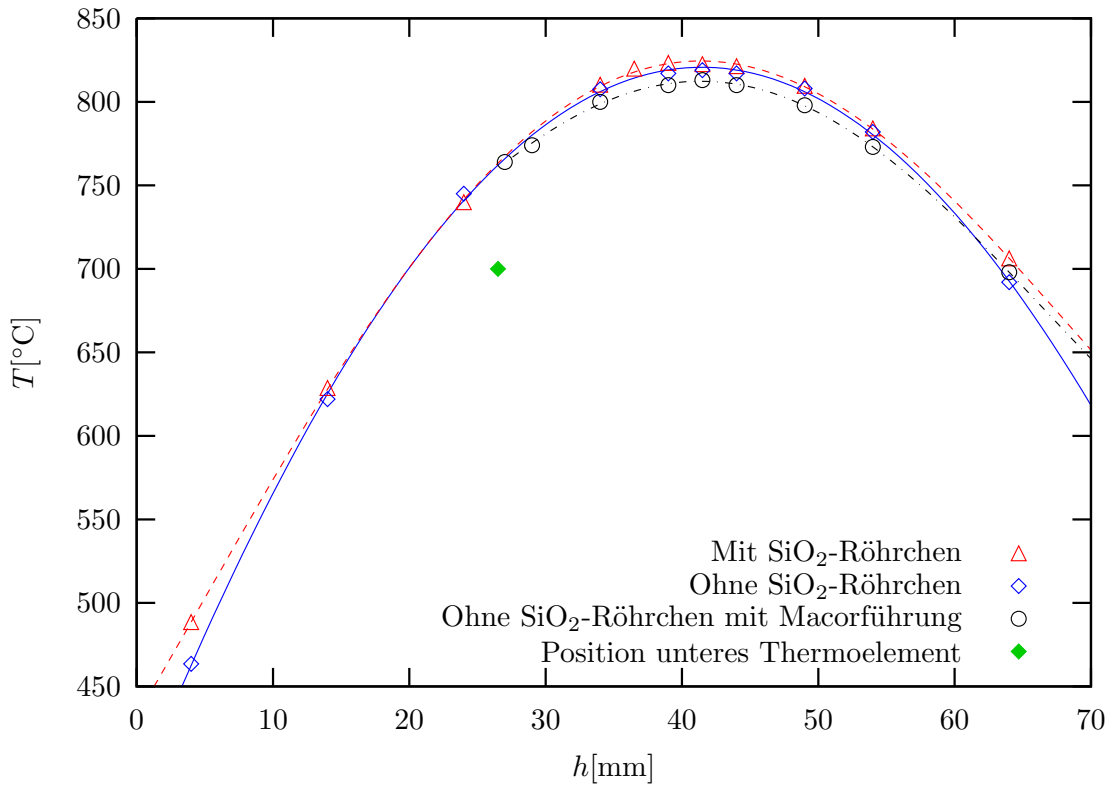


Abbildung 3.1: Das Temperaturprofil des Heizers bei Regelung auf 700 °C am unteren Thermoelement. Die Fehlerbalken sind nicht eingezeichnet, da sie in der gleichen Größenordnung wie die Symbole für die Punkte sind. Die gezeichneten Kurven dienen als Blickführung.

Arten ermittelten Temperaturprofile zeigen kaum Unterschiede im Ergebnis, somit ist die Messung des Temperaturprofils auch mit Wandkontakt des Thermoelements gerechtfertigt.

Der Unterschied in der Temperatur zwischen unterem und oberem Thermoelement, auch bei gleicher Höhe im Heizer, lässt sich durch die thermische Kopplung des unteren Thermoelements an die Elektrodenkühlung und das Kreuzstück erklären. Beide Teile bleiben während der Messung kalt und kühlen so das untere Thermoelement, während sich die obere Durchführung aufheizt und weniger Wärme abgeführt werden kann. Bei niedrigen Temperaturen ist dieser Unterschied noch größer, da Konvektion als Wärmetransportmechanismus fehlt und Wärmestrahlung erst bei hohen Temperaturen effektiv funktioniert.

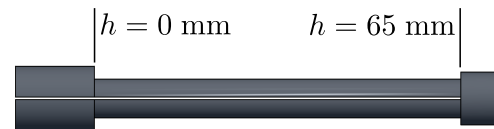


Abbildung 3.2: Eine Illustration des Graphitheizers

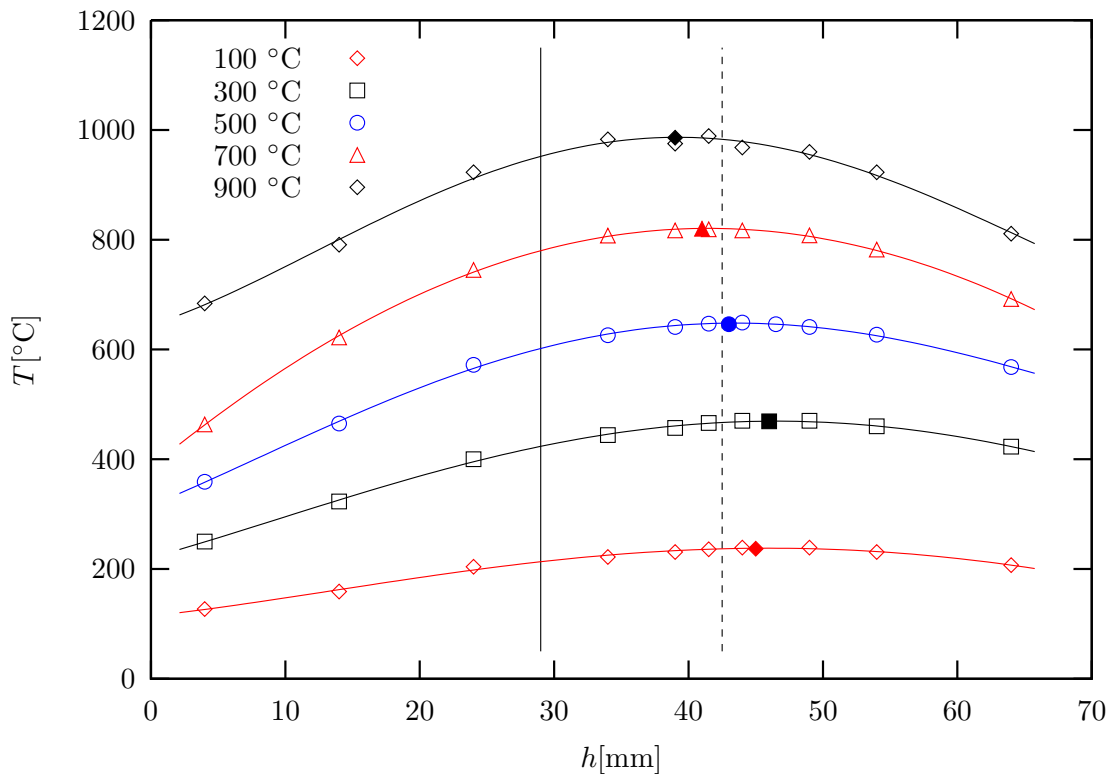


Abbildung 3.3: Das Temperaturprofil des Heizers bei Regelung auf 100 °C bis 900 °C am unteren Thermoelement. Die heißesten Punkte sind durch die ausgefüllten Symbole gekennzeichnet. Die Fehlerbalken sind nicht eingezeichnet, da sie in der gleichen Größenordnung wie die Symbole für die Punkte sind. Die Kurven dienen als Blickführung. Die durchgezogene vertikale Linie markiert die Position der Probe in einer Ampulle, die gestrichelte Linie im Macor-Probenhalter.

Finden die Messungen unter Stickstoffatmosphäre statt, kann der Wärmetransport bei niedrigen Temperaturen verbessert werden. Dies wurde bei einem der vorher konstruierten PAC-Öfen, im Rahmen dieser Diplomarbeit jedoch nicht umgesetzt.

Die Messungen der Temperaturverteilung, die zuvor bei 700 °C am unteren Thermoelement durchgeführt wurden, werden zwischen 100 und 900 °C in 200 °C-Schritten wiederholt und sind in Abbildung 3.3 dargestellt.

Mit steigender Temperatur im PAC-Ofen werden die Temperaturgradienten im Heizer steiler. Durch Interpolation der Messdaten wird der heißeste Punkt im Heizer bei allen angesteuerten Temperaturen bestimmt, dessen Position von der Temperatur im PAC-Ofen abhängt. Die Positionierung der Probe relativ zum heißesten Punkt kann in einem Probenhalter fester Länge somit immer nur ein Kompromiss sein. Sowohl die Probenposition im Macor-Probenhalter als auch die in einer Quarzglasampulle sind in Abbildung 3.3 eingezeichnet.

Da die Probe in einer abgeschlossenen Ampulle ganz unten sitzt, wird der Zusammenhang zwischen dem durch das untere Thermoelement angesteuerter und tatsächlich in der Ampulle erreichter Temperatur für diesen Fall von 50°C bis 1100°C vermessen. Hierzu wird ein unten zugeschmolzenes und oben offenes Quarzglasröhrchen so in den Heizer gestellt, dass es auf dem unteren Thermoelement steht. Das obere Thermoelement wird in Kontakt mit dem unteren zugeschmolzenen Ende des Quarzglasröhrchens gebracht. Der sich aus einer Funktionsanpassung ergebende Zusammenhang zwischen angesteuerter und tatsächlicher Temperatur lautet

$$T_{\text{Ampulle}}/^\circ\text{C} = 0.884(6) \cdot T_{\text{Ofen}}/^\circ\text{C} + 129(4) \quad (3.1)$$

für $T_{\text{Ofen}} \geq 200^\circ\text{C}$ und

$$T_{\text{Ampulle}}/^\circ\text{C} = -3,6(8) \cdot 10^{-3} \cdot T_{\text{Ofen}}^2/^\circ\text{C}^2 + 2,3(2) \cdot T_{\text{Ofen}}/^\circ\text{C} - 12(9) \quad (3.2)$$

für $T_{\text{Ofen}} \leq 200^\circ\text{C}$ und ist in Abbildung 3.4 dargestellt. In Kapitel 6.2 wird der gefundene Zusammenhang unter realen Versuchsbedingungen genauer untersucht.

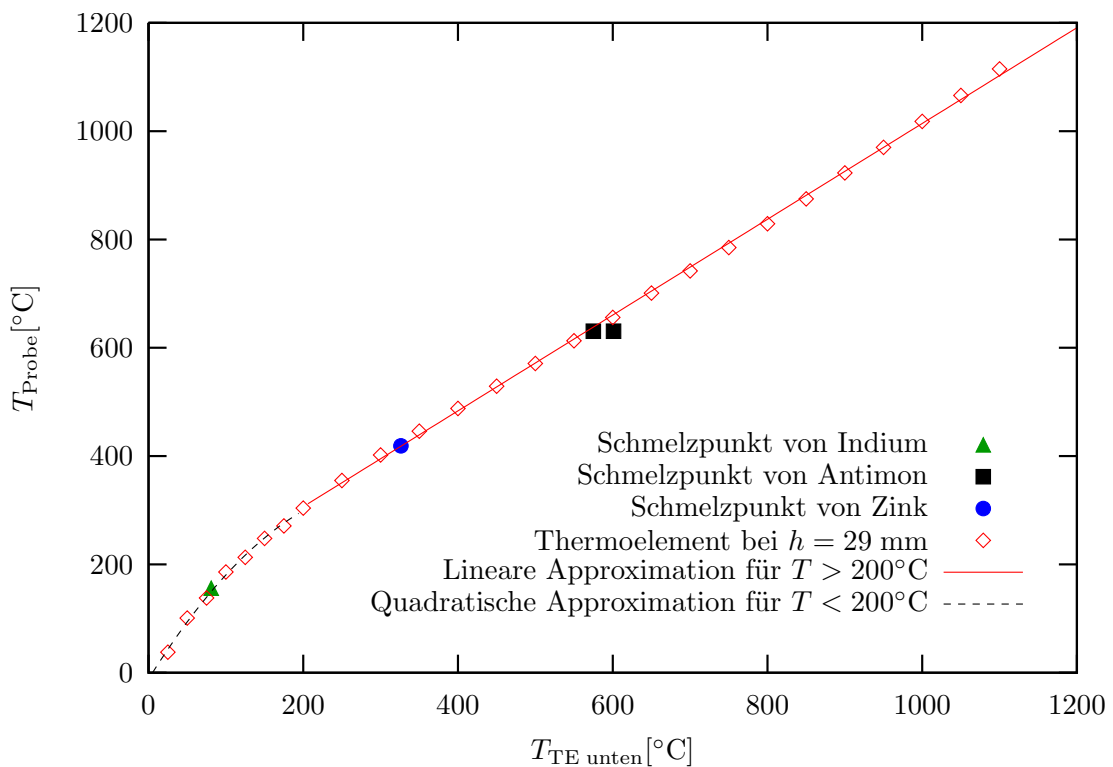


Abbildung 3.4: Der Zusammenhang zwischen angesteuerter und tatsächlicher Temperatur am Boden eines Quarzglasröhrchens. Die Ergebnisse der in Kapitel 6.2 beschriebenen Schmelzpunktmessungen sind ebenfalls eingezeichnet. Die Fehlerbalken liegen in der Größenordnung der Punktsymbole und sind deswegen nicht eingezeichnet

3.2 Temperaturanisotropie des Heizers

Wie schon in Kapitel 2.2.1 erwähnt, gibt es Hinweise auf eine Anisotropie der Temperaturverteilung im Heizer. Bei einer Messung wurde ein Macor-Probenhalter, dargestellt in Abbildung 3.5, nur auf einer Seite beschädigt, was auf eine einseitige, dauerhafte Erhitzung auf über 800°C schließen lässt (siehe hierzu auch Kapitel 2.1.1 und 2.2.9), wobei die Messung bei 800°C stattfinden sollte. Da der Heizer bei der Entnahme des Probenhalters wegen dessen Verformung zerstört werden musste, können über die Ursache nur Vermutungen angestellt werden. Denkbar wäre zum einen ein nicht axiales Ausdrehen des Heizers, was durch unterschiedliche Wandstärken, zu unterschiedlichen Widerständen und damit zu unterschiedlichen Temperaturen geführt haben könnte. Zum anderen könnte die sequentielle Kühlung der Elektroden nicht ausreichen und durch ungleichmäßige Kühlung beider Heizerklemmenseiten eine unterschiedliche Erwärmung des Heizers erlauben. Auch Materialinhomogenitäten könnten die Ursache der Beschädigung des Probenhalters sein.



Abbildung 3.5: *Der anisotrop verbrannte Macor-Probenhalter, der Anlass zur Untersuchung der Isotropie der Temperaturverteilung gab.*



Abbildung 3.6: *Die Temperaturasymmetrie des Heizers. Die hellsten und damit heißesten Regionen sind in Falschfarben dargestellt, absteigende Helligkeit der blauen Farbe bedeutet weniger helles Leuchten des Heizers. Beide Fotos zeigen den selben Heizer, der auf dem zweiten Bild um 180° gedreht montiert ist. Auf beiden Bildern ist zum einen zu erkennen, dass eine Seite des Heizers heißer wird und dass der heiße Bereich in der Mitte des Heizers breiter ist. Zum anderen ist der im optischen Bereich leuchtende Teil auf einer Seite kürzer. Beide Fotos sind mit ISO 200 aufgenommen.*

Um Materialversagen auszuschließen muss eine Temperaturasymmetrie zwischen den beiden Seiten des Heizers nachgewiesen werden. Hierzu ist anstelle der oberen Ofenummantelung ein Quarzglasrohr montiert, welches den Betrieb des Heizers im Vakuum und gleichzeitig das Fotografieren mit einer Digitalkamera erlaubt. Mithilfe eines Bildbearbeitungsprogrammes¹ werden die hellsten und damit auch wärmsten Stellen in Falschfarben gefärbt und diese qualitativ bestimmt. Je heller das Blau, desto heller und demnach wärmer ist der gekennzeichnete Bereich des Heizers. In Abbildung 3.6 ist zu erkennen, dass sowohl der markierte blaue Bereich, als auch der dunkelrot glühende Bereich auf einer Seite ausgedehnter ist. Zudem erreicht die gleiche Seite eine höhere Spitztemperatur. Die Anisotropie der Temperaturverteilung ist offensichtlich, Materialversagen ist somit unwahrscheinlich.

3.2.1 Einfluss der Elektrodenkühlung

Um den Einfluss der sequentiellen Kühlung zu überprüfen wird der PAC-Ofen ohne die obere Ofenummantelung und ohne das zuvor montierte Quarzglasrohr betrieben und Fotos mit einer Infrarotkamera² gemacht. Der Messbereich bei diesen Messungen ist so gelegt, dass die beiden Kupferblöcke, auf denen der Heizer montiert ist, gut zu erkennen sind.

Auf den Bildern der Wärmebildkamera, siehe Abbildung 3.7, ist gut zu erkennen, dass sich die beiden Kupferblöcke gleichmäßig aufwärmen. Die Temperaturdifferenzen zwischen beiden übersteigen bei den durchgeführten Messungen zu keiner Zeit 2°C. Beide Kupferteile werden nicht wärmer als 30°C, wobei der Heizer Temperaturen bis 440°C erreicht. Bei höheren Temperaturen ist eine Zerstörung des Heizers durch Oxidation nicht auszuschließen. Solche Messungen werden also nicht durchgeführt.

Zur Temperaturbestimmung des Heizers ist die Infrarotkamera ungeeignet. Die Aufnahme von Bildern mit evakuiertem Quarzglasrohr anstelle der oberen Ofenummantelung über dem Heizer ist nicht möglich, da Quarzglas im Spektralbereich zwischen 7,5 µm und 17 µm, in dem die Kamera misst, keine Transmission zulässt (siehe 2.1). Die Infrarotkamera kann ausschließlich für Temperaturmessungen ohne Vakuum genutzt werden. In diesem Fall tritt Konvektion als Wärmetransportmechanismus auf, was die Ergebnisse unverwertbar macht.

Um die durch die Infrarotbilder nahegelegte Unabhängigkeit der Temperaturasymmetrie von der sequentiellen Kühlung der Elektroden zu bestätigen, wird der Heizer, bei dem die Temperaturansisotropie festgestellt wurde, 180° um seine Längsachse gedreht und wieder montiert. Auf dem zweiten Foto in Abbildung

¹ GNU Image Manipulation Program, Version 2.6.8

² InfraTec VarioCAM hr inspect

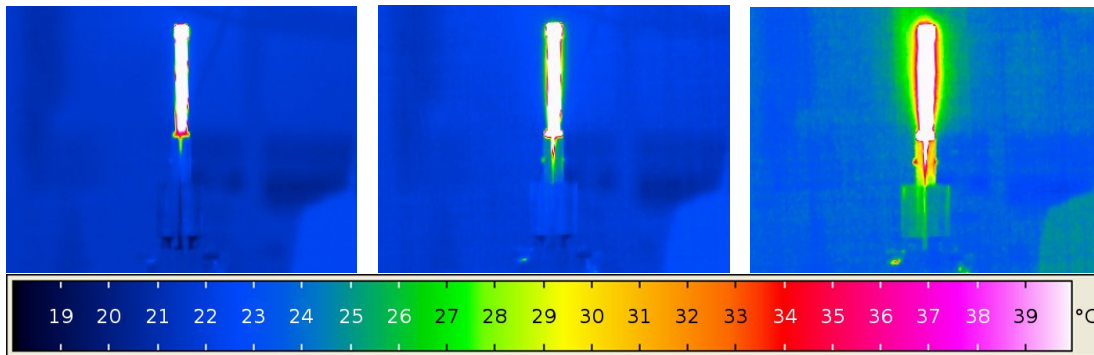


Abbildung 3.7: Infrarotbilder der Heizerklemmen. Die Kupferblöcke auf beiden Seiten erwärmen sich relativ gleichmäßig, wobei Temperaturen von $30\text{ }^{\circ}\text{C}$ nicht überschritten werden und die Temperaturdifferenz zwischen rechtem und linkem Kupferteil immer kleiner als $2\text{ }^{\circ}\text{C}$ ist. In den gezeigten Aufnahmen liegt der heißeste Punkt des Heizers von links nach rechts bei $115\text{ }^{\circ}\text{C}$, $259\text{ }^{\circ}\text{C}$ und $440\text{ }^{\circ}\text{C}$. Der Messbereich bei diesen Messungen ist so gelegt, dass die beiden Kupferblöcke, auf denen der Heizer montiert ist gut zu erkennen sind.

3.6 kann man erkennen, dass kühlere und wärmere Seite danach vertauscht sind. Die Position der heißeren Seite ist also unabhängig vom Kontakt mit den gekühlten Heizerklemmen, ein Einfluss der sequentiellen Elektrodenkühlung auf die Temperaturasymmetrie des Heizers ist also ausgeschlossen.

3.2.2 Einfluss der Fertigungstoleranzen

Bei einem anderen, in Abbildung 3.8 dargestellten, zerbrochenen Heizer zeigen sich durch das Bohren verursachte Wellenstrukturen. Die Dicke der Wände wird mit einem Mikroskop und einem Objektmikrometer vermessen. Dabei zeigte sich, dass die Wand des Heizers, die im Betrieb heißer war, mit $0,61(2)\text{ mm}$ dünner als in den Konstruktionsplänen ist. Die andere Heizerwand ist mit $0,69(2)\text{ mm}$ zwar auch dünner als in den Plänen angegeben, jedoch deutlich dicker als die gegenüberliegende Wand. Der Widerstand der dünneren Wand ist damit $10,7\%$ höher und erzeugt so höhere Temperaturen.

Da weder Materialinhomogenitäten im Probenhalter, noch Probleme mit der Kühlung als Ursache für die Temperaturasymmetrie in Frage kommen, sind Fertigungstoleranzen als Ursprung anzunehmen. Es wäre zwar denkbar, dass der Heizer schon vor der Messung, entweder durch mechanische Belastung beim Montieren, oder durch Materialfehler beschädigt war, da aber zwei verschiedene Heizer das gleiche Verhalten zeigten, sind Fertigungstoleranzen die wahrscheinlichere Ursache für die Temperaturasymmetrie.

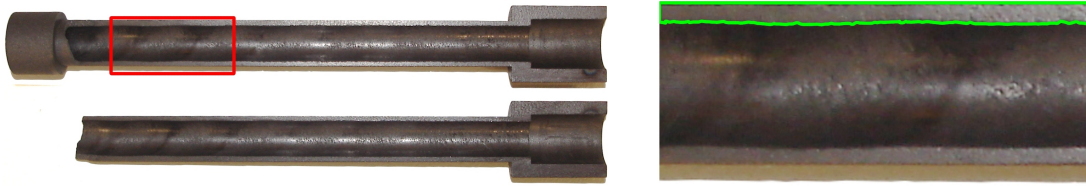


Abbildung 3.8: Ein zerbrochener Heizer. Die Wellenmuster durch die Bohrung sind auf der Vergrößerung zu erkennen. Eine der beiden Wände ist mit $0,61(2)$ mm deutlich dünner als die andere mit $0,69(2)$ mm.

Eine quantitative Bestimmung dieser Temperaturdifferenz ist nicht geglückt. Bei Messungen, bei denen ein Thermoelement zunächst nur die heißere, dann die kühlere Wand berührt, scheitern, da sich das Thermoelement als ganzes aufwärmt und so nicht nur einen Punkt an der Heizerwand ausmisst. Die gemessenen Temperaturdifferenzen zwischen beiden Heizerwänden liegen im Bereich der Messfehler.

3.3 Einsatzbereich und dessen Grenzen

Während dieser Diplomarbeit wird der PAC-Ofen bei Temperaturen bis etwa 1000°C betrieben, allerdings ist der Betrieb bei höheren Temperaturen bis 2350 K grundsätzlich möglich. [For92] Als limitierender Faktor ist hier das K-Typ NiCr-Ni-Thermoelement zu nennen, welches bei Temperaturen oberhalb 1000°C schnell Schaden nimmt, was sich im Absinken der Thermospannung äußert. Bei Temperaturen größer 1300°C können K-Typ Thermoelemente gar nicht mehr eingesetzt werden. [Rös08]

Sollen Messungen bei Temperaturen oberhalb von 1300°C durchgeführt werden, so ist entweder die Temperaturmessung über ein geeignetes Thermoelement, wie zum Beispiel W-Re [Sch93], oder die Messung über ein Pyrometer möglich. In diesem Fall kommt ein kürzerer Heizer zum Einsatz [For92].

Weiterhin ist bei hohen Temperaturen der Einsatz von Hitzeschilden notwendig. Die Strahlungsverluste werden mit steigender Temperatur so hoch, dass sowohl ein Bornitrid- als auch ein Graphithitzeschild in den PAC-Ofen eingebracht werden müssen. Der Bornitridschild wird direkt auf den Heizer aufgesetzt, der Graphitschild wird nahe der Ofenwand auf der oberen Edelstahlhalterung der oberen Ofenummantelung platziert [For92].

Soll die obere Thermoelementdurchführung auch bei hohen Temperaturen verwendet werden, so stößt der benutzte Kleber an seine thermischen Belastbarkeitsgrenzen. Dieser darf nur kurzzeitig auf 200°C erhitzt werden. Um die thermische Belastung an der Glasplatte abschätzen zu können, werden Messungen an der Oberfläche einer Quarzglasplatte, die anstelle der Thermoelementdurchführung

aufgelegt wurde, durchgeführt. An die Messwerte werden unterschiedliche Funktionen angepasst um die Temperatur bei den grundsätzlich erreichbaren 2000°C abzuschätzen. Die nach den Extrapolationen, die beste ist in Abbildung 3.9 gezeigt, zu erwarteten Temperaturen liegen je nach angepasster Funktion zwischen 300°C und 420°C , beide Temperaturen sind zu hoch für den bei der Fertigung der Durchführung verwendeten Klebers. Erst das Einbringen eines zusätzlichen Aluminiumhitzeschildes, welches in einen mit einer Nut versehenen Stützring einsetzbar ist, ließ die extrapolierte Temperatur selbst im schlechtesten Falle an der Scheibe unter 200°C sinken. Die beste Extrapolation ist in Abbildung 3.9 dargestellt. Der Schild wurde mit einer Öffnung versehen, damit eine optische Kontrolle des Inneren des PAC-Ofens weiter möglich ist, eine Darstellung findet sich in Abbildung 2.8.

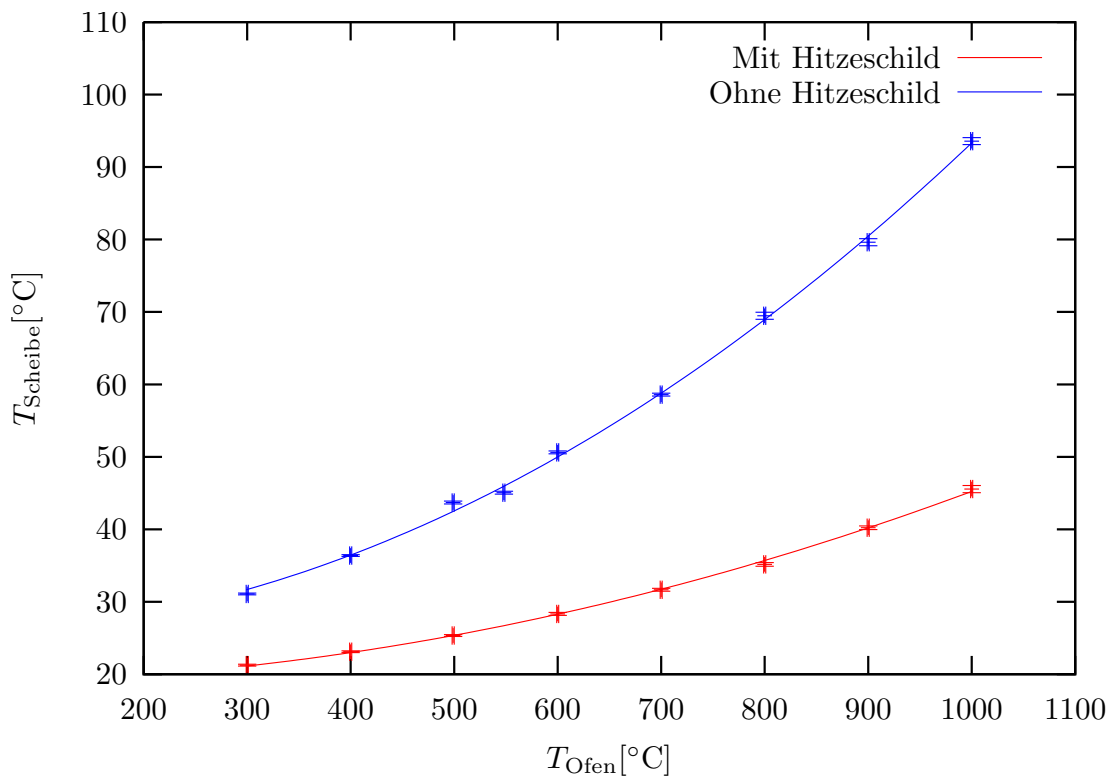


Abbildung 3.9: Der Temperaturverlauf an der Durchführungsscheibe abhängig von der Temperatur im PAC-Ofen, mit und ohne Hitzeschild.

Bei Temperaturen weit über 1160°C (eine ausführliche Diskussion der Einsatztemperatur von Quarzglas findet sich in Kapitel 2.1.2) eignen sich Quarzglasprobenhalter nicht mehr, es werden temperaturresistentere Probenhalter benötigt. Hier bieten sich vor allem zwei Materialien an, Bornitrid und Aluminiumoxid. Beide Materialien verfügen über einen ausreichend hohen Widerstand sowie eine hohe Temperaturresistenz. Die wesentlich bessere Verarbeitbarkeit von Bornitrid stellt allerdings einen wesentlichen Vorteil gegenüber Aluminiumoxid dar [Mül90].

4. Die Vierdetektoranlage

Ein weiterer Teil dieser Diplomarbeit ist, einen bereits vorhandenen Detektoraufbau für die Nutzung mit dem PAC-Ofen und zwei verschiedenen Kryostaten herzurichten. Hierbei sollen auch Messungen ohne einen dieser Apparate möglich bleiben. Der PAC-Ofen sollte dazu von unten, der erste Kryostat von oben in die Detektorebene gefahren werden können, die Detektoren selbst aber ortsfest bleiben. Da der zweite Kryostat nicht verschiebbar ist, ist so das Verschieben des gesamten Detektoraufbaus erforderlich. Für Messungen bei Raumtemperatur sollten sowohl PAC-Ofen als auch Kryostat aus der Detektorebene entfernbar sein. Die Probe kann wie bisher auf einem Probenhalter positioniert werden.

Umbauten an den Detektoren und der gesamten Auswertungselektronik waren nicht notwendig, da der Messplatz schon zuvor für PAC-Messungen eingesetzt wurde und somit sofort einsatzbereit war.

4.1 Der ursprüngliche Aufbau

Als Basis des Detektoraufbaus diente bisher eine kreisförmige Platte, in deren Mitte eine Achse angebracht ist. Auf dieser Platte lagen gekreuzt zwei in der Mitte mit einer Ausdrehung versehene Leisten auf, die auf die Achse gesteckt wurden. Auf diesen Leisten waren die Detektoren auf Schienen montiert und somit um den Mittelpunkt der Platte drehbar und im Abstand davon flexibel. In der gewünschten Position ließen sich die Leisten über Klemmen an der Außenseite der Grundplatte befestigen.

Auf der Achse ist der Probenhalter auf einem Kreuztisch, mit dem eine millimetergenaue Positionierung des Probenhalters möglich ist, befestigt. Der Probenhalter selbst bestand aus einem Aluzylinder, über den passgenau ein Kupferhalbrohr gesteckt werden konnte. Aufgrund der Haftreibung verharrte der Probenhalter in der eingestellten Höhe, die Probe wurde mittels eines Stückes Knetgummi auf dem Probenhalter positioniert.

4.2 Der Umbau der Vierdetektoranlage

Um den PAC-Ofen in die Detektorebene und wieder heraus fahren zu können wurde ein handelsüblicher Scherenhubtisch mit einem Maximalhub von 463 mm und einem Minimalhub von 122 mm unter dem PAC-Ofen montiert. Über eine Gewindestange kann die Höhe des Hubtisches nun problemlos mit einer Ratsche eingestellt werden.

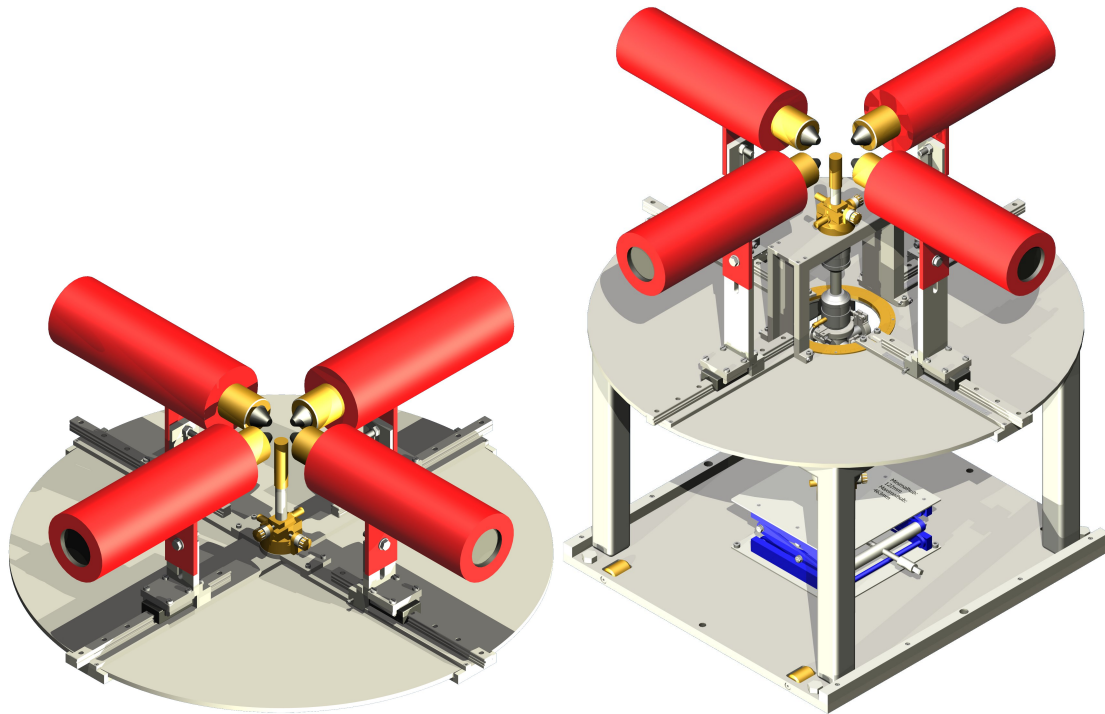


Abbildung 4.1: Links eine Illustration der 4-Detektoranlage vor dem Umbau, rechts nach dem Umbau bei Raumtemperaturmessungen. Der PAC-Ofen ist heruntergefahren und eine Probenbrücke zur Positionierung der Probe montiert.

In die Basisplatte, auf der bisher sowohl Detektoren als auch der Probenhalter montiert waren, wird eine Aussparung mit einem Durchmesser von 180 mm, durch den der PAC-Ofen in die Detektorebene ragen wird, gedreht. In eine ringförmige Nut mit 210 mm Durchmesser am Rand der Aussparung wird ein Messingring eingelegt, über den zwei der vier Detektoren unter einem festen 180° Winkel, auf der Platte drehbar, miteinander verbunden werden. Der drehbare Messingring wird mit einem weiteren Messingring umgeben, auf den eine Winkelskala eingraviert ist um den Winkel unter dem die drehbaren Detektoren stehen bestimmen zu können. Die anderen beiden Detektoren werden fest, ebenfalls unter einem Winkel von 180° zueinander, mit der Platte verschraubt.

Die Schienen, auf denen die Detektoren schon beim alten Aufbau montiert waren,

werden wieder benutzt, aber mit aufgeschraubten Linealen versehen, um die Detektorpositionen reproduzierbar einstellen zu können.

Um mit der Detektorebene eine Höhe zu erreichen in der sowohl mit dem PAC-Ofen, als auch mit Kryostat gemessen werden kann, wird die Basisplatte auf einen Tisch gestellt, dessen Beine auf eine passende Länge gestutzt sind. Um auch ohne PAC-Ofen und Kryostat messen zu können ist es erforderlich eine Brücke über den zwar heruntergefahrenen, aber immer noch bis knapp unter die Detektoren reichenden PAC-Ofen zu bauen. Dazu müssen die Ständer der Detektoren verlängert werden.

Der Tisch wird auf eine Aluminiumplatte gestellt, auf der der Hubtisch festgeschraubt wird um den PAC-Ofen zum einen mittig auszurichten und zum anderen gegen ein Umkippen zu sichern. Diese Platte ist einerseits mit Rollen versehen um den gesamten Aufbau auch unter den zweiten Kryostaten schieben zu können, andererseits werden Schrauben angebracht um die Platte derart anheben zu können, dass die Rollen keinen Bodenkontakt mehr haben und eine waagerechte Ausrichtung möglich ist. Aufgrund der Unebenheit des Bodens ist es nötig, Stahlschienen auf dem Boden zu verlegen, da die Platte sonst aufsetzte.

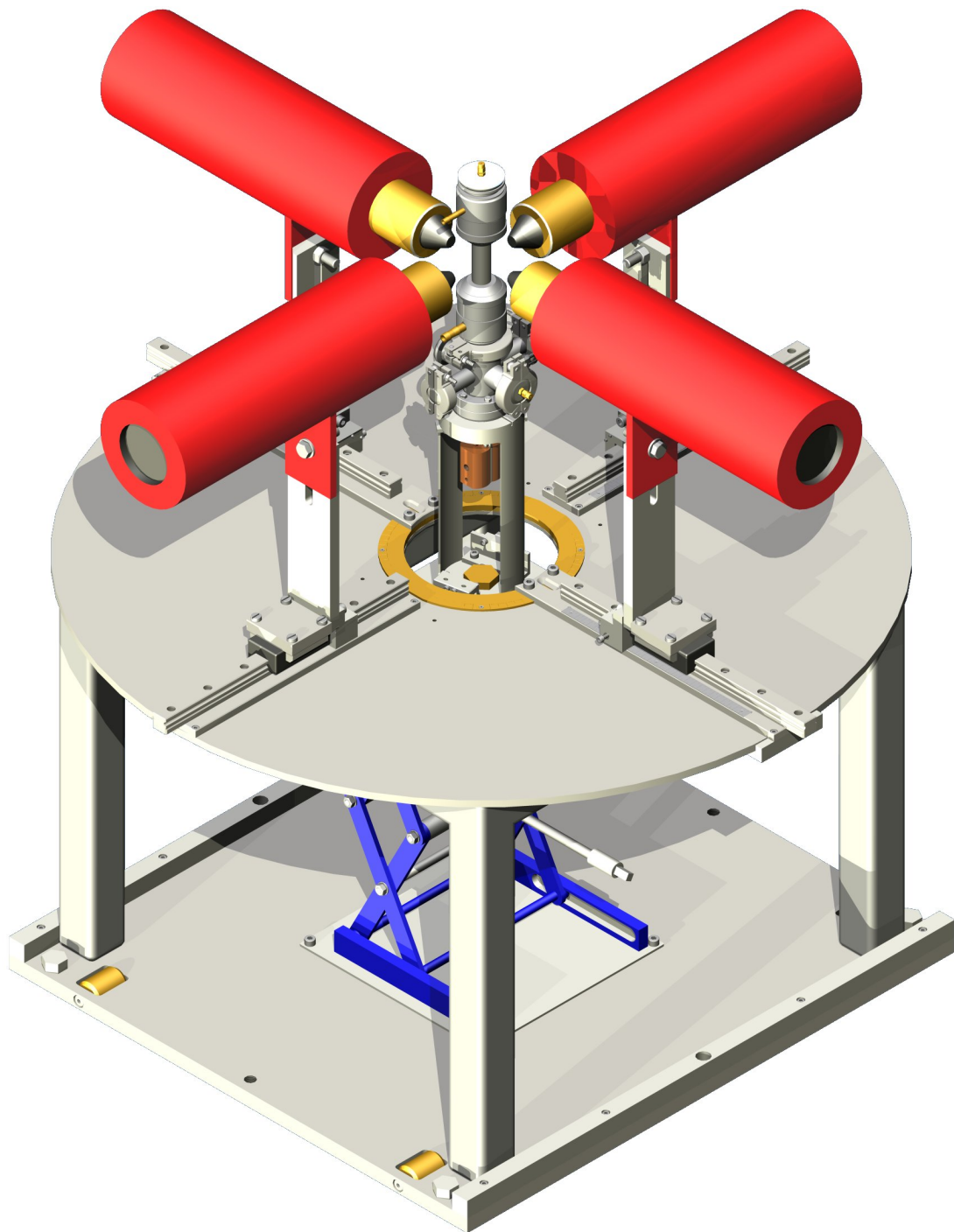


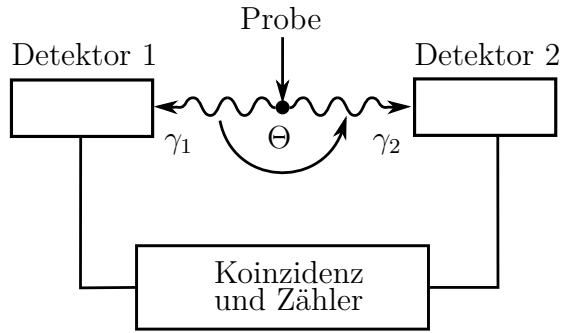
Abbildung 4.2: *Eine Illustration der Vierdetektoranlage nach dem Umbau. Der Hubtisch ist voll ausgefahren und der PAC-Ofen befindet sich messbereit in der Detektorebene.*

5. Theoretische Grundlagen der PAC

Die Theorie der gestörten γ - γ -Winkelkorrelation ist weit entwickelt und ausführlich in entsprechender Literatur wie [Sch10] oder [Sie68] beschrieben. Deswegen soll an dieser Stelle nur ein kurzer Überblick über diese Methode gegeben werden.

5.1 Die ungestörte γ - γ -Winkelkorrelation

Vorraussetzung für PAC-Messungen ist ein Sondenkern, der über eine γ - γ -Kaskade zerfällt. Der Anfangszustand $|I_i, M_i\rangle$ zerfällt hierbei unter Aussendung von γ_1 in den Zwischenzustand $|I, M\rangle$ (siehe Abbildung 5.3). Dieser hat eine Halbwertszeit zwischen einigen ns und einigen μ s und zerfällt unter Emission von γ_2 in den Zustand $|I_f, M_f\rangle$.



Die Übergangsamplituden zwischen den genannten Zuständen sind gegeben durch

$$\langle M | \mathcal{H}_1 | M_i \rangle \equiv \langle I, M, \vec{k}_1, \sigma_1 | \mathcal{H}_1 | I_i, M_i \rangle \quad (5.1)$$

$$\langle M_f | \mathcal{H}_2 | M \rangle \equiv \langle I_f, M_f, \vec{k}_2, \sigma_2 | \mathcal{H}_2 | I, M \rangle \quad (5.2)$$

Abbildung 5.1: Prinzipieller Aufbau einer PAC-Apparatur nach [Sch10].

wobei I_j und M_j die Quantenzahlen von Anfangs-, Zwischen- und Endzustand, \vec{k}_j die Wellenvektoren, σ_j die Polarisation der emittierten γ -Quanten, und \mathcal{H}_j die Wechselwirkungsoperatoren bei der Emission sind ($j = 1, 2$).

Die Winkelkorrelation für einen Übergang von M_i nach M_f ist dann gegeben durch

$$W(M_i \rightarrow M_f) = \sum_{M_i, M_f, \sigma_1, \sigma_2} \left| \sum_M \langle M_f | \mathcal{H}_2 | M \rangle \langle M | \mathcal{H}_1 | M_i \rangle \right|^2 \quad (5.3)$$

wobei kohärent über M summiert werden muss, da M nicht beobachtet wird. Desweiteren wird über Polarisation und alle Anfangs- sowie Endzustände summiert.

Berechnen der Summen liefert folgende Winkelkorrelation

$$W(\vec{k}_1, \vec{k}_2) = W(\Theta) = \sum_{k \text{ gerade}}^{k_{\max}} A_k(1)A_k(2)P_k(\cos(\Theta)) \quad (5.4)$$

mit dem Laufindex k für den gilt:

$$0 \leq k \leq \text{Min}[2I, \text{Max}(2I_\ell, 2I'_\ell), \text{Max}(2I_\ell, 2I'_\ell)] \quad (5.5)$$

Hier ist I der Kernspin des Zwischenzustands, ℓ_j und ℓ'_j bezeichnen die Multipolaritäten im Falle gemischter Übergänge.

5.2 Die gestörte γ - γ -Winkelkorrelation

Ist der Zwischenzustand der γ - γ -Kaskade einem elektromagnetischen Feld ausgesetzt und erfährt damit eine Hyperfeinwechselwirkung, so werden während der Lebensdauer des nun aufgespaltenen Zwischenzustands die magnetischen Unterzustände umbesetzt. Diese Umbesetzung kann mittels des Zeitentwicklungsoperators ausgedrückt werden

$$\begin{aligned} |M_a\rangle &\rightarrow \Lambda(t) |M_a\rangle \\ &= \sum_{M_b} |M_b\rangle \langle M_b | \Lambda(t) |M_a\rangle \end{aligned} \quad (5.6)$$

M_a ist das zunächst durch die Emission von γ_1 besetzte Zwischenniveau.

Zieht man die Hyperfeinwechselwirkung mit in Betracht und setzt (5.6) in die entsprechend umgeformte Formel (5.3) ein, so erhält man die allgemeine Form der zeitabhängigen γ - γ -Winkelkorrelation

$$W(\vec{k}_2, \vec{k}_2, t) = \sum_{k_1, k_2, N_2, N_2} A_{k_1}(1)A_{k_2}(2)G_{k_1, k_2}^{N_1, N_2}(t) \frac{Y_{k_1}^{N_1*}(\Theta_1, \phi_1)Y_{k_2}^{N_2*}(\Theta_2, \phi_2)}{\sqrt{(2k_1 + 1)(2k_2 + 1)}} \quad (5.7)$$

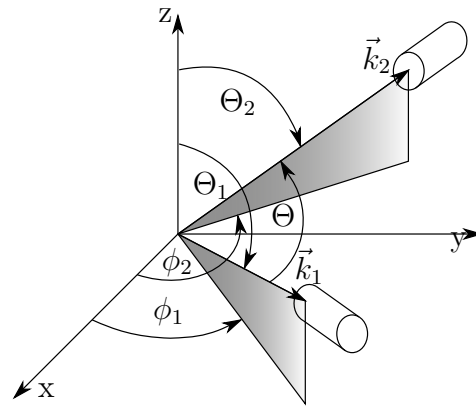


Abbildung 5.2: Allgemeines Koordinatensystem zur Beschreiben der γ - γ -Winkelkorrelation nach [Sch10]. Die Emissionsrichtungen der γ -Quanten sind durch die Wellenvektoren \vec{k}_1 und \vec{k}_2 gegeben.

mit der Störfunktion

$$\begin{aligned}
G_{k_1, k_2}^{N_1, N_2}(t) &= \sum_{M_a, M_b} (-1)^{2I+M_a+M_b} \sqrt{(2k_1+1)(2k_2+1)} \\
&\times \begin{pmatrix} I & I & k_1 \\ M'_a & -M_a & N_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I & I & k_2 \\ M'_b & -M_b & N_2 \end{pmatrix} \\
&\times \langle M_b | \Lambda(t) | M_a \rangle \langle M'_b | \Lambda(t) | M'_a \rangle^* \quad (5.8)
\end{aligned}$$

und der Bedingung

$$k_i = 0, 2, \dots, \text{Min}(2I, \ell_i + \ell'_i) \quad (5.9)$$

mit $i = 1, 2$ und $|N_i| \leq k_i$. Die auftretenden Winkel und die allgemeine Geometrie sind in Abbildung 5.2 skizziert, $A_{k_1}(1)$ hängt nur vom ersten und $A_{k_2}(2)$ nur vom zweiten Übergang ab.

5.2.1 Die Störfunktion bei elektrischer Quadrupolwechselwirkung

Die Berechnung der Störfunktion aus Gleichung 5.8 vereinfacht sich stark, wenn man sich auf statistische und axial-symmetrische Wechselwirkungen beschränkt. Bei den in dieser Diplomarbeit durchgeführten Messungen spielt ferner nur die elektrische Quadrupolwechselwirkung eine Rolle. Schränkt man die Allgemeingültigkeit weiter ein, indem man ausschließlich polykristalline Proben betrachtet, also Proben, bei denen die Orientierung der Kristalle statistisch verteilt ist, wie beispielsweise bei pulverartigen Proben, so wird über alle Feldgradientenorientierungen gemittelt. Die Winkelkorrelation hängt dann nun noch vom Winkel zwischen den beiden emittierten γ -Quanten ab:

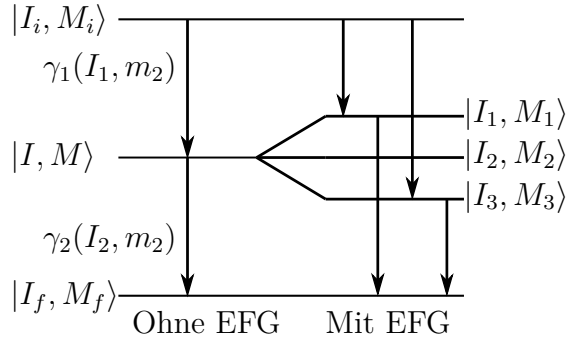


Abbildung 5.3: Eine Beispielhafte 0-1-0 γ - γ -Kaskade nach [Sch10] mit und ohne wirkenden elektrischen Feldgradienten (EFG).

$$W(\Theta, t) = \sum_{k \text{ gerade}}^{k_{\max}} A_{kk} G_{kk}(t) P_k(\cos(\Theta)) \quad (5.10)$$

mit der ebenfalls vereinfachten Störfunktion

$$G_{kk}(t) = \sum_{n=0}^{n_{\max}} s_{kn} \cos(n\omega_Q^0 t) \quad (5.11)$$

wobei

$$s_{kn} = \sum_{M, M'} \left(\begin{array}{ccc} I & I & k \\ M' & -M & M - M' \end{array} \right)^2 \quad (5.12)$$

In diesem konkreten und in dieser Arbeit vorliegenden Fall lässt sich die Winkelkorrelation als eine Überlagerung von trigonometrischen Funktionen darstellen, $P_k(\cos(\Theta))$ sind die Legendrepolynome. $\hbar\omega_Q^0$ ist die kleinste nicht verschwindende Energiedifferenz zweier M -Niveaus und

$$\omega_Q^0 = 3\omega_Q \text{ und } n = |M^2 - M'^2| \text{ für } I \text{ ganzzahlig} \quad (5.13)$$

$$\omega_Q^0 = 6\omega_Q \text{ und } n = (1/2)|M^2 - M'^2| \text{ für } I \text{ halbzahlig} \quad (5.14)$$

mit der Quadrupolfrequenz

$$\omega_Q = \frac{eQV_{zz}}{4I(2I-1)\hbar} \quad (5.15)$$

und der größten Komponente V_{zz} des Tensors des elektrischen Feldgradienten. Durch eine Hauptachsentransformation kann man $|V_{zz}| \geq |V_{yy}| \geq |V_{xx}|$ erreichen und den elektrischen Feldgradienten wegen seiner Spurfreiheit vollständig durch seine größte Komponente und den sogenannten Asymmetrieparameter darstellen.

$$\eta = \frac{V_{xx} - V_{yy}}{V_{zz}}, \quad (5.16)$$

η ist ein Maß für die Abweichung des EFG von der Zylindersymmetrie. A_{kk} sind die sondenkernspezifischen Anisotropiekoeffizienten des Kernzerfalls. Anstelle der Quadrupolfrequenz ω_Q wird auch häufig die spinunabhängige Quadrupolkopplungskonstante angegeben

$$\nu_Q = \frac{eQV_{zz}}{h}. \quad (5.17)$$

5.3 ^{111}In als Sondenkern

Es gibt nur einige radioaktive Isotope, die für PAC-Messungen geeignet sind. Die Messung der gestörten γ - γ -Winkelkorrelation stellt eine Reihe von Anforderungen an die Sondenkerne:

Zunächst muss der Kern über eine γ - γ -Kaskade zerfallen, die über ein isomeres Niveau führt. Dieser Zwischenzustand muss eine Lebensdauer zwischen einigen ns und einigen μs besitzen. Bei Unterschreiten dieser Grenze lassen sich, wegen der endlichen Zeitauflösung der Apparatur, Start- und Stoppquant zeitlich nicht mehr voneinander trennen, Überschreiten der oberen Grenze lässt die zufälligen Koinzidenzen zu stark ansteigen.

Neben einer möglichst großen Anisotropie der Winkelkorrelation des Sondenkernes sollte entweder das elektrische Quadrupolmoment oder das magnetische Dipolmoment möglichst groß sein, um eine starke Wechselwirkung und damit ein starkes Messsignal zu erzeugen.

Zuletzt ist eine Halbwertszeit des Mutterisotops im Bereich von einigen Tagen bis Wochen von Vorteil, um längere Messungen und Messreihen mit der selben Probe über einige Tage zu ermöglichen.

Alle Messungen in dieser Diplomarbeit werden mit ^{111}In als Sondenatom durchgeführt, da es auf verschiedene Arten in die Proben eingebracht werden kann, leicht erhältlich ist und die Anforderung an eine PAC-Sonde gut erfüllt.

5.4 Messdatenanalyse

Bei der Aufnahme eines PAC-Spektrums wird nach dem Registrieren von γ_1 , die Zeit t gemessen bis γ_2 detektiert wird. Die Koinzidenzzählrate ist dann bei zwei Detektoren i und j gegeben durch

$$N_{ij}(\Theta, t) = N_0 e^{-t/\tau} W(\Theta, t) + U \quad (5.18)$$

mit der Lebensdauer τ des Zwischenzustandes und der Untergrundzählrate U , die durch zufällige Koinzidenzen zustande kommt. Die Detektoren stehen unter dem Winkel Θ . Für das Verhältnis aus echten Koinzidenzen K_{ij} und zufälligen Koinzidenzen Z_{ij} gilt bei der Aktivität A der Probe

$$\frac{K_{ij}}{Z_{ij}} \propto \frac{1}{A} \quad (5.19)$$

Mit zunehmender Aktivität der Probe nimmt der Anteil der zufälligen an den insgesamt registrierten Koinzidenzen zu. Für die Auswertung sind sowohl Untergrund, als auch das exponentielle Lebensdauerspektrum uninteressant. Die vollständige Information über die Hyperfeinwechselwirkung ist in der Störfunktion enthalten. Der Untergrund wird von den erhaltenen Spektren abgezogen.

Die in dieser Diplomarbeit genutzte 4-Detektoranlage liefert, da jeder Detektor sowohl Start- als auch Stoppsignal registrieren kann, vier 180° - und acht

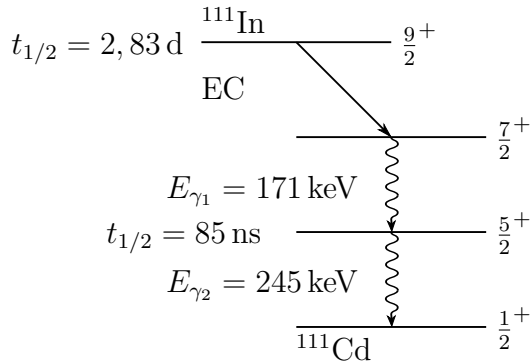


Abbildung 5.4: Auszug aus dem vollständigen Zerfallsschema von ^{111}In [Led67] nach [Sch10].

90°-Spektren. Die geometrisch gemittelten 180°- und 90°-Spektren werden zur Berechnung des sogenannten R-Wertes herangezogen

$$R(t) = 2 \frac{N(180^\circ, t) - N(90^\circ, t)}{N(180^\circ, t) + 2N(90^\circ, t)} \quad (5.20)$$

Bei dieser Berechnung fallen leicht differierende Ansprechwahrscheinlichkeiten, Raumwinkelabdeckungen und ungenaue Zentrierung in erster Näherung heraus. Auch die exponentielle Lebensdauerkurve des Zwischenzustandes tritt nicht mehr auf. Die Berechnung des R-Wertes erfolgt, genau wie die Untergrundkorrektur, mit dem Programm SHOWFIT von [Rus01].

Für den speziellen Fall, dass die Feldgradienten axialsymmetrisch und statistisch verteilt sind vereinfacht sich die Winkelkorrelation zu

$$W(\Theta, t) = 1 + A_{22}G_{22}(t)P_2(\cos(\Theta)) + \dots \quad (5.21)$$

wobei die Terme mit $k \geq 2$ für ^{111}In zu vernachlässigen sind. Mit der weiteren Näherung $|A_{44}| \ll 1$ erhält man für den R-Wert

$$R(t) \approx A_{22}G_{22}(t) \quad (5.22)$$

der jetzt nur noch die Störfunktion, die die stattfindende Wechselwirkung vollständig beschreibt, sowie den kernspezifischen Anisotropiekoeffizienten enthält.

Ursprung der Störfunktion sind lokale Felder am Ort der Sondenkerne, die aber nicht immer identisch sind. Die Störfunktion setzt sich somit aus einer Überlagerung unterschiedlicher Störungen zusammen, die, mit f_α gewichtet, addiert werden.

$$G(t) = \sum_{\alpha} f_{\alpha} G_{\alpha}(t) \text{ mit } \sum_{\alpha} f_{\alpha} = 1 \quad (5.23)$$

Die theoretische Störfunktion kann mit dem Programm NIGHTMARE von [Néd07] an die gemessenen Daten angepasst werden. Dazu werden die Anteile der Störfunktionen f_α , deren Frequenzen $\omega_{Q,\alpha}$ und deren Dämpfung δ_α sowie der Asymmetrieparameter η angepasst. Eine Dämpfung tritt bei leicht unterschiedlichen Feldgradienten, die zur gleichen Komponente gehören, auf.

Über eine multiplikative Konstante kann die Änderung der Anisotropiekoeffizienten, die durch Streuung an Teilen des Aufbaus wie Heizer und oberer Ofenummantelung stattfindet korrigiert werden.

6. Erste Messungen

Zusätzlich zu den konstruktiven Teilen dieser Diplomarbeit werden einige PAC-Messungen durchgeführt. Durch Untersuchung des Schmelzpunktes der Elemente Al, Sb und Zn wird das Temperaturverhalten des PAC-Ofens genauer untersucht.

6.1 Probenpräparation

Die Probenpräparation unterscheidet sich vor allem in der Art, wie die ^{111}In -Sonden in die Proben eingebracht werden. Das ^{111}In wird als InCl_3 -Lösung von der Firma Covidien¹ bezogen. Dieses Kapitel erklärt die beiden genutzten Arten der Einbringung von ^{111}In in die Probe und eine eventuell erforderliche Nachbehandlung der Proben.

6.1.1 Implantation und Ausheilen

Die Ionenimplantationen finden alle am Bonner Isotopenseparator statt. Dabei wird das flüssige InCl_3 zunächst verdampft und ionisiert. Die Indiumionen werden dann auf bis zu 80 keV beschleunigt und durchlaufen dann einen Separationsmagneten wo diese nach dem Verhältnis von Ladung zu Masse selektiert werden. Durch einen weiteren Beschleunigungsschritt kann die Implantationsenergie auf bis zu 160 keV erhöht werden.

Für die durchzuführenden Messungen wird eine Sb- und eine In-Probe mit einer Beschleunigungsenergie von 60 keV unter einem Implantationswinkel von 7° implantiert. Die hierbei entstehenden Implantationsschäden können durch eine Steigerung der Defektdiffusionsrate durch thermische Aktivierung ausgeheilt werden. Die Sb-Probe wird fünf Minuten in der RTA-Anlage (Rapid Thermal Annealing) bei 433°C unter N_2 -Fluss ausgeheilt. In dieser wird die Temperatur sehr schnell auf die Ausheilungstemperatur geregelt und nach dem Ausheilvorgang schnell wieder gesenkt.

Wegen des niedrigen Schmelzpunktes von In, wird die Indiumprobe nach dem Einschmelzen in ein Quarzglasröhrchen eine Stunde in kochendem Wasser ausgeheilt.

¹ Covidien Deutschland GmbH, Gewerbepark 1, 93333 Neustadt an der Donau

6.1.2 Einschmelzen

Zn ist als Folie verfügbar und einfach zu falten, das Indium kann in die Probe eingeschmolzen werden. Hierbei wird, wie bei den Versuchen das Indium durch Diffusion in die Probe einzubringen, die InCl_3 -Lösung auf die Probe getropft und mit einer Infrarotlampe getrocknet. Die folienartige Probe wird dann zusammengefaltet um ein Verdampfen des Indiums beim Erhitzen zu verhindern. In einem Lichtbogenofen wird die Probe sehr schnell und kurz erhitzt und zum Schmelzen gebracht. Das Indium verbindet sich mit der Probe und besetzt substitutionell Gitterplätze.

Eine Sb-Probe wurde ebenfalls durch Einschmelzen mit In versetzt. Aus einem Stück des sehr brüchigen Sb wurden zwei flache Stücke herausgebrochen. Eines der beiden Stücke wurde mit der InCl_3 -Lösung betropft und wie zuvor getrocknet. Durch Übereinanderlegen der beiden Sb-Stücke im Lichtbogenofen wird ein starkes Verdampfen des Indiums beim Einschmelzen verhindert.



Abbildung 6.1: Zwei Ampullen, die für Schmelzpunktmessungen benutzt wurden. Bei der langen Quarzglasampulle ist (siehe Vergrößerung) Indium verdampft und ist weiter oben in der Ampulle kondensiert.

6.2 Schmelzpunktmessungen

Die in Kapitel 3.1 mittels Thermoelement bestimmte Temperaturverteilung im Heizer soll an dieser Stelle über den bekannten Schmelzpunkt der drei Elemente In, Sb und Zn überprüft werden. Die Schmelzpunkte dieser Elemente liegen möglichst weit über den Einsatzbereich des PAC-Ofens verteilt und sollen mit der Methode der PAC vermessen werden. Das Wirtsgitter der Probe darf hierzu nicht kubisch

sein. In diesen Gittern treten durch die hohe Symmetrie keine elektrischen Feldgradienten am Ort der Sondenkerne, die sich auf einem substitutionellen Gitterplatz befinden, auf. Eine Übersicht über die Schmelzpunkte und die Gitterstrukturen findet sich in Tabelle 2.1.

	T_{Schmelz} [°C]	Gitterstruktur
In	156,17	tetragonal
Sb	630,63	rhomboedrisch
Zn	419,5	hcp
Quelle	[Fis08],[Röm66]	[Kop07]

Abbildung 6.2: Die Eigenschaften der Elemente, die für die Schmelzpunktmessungen benutzt werden.

Wird der Schmelzpunkt überschritten, so verflüssigt sich die Probe und die zuvor vorliegende Kristallstruktur löst sich auf. Da die Feldgradienten in einer Flüssigkeit sehr schnell die Orientierung wechseln, so dass die Wechselwirkungszeit sehr kurz ist, kommt es im Mittel zu keiner Wechselwirkung, die im R-Wert zu beobachten ist.

Zur Bestimmung des Schmelzpunktes werden die zu vermessenden Proben in eine Quarzglasampulle eingebracht, die während der Messung auf dem unteren Thermoelement steht.

Grundsätzlich kommt es bei den Schmelzpunktmessungen zu dem Problem, dass beim Überschreiten des Schmelzpunktes ein Teil des Probenmaterials verdampft und sich an kühleren Stellen der Ampulle niederschlagen kann. Gelangt ein Teil der Probe auf diese Art aus der Detektorebene sind die Messergebnisse durch eine nicht mehr punktförmige Probe verfälscht. Die Quarzampullen für die zu schmelzenden Proben werden deswegen sehr kurz gehalten. Um die Handhabung zu verbessern wird ein dünneres Quarzglasröhrchen aufgeschmolzen (siehe Abbildung 6.1).

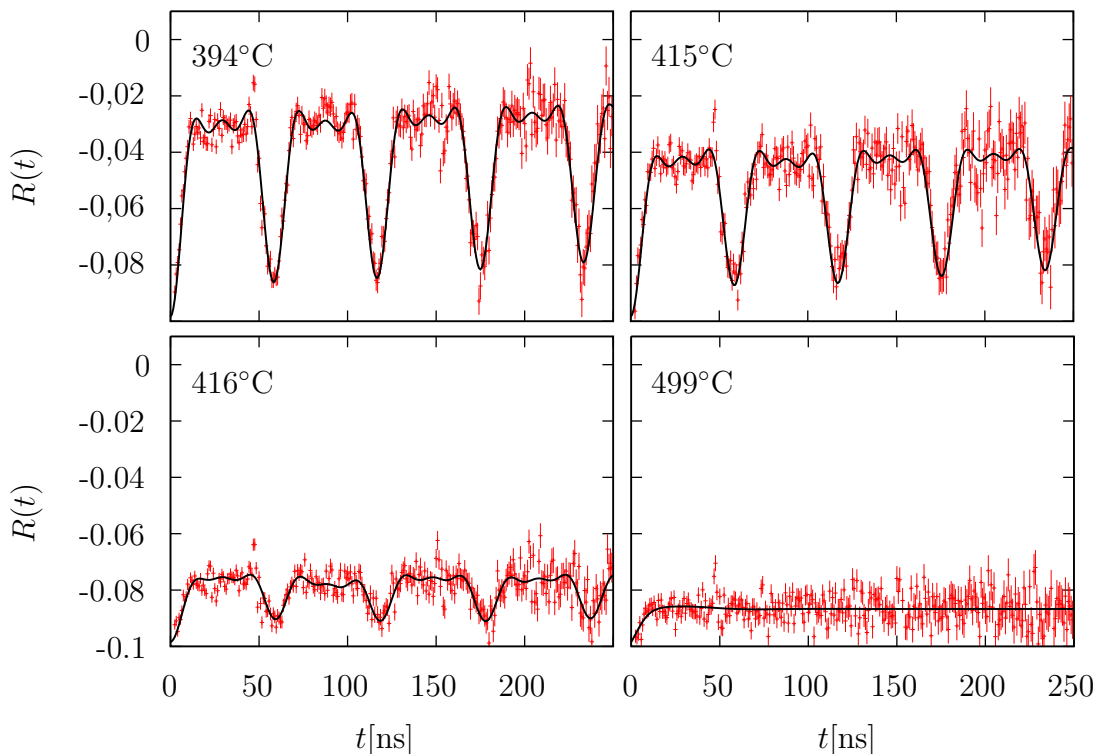


Abbildung 6.3: Vier Spektren zur Bestimmung des Schmelzpunktes von Zn. Links oben die Referenzmessung vor Erreichen des Schmelzpunktes, rechts unten eine Referenzmessung über dem Schmelzpunkt. Zwischen 415 °C und 416 °C fällt der Anteil der Sonden im Zn-Gitter massiv ab.

Die Probentemperatur wird nun ausgehend von Gleichung (3.1) und (3.2) angesteuert. Nach einer Referenzmessung bei einer Temperatur etwa $25\text{ }^{\circ}\text{C}$ unterhalb des Schmelzpunktes wird die Temperatur von etwa $5\text{ }^{\circ}\text{C}$ darunter schrittweise erhöht. Nachdem sich ein thermodynamisches Gleichgewicht eingestellt hat wird bei jeder Temperatur ein Spektrum aufgenommen.

Zur Auswertung wurde am Beispiel von Zn eine Funktion in die Spektren, die in Abbildung 6.3 dargestellt ist, eingepasst. Anhand der Anteile der verschiedenen Frequenzen lässt sich abschätzen, wie groß der Anteil der Sonden ist, die sich in einer Schmelze befinden.

Bei der Referenzmessung befinden sich nur 59% der Sondenkerne in einem Umfeld indem sie dem Gitterfeldgradienten ausgesetzt sind. Die restlichen Sonden haben sich mit großer Wahrscheinlichkeit aus der Probe gelöst und an der Innenseite des Quarzröhrchens niedergeschlagen. An dieser Stelle sind nur die Sonden von Interesse, die sich im Zn-Gitter befinden, diese Anzahl wird für die Referenzmessung auf 100% normiert.

Bei $415\text{ }^{\circ}\text{C}$ befinden sich noch 80% dieser Sonden im Zn-Gitter, Erhöhung der Temperatur auf $416\text{ }^{\circ}\text{C}$ lässt diesen Anteil auf 25% sinken. Anhand dieser Messungen wird der Schmelzpunkt von Zink auf $416\text{ }^{\circ}\text{C}$ abgeschätzt.

Um den Schmelzpunkt von In und Sb zu bestimmen, werden die Amplituden des R-Wertes von der Referenzmessung und der Messungen nahe des Schmelzpunktes verglichen. Durch einen starken Abfall der Amplitude ist die Nähe zum Schmelzpunkt zu erkennen, ein Verschwinden der Amplitude zeigt an, dass die Probe vollständig geschmolzen ist.

Bei der Vermessung des Schmelzpunktes von Indium erweist sich der Vergleich der R-Wertamplituden als unproblematisch und ergibt einen Schmelzpunkt von $151\text{ }^{\circ}\text{C}$, die zugehörigen Spektren sind in Abbildung 6.4 dargestellt. Wegen einer Probe geringer Aktivität sind die statistischen Fehler groß, zum Bestimmen des Schmelzpunktes reichen die Spektren jedoch aus.

Die Amplitude des Spektrums bei $149\text{ }^{\circ}\text{C}$ ist höher als dies bei $110\text{ }^{\circ}\text{C}$ der Fall ist. Ersteres Spektrum wurde nach Überschreiten des Schmelzpunktes gemessen, es ist wahrscheinlich, dass sich beim langsamen Auskristallisieren eine einkristalline Struktur gebildet hat, die nun für die hohe Amplitude verantwortlich ist.

Bei der Bestimmung des Schmelzpunktes von Sb treten einige Probleme auf. Auf gleiche Weise wie bei In wird der Schmelzpunkt mit einer Probe mit geringer Aktivität zweimal zu $637\text{ }^{\circ}\text{C}$ bestimmt. Wegen der großen statistischen Fehler soll diese Messung wiederholt werden. In der folgenden Messung kann das Ergebnis aus der ersten Messung nicht bestätigt werden, der Schmelzpunkt liegt mit etwa $657\text{ }^{\circ}\text{C}$ deutlich höher. Ursachen für diese Abweichung könnten sowohl Verunreinigungen der Probe, als auch die deutlich größere Ausdehnung der zweiten Probe sein.

Da das Sb nach dem Schmelzen Einkristalle bildet, sind die im R-Wert sichtbaren

Frequenzen stark von der Orientierung der Probe bezüglich der Detektoren abhängig. Bereits ein geringes Bewegen der Probe führt zu vollkommen anderen Spektren und erschwert die Vergleichbarkeit der Spektren von verschiedenen Messungen. Zwei Spektren sind in Abbildung 6.5 dargestellt.

An vorhergehender Diskussion ist zu erkennen, dass im PAC-Ofen ein Schmelzbereich auftritt. Die Probe schmilzt nicht bei einer bestimmten Temperatur sondern erst sukzessive mit schrittweise erhöhter Temperatur. Dieser Effekt ist auf die endliche Ausdehnung der Probe und den im Ofen herrschenden Temperaturgradienten zurückzuführen. Eine obere Grenze für den Temperaturgradienten auf der Probe ist anhand der ausgewerteten Spektren mit 10°C anzugeben. Eine genauere Bestimmung des Temperaturgradienten erfordert zusätzliche Messungen, die im Rahmen dieser Diplomarbeit nicht mehr durchgeführt werden können.

Die Messung der Schmelzpunkte bestätigen die Vorhersagen aus Gleichung (3.1) und (3.2). Bei einer Messung kommt es aus einem ungeklärten Grund zu einer stärkeren Abweichung von der vorhergesagten Schmelztemperatur. Alle in diesem Kapitel bestimmten Schmelzpunkte sind in Abbildung 3.4 eingetragen.

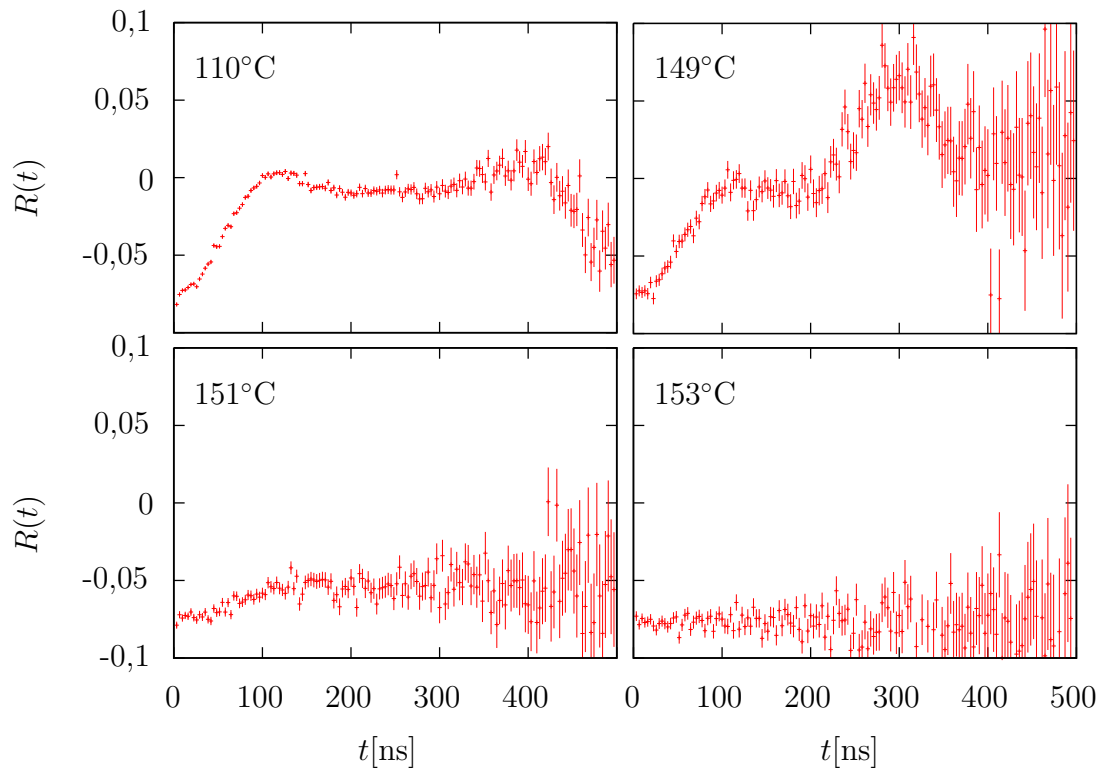


Abbildung 6.4: Vier Spektren zur Bestimmung des Schmelzpunktes von In in vierfacher Kanaladdition. Links oben die Referenzmessung vor Erreichen des Schmelzpunktes. Die Amplitude des Spektrums bei 149 °C ist höher als die bei 110 °C, Anmerkungen hierzu finden sich in Kapitel 6.2.

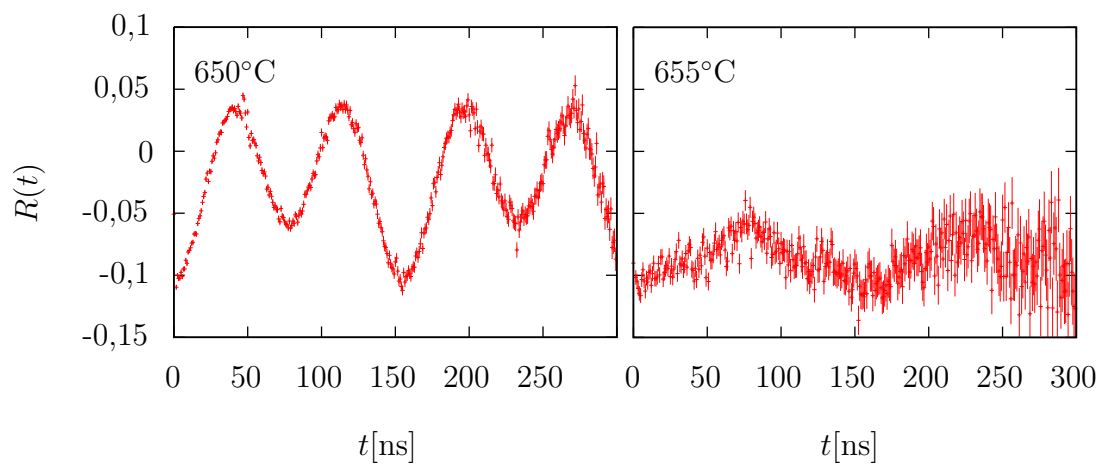


Abbildung 6.5: Zwei Sb-Spektren mit unterschiedlichem Winkel zwischen V_{zz} des ein-kristallinen Sb und den Detektoren. Die Amplitude kann sich aufgrund der höheren Temperatur ändern, die Form des Spektrums ändert sich jedoch weil die Probe um einen unbekanntem Winkel gedreht wurde.

7. Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit beschreibt die Konstruktion und den Test eines Hochtemperaturmessofens. Dieser basiert auf einem bereits vorhandenen Gerät, dessen Aufbau im Rahmen dieser Diplomarbeit verbessert wurde. Zu diesen Verbesserungen gehört vor allem die Elektrodenhalterung, welche für eine deutlich erhöhte Stabilität der Elektroden sorgt und damit die Zentrierung von Heizer und Probe im PAC-Ofen deutlich verbessert. Eine genauere Ausrichtung der Detektoren auf die Probe ist somit möglich.

Mit einer weiteren Thermoelementdurchführung, die auf die obere Ofenummantelung aufgebracht wird, ist eine exakte Positionierung eines Thermoelements direkt an der zu vermessenden einkristallinen Probe möglich. Neben diesen direkt für den Versuch relevanten Optimierungen, werden einige kleine Verbesserungen wie zum Beispiel eine stabile Zugentlastungen konstruiert, die den Versuchsablauf vereinfachen oder Beschädigungen am Aufbau zu vermeiden helfen.

Die Baupläne aller konstruierten Teile, auch derer an denen keine Verbesserungen vorgenommen werden, liegen nun in digitaler Form sowohl für Autodesk Inventor, als auch als pdf-Datei und erstmals in einer Arbeit gesammelt vor.

Das Temperaturprofil des schon eine längere Zeit zum Einsatz kommenden Graphitheizers wird bei verschiedenen Temperaturen zwischen 100 °C und 900 °C vermessen und die optimale Probenposition im Heizer bestimmt.

Das Temperaturverhalten des PAC-Ofens bei Messungen mit Quarzglasampullen wird über den vollen Temperatureinsatzbereich diskutiert. Hierbei kommt zunächst ein Thermoelement zum Einsatz, um den Unterschied zwischen angesteuerter und tatsächlich an der Probe herrschender Temperatur zu bestimmen. Der gefundene Zusammenhang wird durch Vermessung der Schmelzpunkte von drei (Halb-)Metallen überprüft. Diese Messungen finden unter realistischen Versuchsbedingungen statt und werden mit der Technik der PAC ausgewertet. Die Bildung von Einkristallen beim Rekristallisieren erschwert die Auswertung anhand der beobachteten PAC-Spektren.

Bei den durchgeführten Messungen werden Abweichungen zwischen Proben temperatur und angesteuerter Temperatur gefunden, die etwa 7 °C betragen.

Bei den Untersuchungen des Temperaturprofils des Heizer fällt eine Temperaturanisotropie des Heizers auf. Die Ursache hiervon wird ausführlich untersucht, eine

Reduktion der Fertigungstoleranzen als Verbesserung vorgeschlagen.

Neben der Konstruktion des Hochtemperaturmessofens wird eine vorhandene 4-Detektoranlage vollständig umgebaut. Zusätzlich zu den Messungen mit dem PAC-Ofen sind alternativ Messungen mit beiden im Labor zur Verfügung stehenden Kryostaten oder bei Raumtemperatur, ohne einen der beiden Apparate, möglich. Im Rahmen des Umbaus wurden auch an der 4-Detektoranlage eine Reihe von Verbesserungen, wie Lineale zur genauen und reproduzierbaren Detektorpositionierung, angebracht.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein PAC-Messplatz errichtet der, durch die bereits vorhandenen Kryostaten und den neu konstruierten PAC-Ofen, Winkelkorrelationsmessungen in einem Temperaturbereich zwischen 12 K und 1500 K ohne aufwändigen Umbau der Apparatur erlaubt.

Anhang

Baupläne des PAC-Ofens

Im Anhang sind alle Baupläne, die zum Bau des in dieser Diplomarbeit konstruierten PAC-Ofens benötigt werden, zusammengestellt. Alle Plane wurden mit einer Autodesk Inventor Professional 2010 Version für Lernzwecke erstellt. Auf Baupläne, die zum Umbau der Vierdetektoranlage gehören, wird bewusst verzichtet, da diese speziell für den vorhandenen Aufbau gefertigt wurden und rein technischer Natur sind.

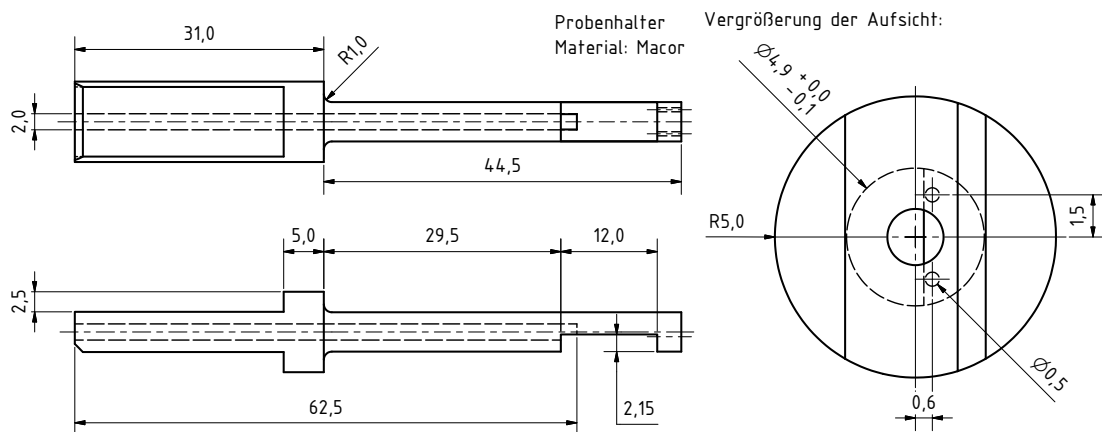


Abbildung A.1: Die Baupläne des Macor-Probenhalters. Sollte der Griff bei der Fertigung abbrechen, so ist es möglich den unteren Teil in den Griff einzusetzen und seitlich zu stiften, wobei der eingesetzte Stift den Kanal für das Thermoelement nicht blockieren darf. Der griffseitige Radius dient lediglich der erhöhten Stabilität bei der Fertigung und erfüllt im Experiment keine Aufgabe.

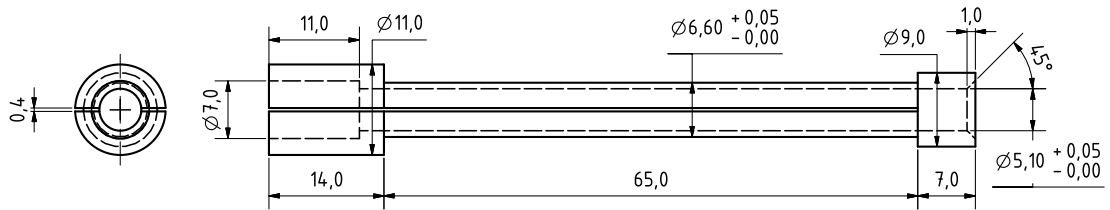


Abbildung A.2: Die Baupläne des Heizers nach [For92]. Es ist wichtig mit kleinstmöglichen Toleranzen zu arbeiten. Selbst geringe Fertigungstoleranzen haben schon großen Einfluss auf die Isotropie der Temperatur während des Betriebs, siehe hierzu auch Kapitel 3.2

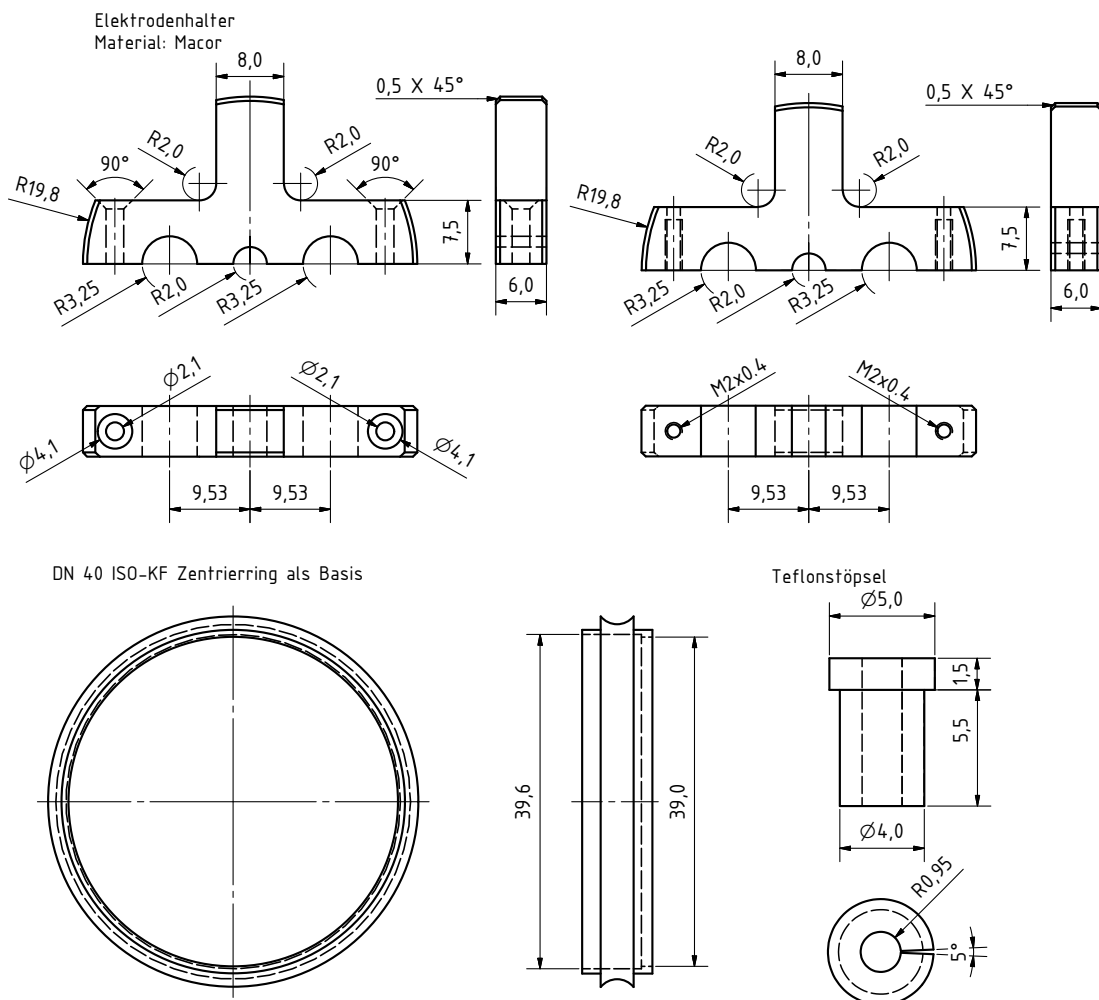


Abbildung A.3: Die Baupläne des Elektrodenhalters

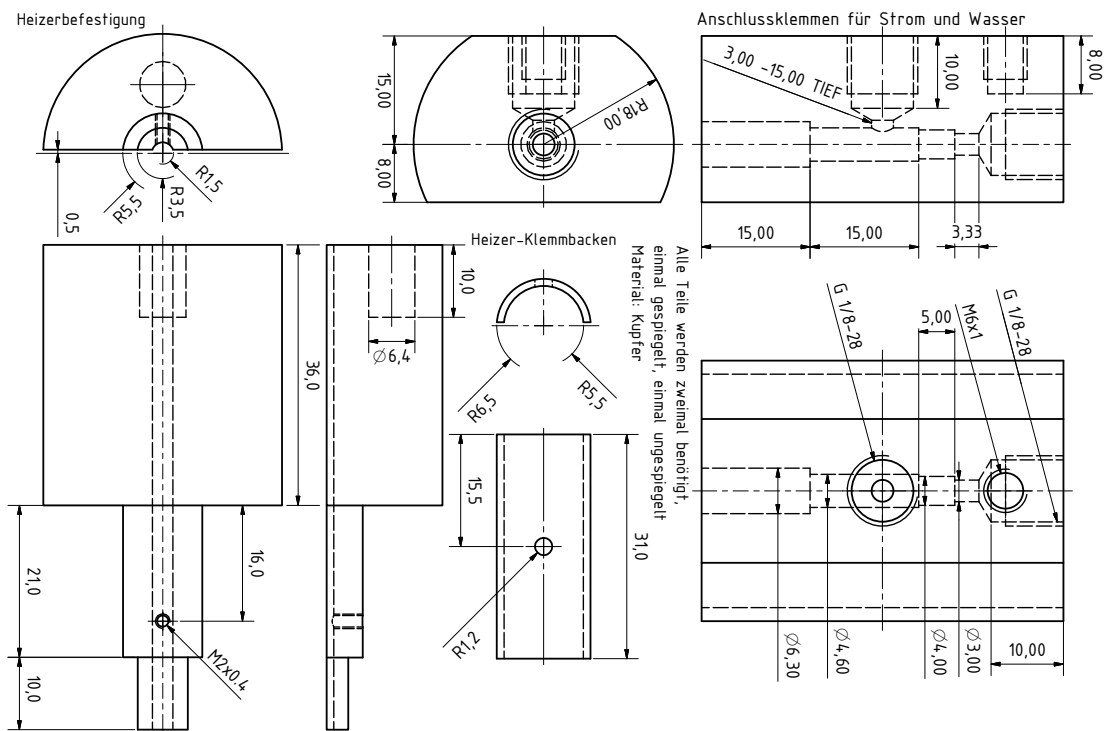


Abbildung A.4: Baupläne für die Schlauch- und Stomanschlüsse, sowie die Befestigungsvorrichtung für den Heizer einschließlich benötigter Klemmen nach [SR93]. Alle Teile werden zweimal benötigt, einmal ungespiegelt und einmal gespiegelt.

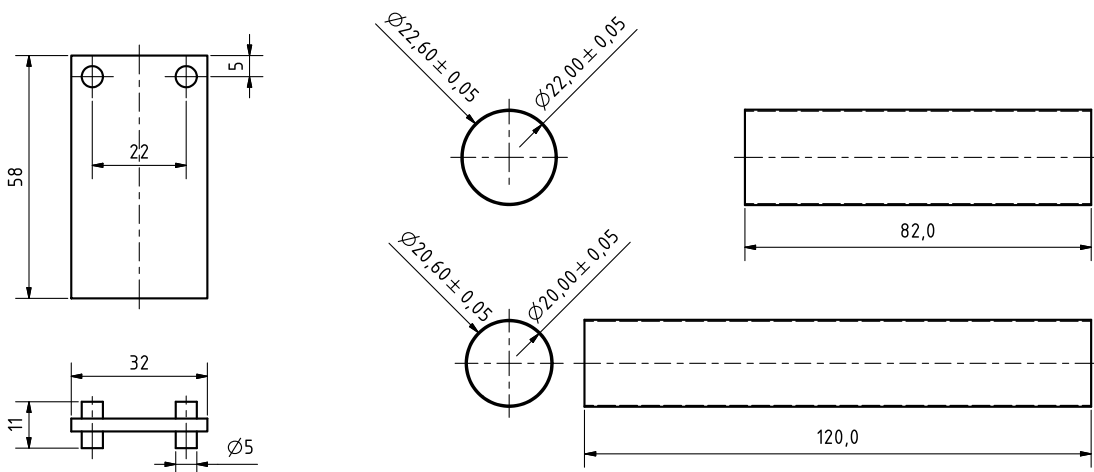


Abbildung A.5: Die Baupläne der Aluminiumröhrchen für die obere Ofenummantelung nach [Mül90] und das Teflonpad zur Isolation der Anschlussklemmen für Strom und Kühlflüssigkeit.

Innere obere Ofenummantelung
Material: 1.4541

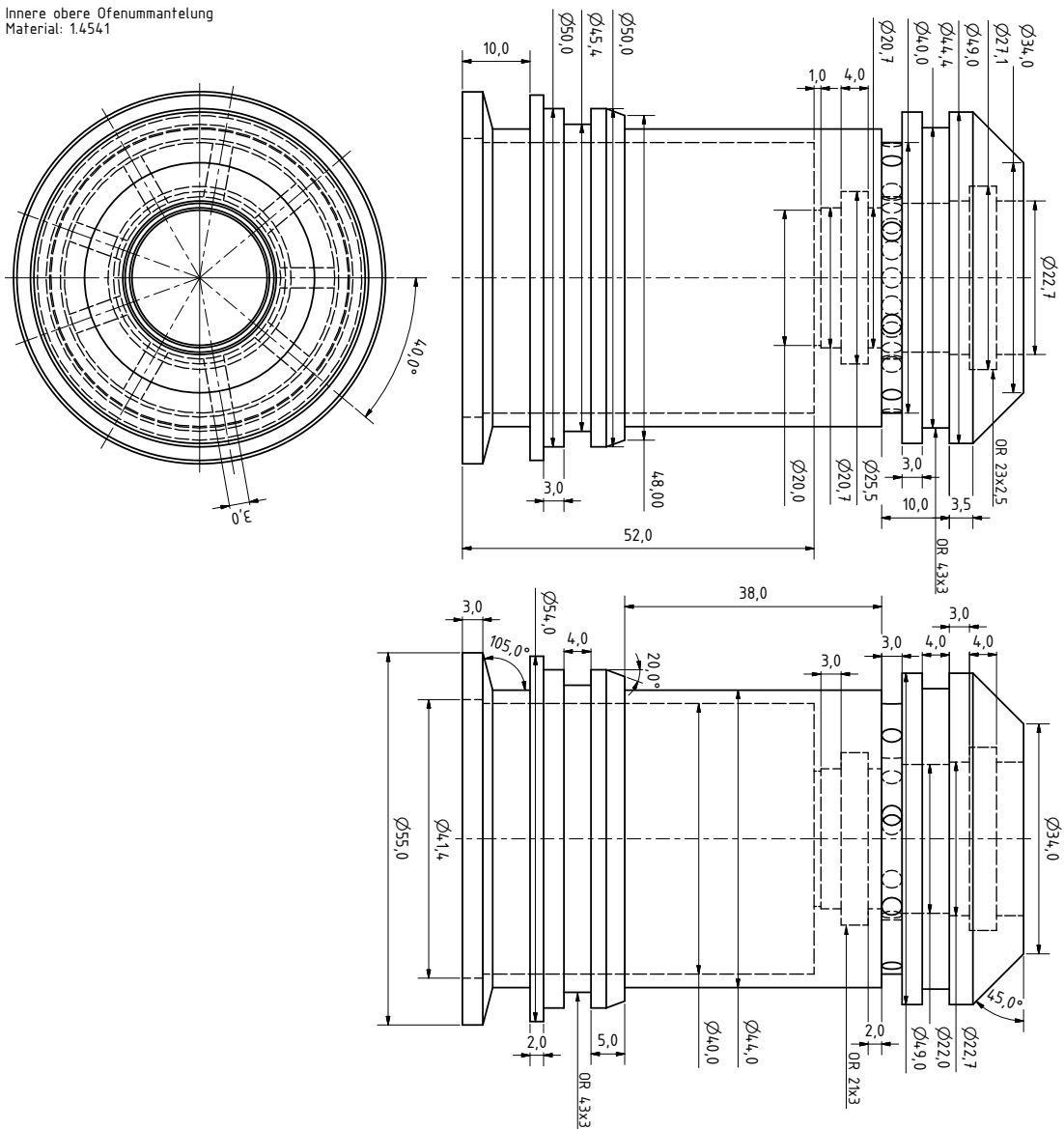


Abbildung A.6: Die Baupläne für den inneren Teil der oberen Ofenummantelung nach [Mül90].

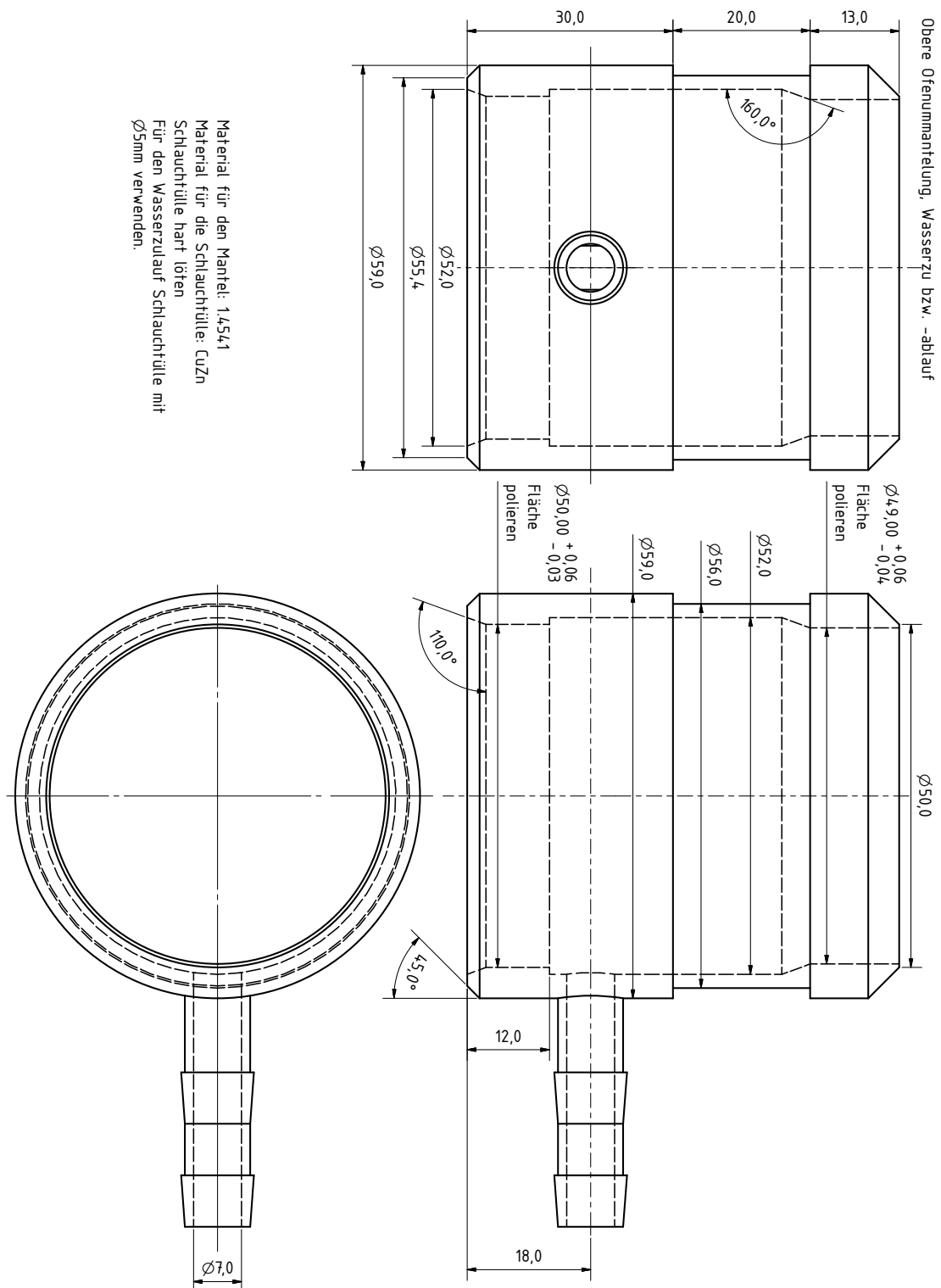


Abbildung A.7: Die Baupläne für den äußeren Teil der oberen Ofenmantelung nach [Mül90].

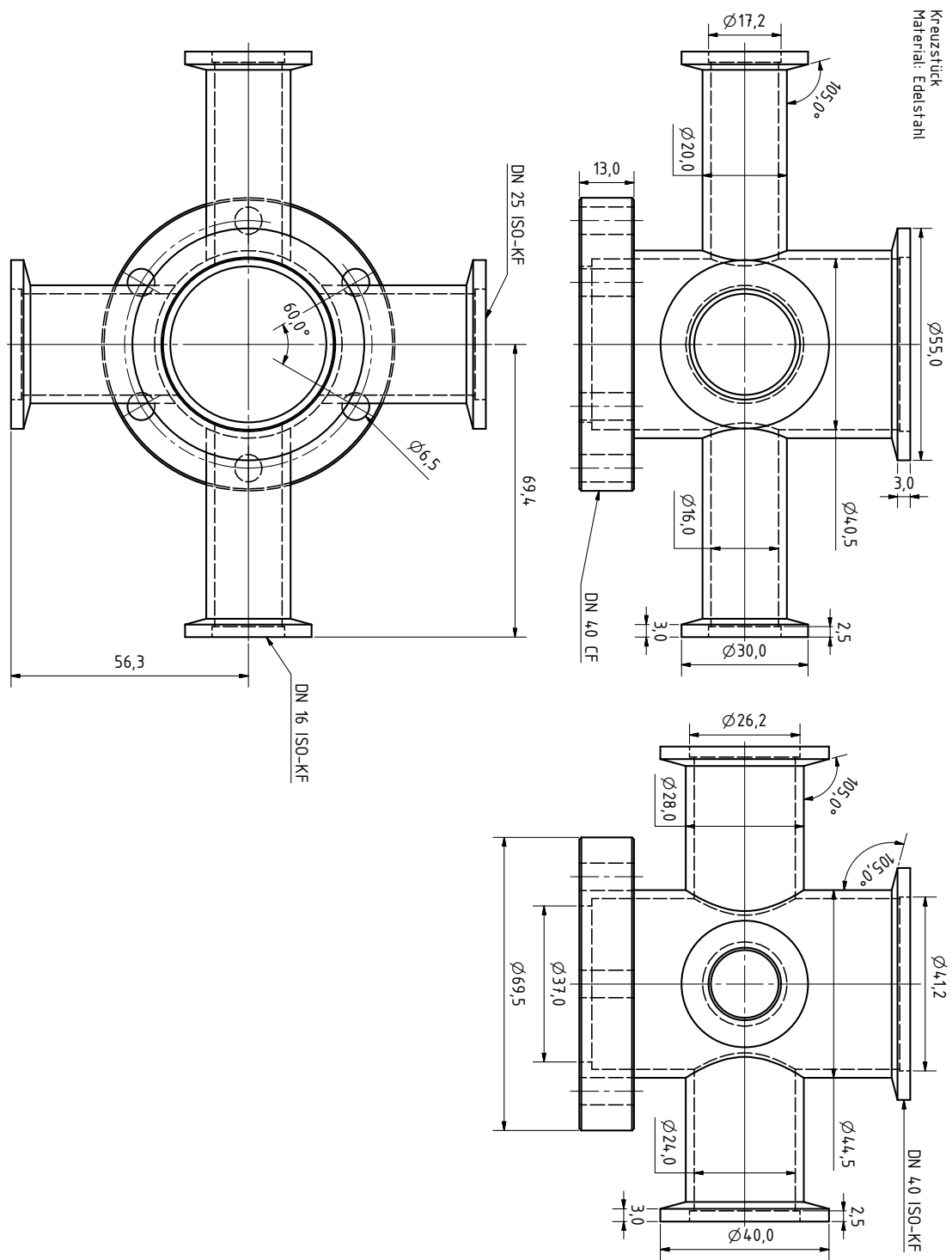


Abbildung A.8: Die Baupläne des Kreuzstückes, ähnlich denen aus [SR93]

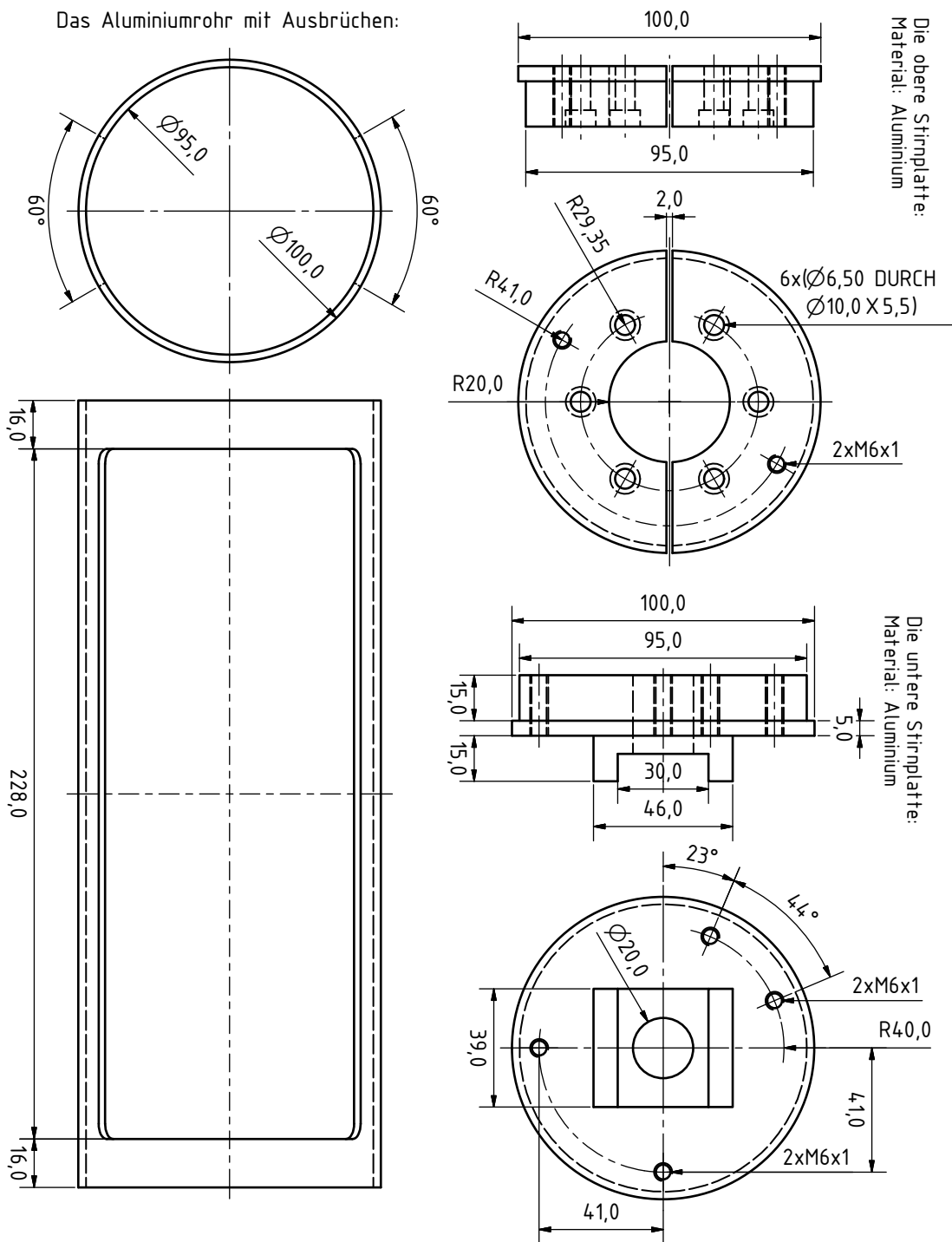


Abbildung A.9: Die Baupläne des Aluminiumrohres und beider Stirnteller des Ofenfußes, nach denen aus [SR93]

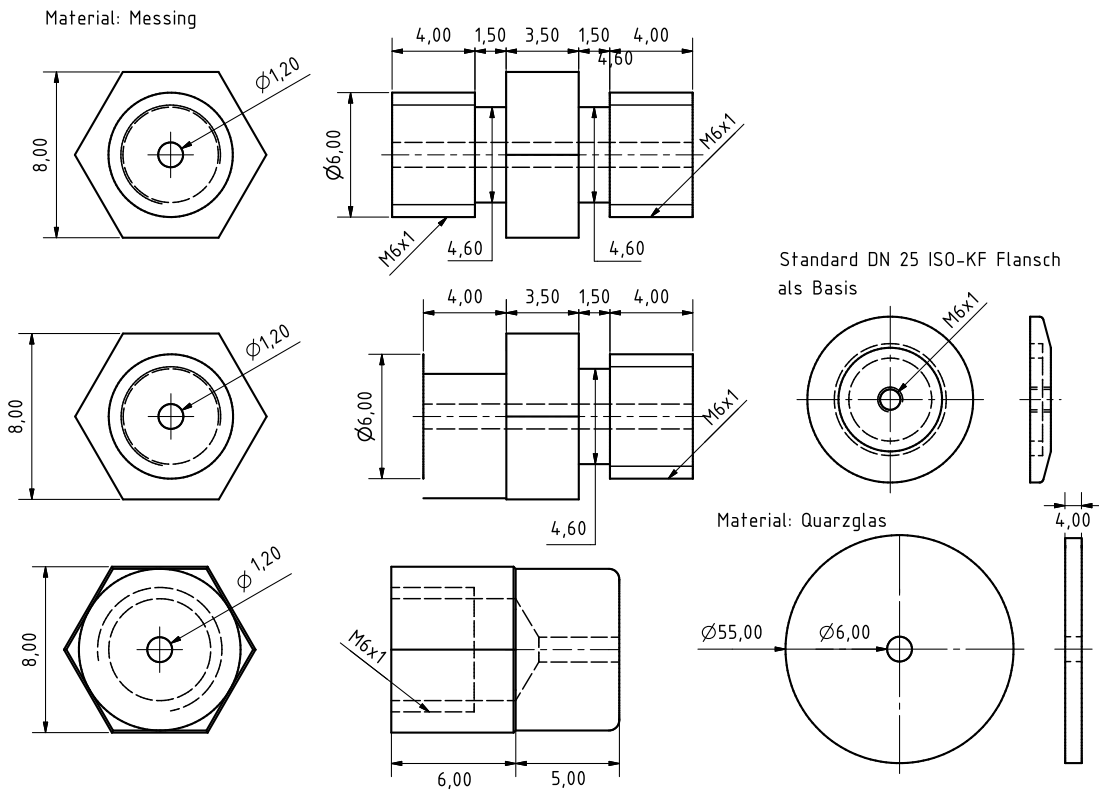


Abbildung A.10: Die Baupläne der Thermoelementdurchführungen. Die Kappe ist für beide Durchführungen identisch.

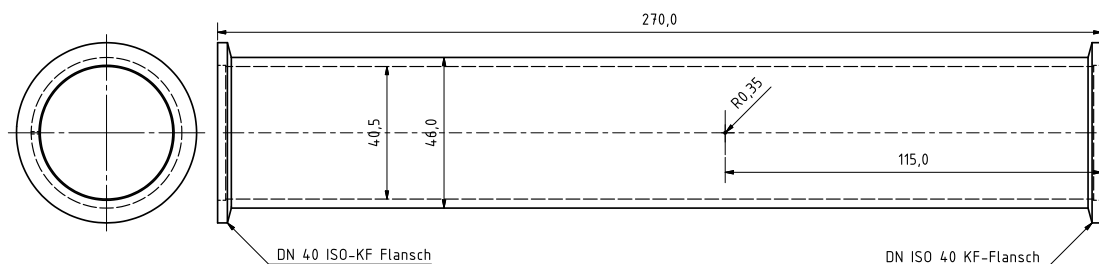


Abbildung A.11: Die Baupläne des Quarzglasrohres das zur Aufnahme der Photos des Heizers verwendet wurde. Das Loch in der Mitte dient zur Zuführung eines Thermoelements und ist optional.

Literaturverzeichnis

- [Ams03] AMSLER & FREY AG (Hrsg.): *PTFE Polytetrafluorethylen, Technisches Datenblatt*. Feldstrasse 26, 5107 Schinznach Dorf, Switzerland: Amsler & Frey AG, Januar 2003. www.amsler-frey.ch/
- [Coj10] COJOCARU, Pavel, Universität Bonn, Diplomarbeit, September 2010
- [Cor] CORNING INCORPORATED LIGHTNING & MATERIALS (Hrsg.): *Macor*. Houghton Park CB-08, Corning, New York 14831: Corning Incorporated Lightning & Materials, <http://www.corning.com>
- [For92] FORKER, M. u. a.: A furnace for high temperature perturbed angular correlation measurements. In: *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research* (1992), November
- [Fis08] FISCHER, Ulrich u. a.: *Tabellenbuch Metall*. Düsseldorf StraÙe 23, 42781 Haan-Gruiten, Germany : Verlag Europa-Lehrmittel, Nourney, Vollmer GmbH & Co. KG, 2008
- [Fri] FRIATEC AG, DIVISION FRIALIT-DEGUSSIT (Hrsg.): *Frialit-Degussit Oxidkeramik, Materialien, Anwendungen und Eigenschaften*. Steinzeugstraße 50, 68229 Mannheim, Germany: Friatec AG, Division Frialit-Degussit, <http://www.friatec.de>
- [Sie68] FRAUENFELDER, H. ; STEFFEN, M. ; SIEGBAHN, Kai (Hrsg.): *Alpha-, beta-, and gamma-ray spectroscopy*. Bd. 2. North-Holland Publishing Company, 1968
- [Hor08] HORNOGEN, Erhard u. a.: *Werkstoffe, Aufbau und Eigenschaften*. Springer-Verlag, 2008
- [Her09] HERAEUS QUARZGLAS GMBH & CO. KG (Hrsg.): *Base Materials*. Reinhard-Heraeus-Ring 29, 63801 Kleinostheim, Germany: Heraeus Quarzglas GmbH & Co. KG, Dezember 2009. <http://www.heraeus-quarzglas.com/>

- [Hos] HOSITRAD DEUTSCHLAND (Hrsg.): *High Power/Liquid Cooled Feed-through Catalog*. Lindnergasse 2, 93047 Regensburg, Germany: Hositrad Deutschland, <http://www.2ceramtec.com>
- [Kop07] KOPITZKI, Konrad ; HERZOG, Peter: *Einführung in die Festkörperphysik*. B. G. Teubner GmbH, 2007
- [Led67] LEDERER, C. M. ; HOLLANDER, Jack M. ; PERLMAN, Isadore: *Table of Isotopes*. Wiley & Sons, Inc., 1967
- [Mac00] MACE, R. G. ; GE QUARTZ INC. (Hrsg.): *Glühen von Quarzglas*. 4901 Campbell Road/Willoughby, OH 44094, USA: GE Quartz Inc., Februar 2000. www.ge.com/quartz
- [Mül90] MÜLLER, Markus: *Entwicklung eines Hochtemperaturofens zur Messung gestörter Winkelkorrelationen und Untersuchungen am System ^{181}Ta : Yttrium*, Universität Bonn, Diplomarbeit, 1990
- [Néd07] NÉDÉLEC, Ronan: *Seltene Erden in GaN und ZnO untersucht mit der PAC-Methode*, Universität Bonn, Diss., 2007
- [Nie09] NIEDERHAUSEN, Jens: *Temperaturverhalten eines Indium-Defekt-Komplexes in Aluminiumnitrid*, Universität Bonn, Diplomarbeit, März 2009
- [Ple06] PLEIGER LASEROPTIK (Hrsg.): *Datenblätter der Beschichtungen*. Im Hammertal 51, 58456 Witten, Germany: Pleiger Laseroptik, 2006. <http://www.pleiger-laseroptik.de>
- [Röm66] RÖMPP, Hermann: *Chemie Lexikon*. Bd. Band 2: F-L. Stuttgart Germany : Franckh'sche Verlagshandlung, W. Keller & Co., 1966
- [Rös08] RÖSSEL-MESSTECHNIK GMBH (Hrsg.): *Produktinformation 071*. Lohstraße 2, 59368 Werne, Germany: Rössel-Messtechnik GmbH, Oktober 2008. <http://www.roessel-messtechnik.de/>
- [Rus01] RUSKE, Florian: *Indiumimplantation in Galliumnitrid untersucht mit der γ - γ -Winkelkorrelationsmethode*, Universität Bonn, Diplomarbeit, November 2001
- [Sch93] SCHMIDBERGER, Jochen: *Aufbau einer computergestützten Temperaturregelung und Winkelkorrelationsmessungen am System ^{181}Ta :Zirkoniumdioxid*, Universität Bonn, Diplomarbeit, März 1993
- [SGL] SGL CARBON GROUP (Hrsg.): *Spezialgraphit Marke R6650*. SGL Carbon GmbH Werk Ringsdorff, Drachenburgstraße 1, 53170 Germany: SGL Carbon Group

-
- [SR93] SCHULZ-ROHJAN, Mark: *Aufbau und Test eines PAC-Meßofens und TDPAC-Messungen am System ^{111}In in AgGaS_2* , Universität Bonn, Diplomarbeit, September 1993
- [Sch10] SCHATZ, Günter ; WEIDINGER, Alois ; DEICHER, Manfred: *Nukleare Festkörperphysik*. Vieweg + Teubner, 2010

Abbildungsverzeichnis

2.1	Transmissionskurve von SiO_2	5
2.2	Die Reflektivitätskurve von Aluminium	7
2.3	Explosionszeichnung vom Heizer mit Befestigung	9
2.4	Die Stromdurchführung	10
2.5	Illustration der Elektrodenkühlung	11
2.6	Explosionszeichnung des Elektrodenhalters	13
2.7	Explosionszeichnung der Thermoelement-Flanschdurchführung . .	14
2.8	Explosionszeichnung der Thermoelement-Glasdurchführung	15
2.9	Explosionszeichnung der oberen Ofenummantelung	16
2.10	Explosionszeichnung von Kreuzstück und oberer Stirnplatte . . .	18
2.11	Die Probenhalter	20
3.1	Temperaturprofil des Heizers bei 700°C	24
3.2	Illustration des Graphitheizers	24
3.3	Temperaturprofil des Heizers von 100°C bis 900°C	25
3.4	Zusammenhang von angesteuerter und realer Temperatur	26
3.5	Anisotrop verbrannter Macor-Probenhalter	27
3.6	Temperaturasymmetrie im Heizer	27
3.7	IR-Bilder der Heizerklemmen	29
3.8	Ein aufgebrochener Heizer	30
3.9	Der Temperaturverlauf an der Durchführungsscheibe	31
4.1	Illustration der 4 Detektoranlage vor und nach Umbau	34
4.2	Die Vierdetektoranlage nach dem Umbau	36

5.1	Prinzipieller Aufbau einer PAC-Apparatur	37
5.2	Allgemeines Koordinatensystem bei der PAC	38
5.3	Allgemeine γ - γ -Kaskade	39
5.4	Auszug aus dem Zerfallsschema von ^{111}In	41
6.1	Ampullen für Schmelzmessungen	44
6.2	Eigenschaften der Elemente für die Schmelzpunktmessungen	44
6.3	Spektren der Schmelzpunktmessungen von Zn	45
6.4	Spektren der Schmelzpunktmessungen von In	48
6.5	Spektren der Schmelzpunktmessungen von Sb	48
A.1	Baupläne des Macor-Probenhalters	51
A.2	Baupläne des Heizers	52
A.3	Baupläne des Elektrodenhalters	52
A.4	Baupläne für Schlauch- und Stromanschlüsse & Heizerbefestigung	53
A.5	Baupläne der Aluröhrchen der oberen Ofenummantelung und des Teflonpads	53
A.6	Baupläne für die obere Ofenummantelung, innerer Teil	54
A.7	Baupläne für die obere Ofenummantelung, Zu- und Ablauf	55
A.8	Baupläne des Kreuzstückes	56
A.9	Baupläne des Ofenfußes	57
A.10	Baupläne der Thermoelementdurchführungen	58
A.11	Baupläne des Quarzglasrohres	58

Danksagung

Zu guter Letzt möchte ich mich bei all denen bedanken, die zum Entstehen dieser Arbeit beigetragen, mich unterstützt oder diese Diplomarbeit in dieser Form erst möglich gemacht haben.

An erster Stelle geht mein Dank an Herrn Priv. Doz. Dr. Reiner Vianden für die ausgezeichnete Betreuung. Diese umfasste gewinnbringende fachliche Diskussionen und stets geduldige Hilfe, wo diese nötig war. Desweiteren sind hier die vielen interessanten Diskussionen über politische und religiöse Themen bei Kaffee und Keksen und natürlich das Schlangen-Babysitting zu nennen.

Herrn Prof. Dr. K.-T. Brinkmann danke ich für die Übernahme des Koreferates dieser Diplomarbeit.

Für die (falls nötig sehr schnelle) Fertigung aller benötigten Teile bedanke ich mich bei allen Mitarbeitern der feinmechanischen Werkstatt des ISKP. Besonderer Dank geht hier an Herrn Eichler für die ausführlichen, lehrreichen und zielführenden Diskussionen vieler Bauteile (Stichwort: Laboralltagstauglichkeit) und die vielen kleinen Einführungen in die Welt der Feinmechanik. Auch möchte ich mich beim Willi für die Heizer-Massenproduktion und die mehrfache Herstellung der Aluminiumröhrchen der oberen Ofenummantelung bedanken. Ein großes Dankeschön auch an Herrn Klaes für die Hilfe in der Studentenwerkstatt und die Erklärung vieler feinmechanischer Tricks.

Bei Stefan Birkenbach möchte ich mich für die Unterstützung in allen Fragen rund ums Vakuum und für die Chillis bedanken.

Bei den "Isotopies", Conny Noll, Albert Dahl und Sigggi Hinderlich bedanke ich mich für die Implantation der Proben.

Ich bedanke mich bei meiner gesamten Arbeitsgruppe: Pavel Cojocar, Valentin Germic, Thomas Gerschke, Sahar Hamidi, Matthias Heinrichs, Patrick Keßler, Jakob Penner, Maqsud Rasulbaev, Nicole Santen, Michael Steffens und Riccardo

Valentini für die angenehme Arbeitsatmosphäre und die schöne Zeit während meiner Diplomarbeit.

Besonders danke ich Pavel Cojocararu für die Zusammenarbeit bei der Inbetriebnahme des konstruierten PAC-Ofens. Fünf Stunden Phasenverschiebung können die Zusammenarbeit zwar erschweren, aber es hat ja doch alles geklappt.

Zusätzlich bedanke ich mich bei Maqsud Rasulbaev, dem alten usbekischen A.F., für die ganze گه.

Ausdrücklicher Dank gebührt auch “meinem Doktorand”, dem Michi, der mir bei allerlei Fragen rund um den PAC-Ofen und die PAC ganz allgemein geholfen hat. Auch möchte ich mich für das Korrekturlesen meiner Diplomarbeit herzlich bedanken.

Bei Patrick Keßler möchte ich mich zusätzlich für die vielen Korrekturvorschläge in meiner Diplomarbeit bedanken.

Weiterer Dank gilt auch Dr. Thomas Gersch(e), der mich bei den NIGHTMARE-Fits unterstützt hat.

Explizit möchte ich Sahar Hamidi danken, ohne die ich die letzten Tage vor Abgabe dieser Arbeit wohl nicht überstanden hätte. Vielen Dank für die Unterstützung in Form von Brötchen, Reis, Getränken, Obdach und Gesellschaft! Ebenso bedanke ich mich für die Geduld, sich meinen Diplomvortrag neun (!) mal anzuhören.
مرسب سحرم!

Bedanken möchte ich mich weiterhin bei Frau Dudenhausen, deren Unterricht mich dazu veranlasst hat Physik zu studieren.

Ganz besonderer Dank gilt Jacqueline Nagel, ohne die ich vielleicht nie die Diplomprüfungen geschafft hätte, die mir immer in jeder Lebenslage zur Seite steht.

Bedanken möchte ich mich auch bei Eva Conrad, Andreas Puls, Bettina Steitz und allen anderen, die mich während des Studiums unterstützt haben.

Meinen Eltern möchte ich an dieser Stelle ganz herzlich für die ausdauernde Unterstützung während dieses Studiums danken. Ohne diese wäre dieses Studium für mich unmöglich gewesen.