

# Materialforschung mit Positronen: Von der Doppler-Spektroskopie zur Vorhersage des Ermüdungsbruchs

## Habilitationsschrift

zur Erlangung der *venia legendi*

vorgelegt der

Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät  
Der Rheinischen Friedrich-Wilhelms Universität Bonn

von

Dr. rer. nat. Matz Haaks aus Bonn

Meisburg und Eschenlohe 2009



# Inhalt

<b>1</b>	Einleitung.....	1
<b>2</b>	Positronen als Fehlstellensonden.....	5
	2.1 Positronenquellen.....	6
	2.1.1 Langlebige $\beta^+$ -Strahler.....	6
	2.1.2 Kurzlebige $\beta^+$ -Strahler durch Aktivierung.....	7
	2.1.3 Konversion von $\gamma$ -Strahlung über Paarbildung.....	8
	2.2 Wechselwirkung von Positronen mit Materie.....	11
	2.2.1 Oberflächeneffekte.....	11
	2.2.2 Energieverlust und Thermalisation.....	12
	2.2.3 Reichweite von Positronen in Materie.....	13
	2.2.4 Diffusion.....	16
	2.2.5 Einfang in Defekte.....	16
	2.2.6 Annihilation.....	18
	2.3 Lebensdauer-Spektroskopie.....	20
	2.3.1 Klassische Sandwich-Geometrie: $\gamma$ - $\gamma$ Koinzidenz.....	20
	2.3.2 Neue Szintillatoren.....	21
	2.3.3 $\beta$ - $\gamma$ -Koinzidenz.....	22
	2.4 Doppler-Spektroskopie.....	24
	2.4.1 Der 2-Gamma Zerfall.....	24
	2.4.2 Positronium.....	27
	2.5 Aufbereitung der Doppler-Daten.....	29
	2.5.1 Stabilisierung.....	29
	2.5.2 Untergrundreduktion zur Auswertung der Linienform.....	31
	2.5.3 Energieauflösung bei 511 keV.....	34
	2.6 Die chemische Umgebung der Fehlstelle.....	35
	2.6.1 Koinzidenzmessungen.....	36
	2.6.2 Hochimpulsanalyse.....	44
	2.6.3 Untersuchung von Ausscheidungen in einer Al-Cu-Mg Legierung.....	52
<b>3</b>	Positronen-Mikrosonden.....	61
	3.1 Ein Überblick aktueller Projekte.....	61
	3.2 Die Bonner Positronen-Mikrosonde (BPM).....	63
	3.2.1 Funktionsweise der BPM.....	63
	3.2.2 Eine miniaturisierte Positronenquelle.....	66
	3.2.3 Strahljustage und optische Strahlverkleinerung.....	69
<b>4</b>	Plastizität und Materialermüdung.....	73
	4.1 Nachweis der Plastizität mit Positronen.....	74
	4.2 Abbildung von Deformationszonen – Ein Überblick.....	78
	4.2.1 Zerstörende Methoden.....	78
	4.2.2 Zerstörungsfreie Methoden.....	81
	4.2.3 Ein kurzer Vergleich der Methoden.....	87
	4.3 Abbildung von Deformationszonen mit Positronen.....	89
	4.3.1 Die plastische Zone vor einer Reißspitze.....	89

	4.3.2 Deformationszonen bei der Hochgeschwindigkeitszerspanung.....	95
	4.4 Vergleich von PAS und Röntgenbeugung .....	97
	4.5 Wasserstoff und Ermüdung .....	104
	4.5.1 Einfang von Wasserstoff in die plastische Zone .....	104
	4.5.2 Ortsaufgelöster Wasserstoffnachweis .....	107
	4.6 Plastizität im "spröden" Halbleiter GaAs .....	110
<b>5</b>	Vorhersage des Ermüdungsbruchs .....	115
	5.1 Vorhersage des Ermüdungsbruchs aus der Fehlstellendichte.....	117
	5.1.1 Schadensvorhersage: Al-Legierungen.....	123
	5.2 Untersuchung am Radreifenstahl A4T des ICE – Ein Beispiel.....	127
	5.2.1 Zugversuche .....	127
	5.2.2 Vorhersage des Ermüdungsbruchs .....	131
	5.3 Modellierung der Akkumulation von Gitterfehlern.....	133
	5.3.1 Ein kurzer Überblick über den Stand der Technik.....	133
	5.3.2 Ein neuer Ansatz zur Schadensakkumulation .....	134
<b>6</b>	Zusammenfassung .....	139
<b>7</b>	Literaturverzeichnis .....	145

# Kapitel 1

## Einleitung

In den Lehrbüchern zur Physik der kondensierten Materie wird der Festkörper über die Struktur des idealen Kristallgitters eingeführt. In der Realität sind diese Strukturen jedoch immer durch Kristallbaufehler und Verunreinigungen gestört. Diese Gitterfehler bestimmen die mechanischen, elektronischen und optischen Eigenschaften der kondensierten Materie maßgeblich, so daß der Festkörper in den meisten Fällen erst durch den gezielten Einbau von Fehlern zum Werkstoff wird. Ein prominentes Beispiel dafür ist der pn-Übergang im Halbleiter, der mittels Dotierung realisiert wird. Auch metallische Werkstoffe erhalten ihre industriell wichtigen Eigenschaften wie Härte und Zähigkeit erst durch das Zulegieren anderer Elemente. So wird Eisen durch Hinzufügen geringer Mengen von Kohlenstoff zum Stahl, und das im reinen Zustand sehr weiche Aluminium erhält seine Festigkeit durch Beimischung von Cu, Mg, Si und weiterer Elemente. Außer durch chemische Verunreinigungen werden die Eigenschaften der Werkstoffe erheblich durch geometrische Fehler im Kristallgitter bestimmt. So kann z.B. ein und derselbe Werkstoff, je nach Versetzungskonzentration, weich und duktil oder hart und zäh sein. Ein bekanntes Beispiel dafür ist Schmiedeeisen, das im weichgeglühten Zustand biegsam, im geschmiedeten Zustand hart und widerstandsfähig ist.

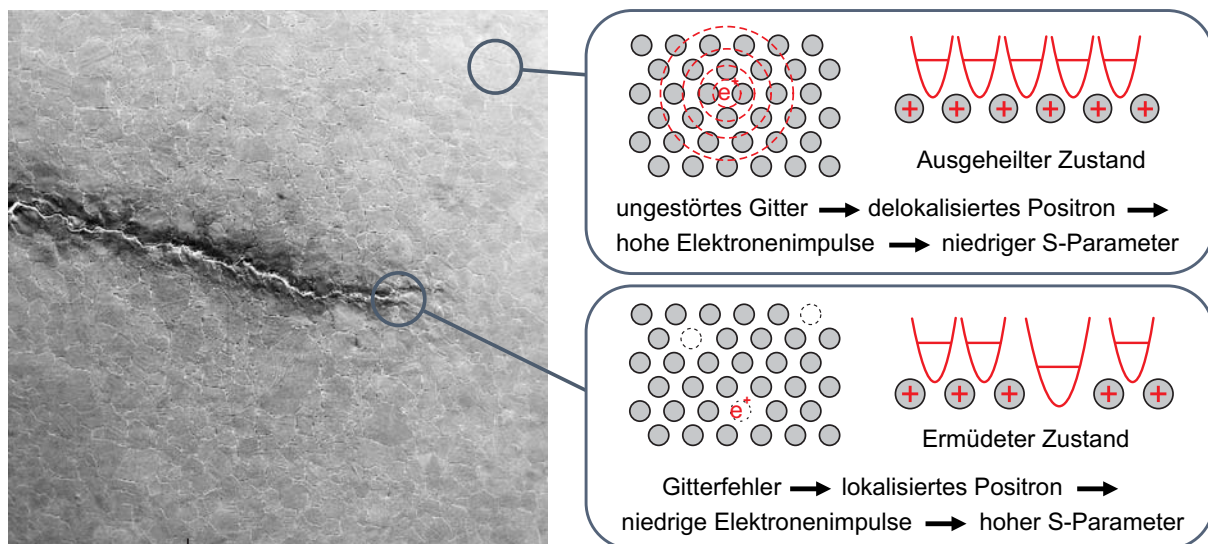
Im Allgemeinen befindet sich ein Werkstoff in einem, oft metastabilen, Nichtgleichgewichtszustand, der sich mit der Zeit diffusionsbasiert ändert. Ausscheidungsgehärtete Aluminiumlegierungen erreichen den Zustand maximaler Härte erst nach einer Auslagerungszeit von mehreren Tagen. In dieser Zeit lagern sich die anfänglich auf atomarer Skala fein verteilten Legierungselemente über einen leerstellengetriebenen Diffusionsprozeß zu nanometergroßen Ausscheidungen zusammen, die dann die mechanischen Eigenschaften über die Behinderung der Versetzungsbewegung bestimmen.

Zur Untersuchung dieser Phänomene auf der atomaren Skala wäre eine zerstörungsfreie und effektive Fehlstellensonde mit breiter Anwendung wünschenswert, die nicht nur geometrische Kristallbaufehler, wie z.B. Versetzungen, Sprünge auf der Versetzungslinie (Jogs), oder Leerstellen nachweisen kann, sondern auch auf Fremdatome im Gitter sensitiv ist. Die Kristallplastizität ist in diesem Zusammenhang ein ideales Verständnisbeispiel, da hierbei sowohl geometrische Defekte als auch die Legierungschemie eine Rolle spielen.

Die Plastizität von Metallen und Legierungen wird durch die Bewegung und Multiplikation von Versetzungen bestimmt. Im Gegensatz zu perfekten Silizium-Einkristallen sind in technischen metallischen Legierungen immer Versetzungen vorhanden. Die Versetzungsdichte variiert dabei um mehrere Größenordnungen vom gut ausgeheilten bis zum stark deformierten Zustand. Ausscheidungen einer anderen Phase, aber auch Versetzungen auf anderen Gleitsystemen (Waldversetzungen) bilden Hindernisse für die Versetzungsbewegung. Beim Passieren

solcher Hindernisse werden weitere Versetzungen (Orowan-Prozeß, Frank-Read-Quelle), aber auch Punktdefekte (Leerstellen und Zwischengitteratome) erzeugt. Bei Schneidvorgängen zwischen Versetzungen werden diese gezwungen, auf ein anderes Gleitsystem zu wechseln (Klettern), was nur unter Emission von Punktdefekten möglich ist. Ein weiterer sehr effektiver Mechanismus zur Erzeugung von Punktdefekten ist das Jog-Dragging: Das Hinterherziehen unbeweglicher Sprünge (Jogs) der Versetzungslinie aus der Gleitebene hinaus, bei der Bewegung von Schraubenversetzungen. Durch diese Prozesse ist ein Anstieg der Versetzungsdichte immer von der Erzeugung von Punktdefekten begleitet.

Der direkte experimentelle Nachweis von Versetzungen ist im Transmissions-Elektronenmikroskop (TEM) möglich, erfordert aber eine aufwendige und zerstörende Probenpräparation. Es können außerdem nur kleine repräsentative Bereiche untersucht werden. Möchte man Informationen über den plastischen Zustand in bestimmten Stadien eines Zugversuchs, oder während der Ermüdung eines Bauteils erhalten, ist eine zerstörungsfreie Meßmethode nötig, die den Probenzustand nicht beeinflusst und auch während eines Versuchs (in-situ) Meßdaten liefert.



**Abbildung 1.1:** Prinzip der Materialuntersuchung mit Positronen am Beispiel eines Ermüdungsrisse in einem austenitischen Stahl. Im ausgeheilten Gitter (rechts oben) befindet sich das Positron delokalisiert im Zwischengitter: Seine Wahrscheinlichkeit, mit einem kernnahen Elektron mit hohem Impuls zu zerstrahlen, ist hoch, was in einem niedrigen S-Parameter resultiert. Der S-Parameter beschreibt die Kurvenform der Annihilationslinie. Im Bereich der Rissspitze (rechts unten) wird das Positron von einer Leerstelle eingefangen: Die Wahrscheinlichkeit, mit einem äußeren Valenzelektron zu zerstrahlen, das einen vergleichsweise niedrigen Impuls besitzt, ist hoch, woraus sich ein hoher S-Parameter ergibt.

Mit Positronen als Sondenteilchen steht eine solche zerstörungsfreie Methode zur Untersuchung der Plastizität zur Verfügung, die eine sehr hohe Sensitivität für Gitterfehler, wie Leerstellen und Versetzungen besitzt. Dabei macht man sich drei wesentliche Eigenschaften des Positrons zunutze:

- 1.) Das Positron diffundiert als hochbewegliches Teilchen durch das Gitter und sucht sich somit die Gitterfehler selbst.
- 2.) Das Positron kann von Gitterfehlern eingefangen werden, die das Kristallgitter aufweiten, und damit ein offenes Volumen erzeugen.
- 3.) Bei der Vernichtung mit einem Elektron sendet es Informationen über den Zerstrahlungsort mit der Annihilationsstrahlung zurück ins Labor.

Die physikalische Situation auf mikroskopischer Ebene sieht dabei folgendermaßen aus: als positiv geladenes Teilchen wird das Positron im Kristallgitter von den Atomrümpfen abgestoßen und hat seine höchste Aufenthaltswahrscheinlichkeit im Zwischengitter. Jegliches nicht positiv geladene offene Volumen bildet durch seine lokal erhöhte negative Ladung ein attraktives Potential für das Positron. Ist die Potentialtiefe groß, verglichen mit der kinetischen Energie des Positrons, wie es z.B. bei einer Leerstelle der Fall ist, spricht man von einer tiefen Falle, aus der das Positron während seiner Lebensdauer nicht mehr entkommen kann. Je nachdem, ob das Positron im ungestörten Zwischengitter oder in einer Positronenfalle (z.B. einer atomaren Leerstelle) zerstrahlt, sieht es eine unterschiedliche elektronische Umgebung, insbesondere eine unterschiedliche Elektronendichte und Elektronenimpulsverteilung. Der longitudinale Anteil des Elektronenimpulses trägt zur Gesamtenergie des annihilierenden Elektron-Positron Paares bei, und wird im Laborsystem als Dopplerverschiebung der Annihilationsstrahlung bei 511 keV nachgewiesen. Aus der Dopplerkurve läßt sich ein einfacher Zahlenwert destillieren, der S-Parameter, der die von der Dopplerverschiebung verursachte Verbreiterung der 511 keV Linie quantifiziert. Ein hoher S-Parameter steht dabei für eine hohe Konzentration an Gitterdefekten.

Versetzungen bewirken nur eine geringe Aufweitung des Kristallgitters, und damit eine bei Raumtemperatur flache Falle, aus der das Positron eine endliche Entweichwahrscheinlichkeit besitzt. Da aber die Konzentration von Punktdefekten, speziell von Leerstellen und Jogs, mit der Versetzungsdichte ansteigt, kann der S-Parameter als Maß für die Versetzungsdichte und damit für die Plastizität interpretiert werden.

Durch die Entwicklung von Feinfokus-Positronenstrahlen, wie der Bonner Positronen-Mikrosonde (BPM), ist es möglich, laterale Strukturen in der Versetzungsdichte zweidimensional abzubilden. Momentan erreicht die BPM eine Ortsauflösung von einem Mikrometer, was den aktuellen Weltrekord darstellt. Mit Hilfe der Positronen-Mikroskopie können plastische Strukturen, wie z.B. die plastische Zone vor einem Ermüdungsriß, oder die bei der Zerspanung im Werkstück erzeugte Schädigung, in Form einer Falschfarben-Landkarte abgebildet werden.

Es ist allgemein bekannt, daß Werkstoffe unter wechselnder Belastung eine endliche Lebensdauer besitzen, auch wenn die Last unterhalb der jeweiligen Fließgrenze bleibt. Die Ursache dafür liegt in der Akkumulation von Gitterfehlern, wie Versetzungen, Leerstellen und Zwischengitteratomen, die zu einer, meist negativen, Veränderung der Materialeigenschaften führt. Eine Messung des Anstiegs der Fehlstellendichte mit Positronen während der Materialermüdung erlaubt eine Abschätzung der Restlebensdauer eines Werkstücks, falls die kritische Fehlstellendichte bekannt ist, bei der das Material versagt. Versuche an verschiedenen Legierungen haben gezeigt, daß sich die Restlebensdauer eines Werkstücks aus Messungen während des ersten Prozents seiner Lebensdauer zuverlässig vorhersagen läßt.

Bei den hier untersuchten Werkstoffen wurde eine einfache Proportionalität zwischen dem Anstieg des S-Parameters und dem Logarithmus der Lastwechselzahl gefunden. Es ist aber unwahrscheinlich, daß dieses rein empirische Resultat allgemein auf andere Werkstoffe übertragen werden kann. Daher ist ein Modell wünschenswert, das den Verlauf des S-Parameters mit der Lastwechselzahl aus den Materialparametern und der Probengeometrie berechnet. Momentan befindet sich ein granulares Modell in der Entwicklung, das die polykristalline Struktur einer Legierung berücksichtigt. Erste Rechnungen an einfachen Systemen zeigen bereits gute Ergebnisse.

Die Doppler-Verbreiterung der Annihilationsstrahlung bildet die elementspezifische Elektronenimpulsdichteverteilung am Zerstrahlungsort ab. Aus einem Doppler-Spektrum kann also

nicht nur Information über die Konzentration der Gitterfehler gewonnen werden, sondern auch über die chemische Umgebung einer Positronenfalle. Dieser chemische Fingerprint ist besonders deutlich bei Zerstrahlungsereignissen mit Elektronen aus kernnahen Orbitalen, die hohe Impulse besitzen. Auf Grund der statistischen Seltenheit solcher Ereignisse sind sie im Spektrum von einem um bis zu drei Größenordnungen höheren Untergrund überdeckt.

Mittels Koinzidenzspektroskopie (CDBS), bei der beide Annihilationsgammas gemessen werden, oder einer mathematischen Methode zur Beschreibung des Untergrundes (High Momentum Analysis, HMA) können diese Ereignisse jedoch aus dem Spektrum herausgefiltert werden. Über den chemischen Fingerprint können z.B. Leerstellen-Fremdatom-Komplexe oder nanoskalige Ausscheidungen in Legierungen identifiziert werden.

Durch die immerzu steigende Leistung aktueller Rechner ist es inzwischen möglich, Dopplerspektren bestimmter atomarer Konfigurationen quantenmechanisch mit ab-initio Codes zu berechnen. Die Identifizierung der tatsächlichen Konfiguration einer Ausscheidung erfolgt dann über einen Vergleich der gemessenen Spektren mit den numerisch berechneten Daten einer Reihe von angenommenen atomaren Anordnungen.



# Kapitel 2

## Positronen als Fehlstellensonden

Bereits 1942 entdeckten Behringer und Montgomery im Winkel-Korrelationsexperiment eine Signatur in der Annihilationsstrahlung von Elektron und Positron, die sie auf den Beitrag des Elektronenimpulses zum Gesamtimpuls des zerstrahlenden Paares zurückführten [1]. In den 1960er Jahren stellte sich heraus, daß sich die Existenz von Leerstellen im Metall signifikant auf die Zerstrahlungsparameter des Positrons auswirkt. So konnten MacKenzie et al. die Temperaturabhängigkeit der Gleichgewichts-Leerstellenkonzentration niedrigschmelzender Metalle in der Winkelkorrelation [2] und in der Positronen-Lebensdauer nachweisen [3]. 1964 beschrieben Dektyar et al. erstmals den Einfluß plastischer Deformation auf die Positronenstrahlung am Beispiel von Nickel und einer Nickellegierung [4]. Dieser Effekt wurde kurz darauf als Einfang des Positrons in das von Versetzungen und Leerstellen gebildete offene Volumen im Gitter gedeutet [5,6]. 1969 wiesen Grosskreutz et al. die Materialermüdung am Beispiel von Aluminium und Kupfer als Änderung in der Positronen-Lebensdauer nach [7]. Eine gute Zusammenfassung dieser frühen Arbeiten bieten die Übersichtsartikel [8-13]. Seit den 1970er Jahren gilt die Positronen-Annihilations-Spektroskopie (PAS) als eine Standardmethode zur Bestimmung der Leerstellenbildungs-Enthalpie und der Leerstellenwanderungs-Enthalpie in Metallen (siehe Landolt-Börnstein Band 25/III [14] und Zitate darin), wobei die PAS im Falle hochschmelzender Metalle [15] oder hochdotierten Halbleiter [16] die einzige Nachweismethode für Leerstellen darstellt.

Für die Untersuchung von Defekten im Festkörper ist die positive Ladung des Positrons essentiell, da es dadurch von den Kernen im Gitter abgestoßen wird. Im idealen periodischen Gitter liegt es in einem delokalisierten Bloch-Zustand vor [17,18], während es an einem Defekt mit vergrößerter Gitterkonstante lokalisieren kann, soweit in ihm die Dichte positiver Ladung geringer ist als im umgebenden Gitter. In Metallen, in denen Fehlstellen prinzipiell ungeladen sind, bildet jedes offene Volumen somit ein attraktives Potential für Positronen. Die physikalischen Aussagen der PAS basieren auf der Tatsache, daß das Positron in solche Gitterfehler eingefangen werden kann und daß sich sowohl die Elektronendichte als auch die Elektronenimpulsverteilung in einer solchen Positronenfalle von der des idealen Gitters unterscheiden. Als hochbewegliches Sondenteilchen sieht das Positron während seiner Lebensdauer  $10^6$  bis  $10^7$  atomare Positionen. Daraus resultiert die außerordentlich hohe Empfindlichkeit des Positrons auf Gitterdefekte in geringsten Konzentrationen (z.B. Leerstellen:  $c_{\text{vac}} \leq 10^{-6}$ /Atom). Aufgrund seiner Eigenschaften erweist sich die PAS als nützliche experimentelle Methode in der zerstörungsfreien Materialuntersuchung und zum Nachweis der Plastizität in Metallen und Halbleitern [19,20]. Seit einigen Jahren etabliert sich die PAS auch zunehmend im Bereich der Ingenieurwissenschaften [21 - 23].

## 2.1 Positronenquellen

In der Natur wurden Positronen erstmals in der Höhenstrahlung experimentell nachgewiesen [24], wo sie durch Paarbildung in elektromagnetischen Schauern sowie durch den Zerfall solarer Myonen entstehen. Künstlich können Positronen über die Konversion hochenergetischer Gammastrahlung durch Paarbildung oder den Zerfall protonenreicher Kerne erzeugt werden, die bei der Bestrahlung geeigneter Targets mit beschleunigten geladenen Teilchen (p, d,  $\alpha$ , ...) entstehen.

Die maximale Stärke langlebiger Positronenemitter im Labormaßstab ist grundsätzlich auf einige 10 mCi sowohl durch den Aufwand an Abschirmung als auch durch den Preis der Isotope beschränkt. Sehr starke Quellen verlieren darüber hinaus einen beträchtlichen Anteil an Positronen durch Selbstabsorption im größtenteils inaktiven Quellmaterial. Mit in-situ erzeugten kurzlebigen Quellen oder der Erzeugung von Positronen über die Paarbildung kann dieser Nachteil überwunden werden. Jedoch ist dies nur im Rahmen von Großforschungseinrichtungen (Forschungsreaktoren, Beschleuniger) möglich.

### 2.1.1 Langlebige $\beta^+$ -Strahler

Im Labormaßstab werden üblicherweise radioaktive Isotope als Positronenemitter eingesetzt. In Tabelle I sind einige der gängigeren Präparate aufgeführt (nach [25, 26]). Das bei weitem am häufigsten verwendete Isotop ist  $^{22}\text{Na}$ , da es kommerziell als Lösung ( $^{22}\text{NaCl}$ ,  $^{22}\text{Na}_2\text{CO}_3$ ) erhältlich ist und seine Eigenschaften nahezu ideal für Positronen-Lebensdauermessungen sind: Der  $\beta$ -Zerfall des  $^{22}\text{Na}$  führt zu einem angeregten Zustand von  $^{22}\text{Ne}$  ( $J_p = 2+$ ), der sich über die Abgabe eines prompten Gammas von 1275 keV in den Grundzustand abregt. Dieses kann – auch bei geringer Energieauflösung der Detektoren – gut von der Vernichtungsstrahlung separiert werden und wird in der Lebensdauerspektroskopie als Start-Signal verwendet. Weitere Vorteile von  $^{22}\text{Na}$  liegen in der Endpunktsenergie des  $\beta$ -Spektrums bei 540 keV, was zu einer Eindringtiefe der Positronen zwischen 10 – 100  $\mu\text{m}$  führt, und in der Halbwertszeit von 2.6 Jahren, die den Aufwand für Quellpräparation und -wechsel in moderaten Grenzen hält.

**Tabelle I:** Eigenschaften einiger Positronenemitter für den Laboreinsatz. <sup>(LT)</sup> Für Lebensdauermessungen geeignet; <sup>(DS)</sup> Für Doppler-Messungen geeignet [27].

Isotop	$\tau_{1/2}$	Endpunkts- Energie [MeV]	$e^+$ /Zerfall	$\gamma_{(E>511\text{keV})}/e^+$ ( $E_\gamma$ [keV])
$^{22}\text{Na}$ <sup>(LT)</sup>	2.6y	0.545	0.9	1 (1275)
$^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ <sup>(DS)</sup>	271d	1.89	0.88	0.03 (1077)
$^{58}\text{Co}$ <sup>(LT)</sup>	71d	0.474	0.15	0.99 (811)
$^{48}\text{V}$ <sup>(LT)</sup>	16d	0.696	0.5	2 (1312, 983)
$^{64}\text{Cu}$ <sup>(DS)</sup>	12.7d	0.653	0.18	0.005 (1346)

Bei der Doppler-Spektroskopie stellt sich das prompt Gamma von  $^{22}\text{Na}$  jedoch als ungemein störend heraus. Compton-Streuereignisse der 1275 keV  $\gamma$ -Quanten führen zu einem deutlichen Untergrund im Bereich um 511 keV. Form und Intensität des Compton-Spektrums hängen dabei stark von der Geometrie des Aufbaus sowie weiterer Faktoren, z.B. der Abschirmung des Detektors, ab. Hier erweist sich  $^{68}\text{Ge}$  als vorteilhaft, da zu seinem  $\gamma$ -Spektrum nur ca. 3 % Ereignisse mit Energien höher als 511 keV (1077.4 keV) beitragen [26,28].

$^{68}\text{Ge}$  erzeugt Positronen über einen Mutter-Tochter-Prozeß:  $^{68}\text{Ge}$  zerfällt mit einer brauchbaren Halbwertszeit zu  $^{68}\text{Ga}$  (100% EC,  $\tau_{1/2} = 271$  d), das wiederum über die Emission eines Positrons zu  $^{68}\text{Zn}$  zerfällt (90%  $\beta^+$ ,  $\tau_{1/2} = 68.4$  m). Bei einer Endpunktenergie des  $\beta$ -Spektrums von 1.9 MeV werden mittlere Eindringtiefen bis zu 800  $\mu\text{m}$  erreicht.

Nachteilig an  $^{68}\text{Ge}$  ist seine schlechte kommerzielle Erhältlichkeit und die aufwendige Chemie der Standard-Verbindung  $^{68}\text{GeCl}_4$ , die bei Normalbedingungen gasförmig ist.  $^{68}\text{Ge}$  läßt sich aber auf einfache Weise aus natürlichem Gallium über eine (d, 3n) Reaktion mit beschleunigten Deuteronen herstellen [29]. Diese Reaktion hat ihre Schwelle bei 14.1 MeV und der maximale Wirkungsquerschnitt von 550 mbarn wird bei 13.5 MeV oberhalb der Schwelle erreicht [30]. Zusätzlich wird bei der Bestrahlung  $^{69}\text{Ge}$  mit dem dreifachen Wirkungsquerschnitt erzeugt [31], das aber mit einer Halbwertszeit von  $\tau_{1/2} = 39$  h abklingt.

Für den Einsatz im Labor ist eine Festkörperquelle wünschenswert. Als günstiges Ausgangsmaterial hat sich Galliumphosphid (GaP) herausgestellt, das als einkristalliner Wafer erhältlich ist. Die Reaktionsprodukte des Phosphors ( $^{31}\text{S}$ :  $\tau_{1/2} = 2.58\text{s}$ ,  $^{30}\text{S}$ :  $\tau_{1/2} = 2.18\text{s}$  [32]) können dabei aufgrund ihrer geringen Halbwertszeiten vernachlässigt werden. Nach der Bestrahlung und einer angemessenen Abklingzeit für das  $^{69}\text{Ge}$  liegt der Emitter in einer kontaminationssicheren Form vor, so daß keine Abdeckung der Quelle nötig ist. Weitere Details der Quellpräparation finden sich in [29].

Das Isotop  $^{58}\text{Co}$  wurde häufig als Quelle angewandt, wenn eine kurzzeitige hohe Intensität wichtiger war als die Langzeitstabilität des Gesamtaufbaus. Heutzutage hat  $^{58}\text{Co}$  gegenüber  $^{22}\text{Na}$  an Bedeutung verloren, da es außer der höheren Aktivität keine signifikanten Vorteile bietet. Zecca zufolge soll es auch nicht mehr im Handel sein [33]. Für die Details der Herstellung von  $^{58}\text{Co}$  und einen Vergleich mit  $^{22}\text{Na}$  siehe [34,35].

Eine Interessante Alternative zur Untersuchung von Titan-Legierungen, die in naher Zukunft technologisch wachsende Bedeutung bekommen, bietet  $^{48}\text{V}$ . Es läßt sich auf einfache Weise über eine (p,n) Reaktion direkt in der Probe aus natürlichem Titan am Zyklotron aktivieren ( $E_{\text{thresh}} = 4.9$  MeV,  $\sigma_{\text{max}} = 510$  mbarn [30]). Eine solche intrinsische Quelle bietet einige Vorteile: Erstens kann sie durch eine Bestrahlungsmaske genau positioniert und dimensioniert werden, zweitens ist sie kontaminationssicher und eröffnet damit die Möglichkeit von in-situ Experimenten auch in komplizierten und schlecht zugänglichen Geometrien, z.B. Ermüdungsversuche an einer Pleuelstange im laufenden Motor. Pleuelstangen aus der Titanlegierung TiAl6V4 sind im Rennsport Standard.

## 2.1.2 Kurzlebige $\beta^+$ -Strahler durch Aktivierung

Eine Vielzahl von kurzlebigen Emitttern ist durch Aktivierung mit beschleunigten Protonen, Deuteronen oder Heliumkernen herstellbar. Tabelle II gibt einen Überblick über einige in der Forschung genutzte Reaktionen. Auf diese Weise lassen sich sehr starke Quellen herstellen, deren Aktivität prinzipiell nur von Energie und Strom des Beschleunigers und der Kühlung am Target abhängt. Auf Grund der Halbwertszeiten im Bereich von Sekunden bis Mi-

nuten müssen die erzeugten Aktivitäten schnell auf Position vor einen Moderator gebracht werden. Dies geschieht z.B. an der Washington State University (WSU) mit einem Graphit-Target, das nach der Bestrahlung um  $180^\circ$  vor den Moderator gedreht wird (off-line) [36,37]. Eine andere Möglichkeit besteht in einem Aufbau mit fixiertem Target, in dem die Quelle während der Messung laufend aktiviert wird, was auch die Verwendung sehr kurzlebiger Isotope erlaubt (on-line) [38 - 41].

**Tabelle II:** Aktivierungsreaktionen kurzlebiger Isotope. Experimente: <sup>(a)</sup> AVF Zyklotron @ RIKEN, Nishina Center for Accelerator based Science, Japan [38,40,42,43,44]; <sup>(b)</sup> Washington State University, Pullman, USA [36,37]; <sup>(c)</sup> Sumitomo Heavy Industries, Tokyo, Japan [39,41].

Emitter	$\tau_{1/2}$	Endpunkts- Energie [MeV]	Reaktion	Experiment
$^{11}\text{C}$	20m	1.0	$^{14}\text{N}(\text{p},\alpha)$	AVF <sup>(a)</sup>
$^{13}\text{N}$	10m	1.2	$^{12}\text{C}(\text{d},\text{n})$	AVF <sup>(a)</sup> , WSU <sup>(b)</sup>
$^{15}\text{O}$	2.0s	1.7	$^{14}\text{N}(\text{d},\text{n})$	AVF <sup>(a)</sup>
$^{18}\text{F}$	110m	0.64	$^{18}\text{O}(\text{p},\text{n})$	AVF <sup>(a)</sup>
$^{19}\text{Ne}$	18s	2.22	$^{19}\text{F}(\text{p},\text{n})$	AVF <sup>(a)</sup>
$^{23}\text{Mg}$	12s	3.03	$^{23}\text{Na}(\text{p},\text{n})$	AVF <sup>(a)</sup>
$^{27}\text{Si}$	4.1s	3.9	$^{27}\text{Al}(\text{p},\text{n})$	AVF <sup>(a)</sup> , SHI <sup>(c)</sup>
$^{29}\text{P}$	4.2s	4.0	$^{28}\text{Si}(\text{d},\text{n})$	AVF <sup>(a)</sup>
$^{63}\text{Zn}$	38m	3.4	$^{63}\text{Cu}(\text{p},\text{n})$	AVF <sup>(a)</sup>

Mit einer Halbwertszeit von 110 m stellt  $^{18}\text{F}$  eine Ausnahme dar, da es genügend Zeit zur radiochemischen Weiterverarbeitung des Isotops nach der Bestrahlung bietet.  $^{18}\text{F}$  wird kommerziell als Marker für die Positronen-Emissions-Tomographie (PET) hergestellt, wobei Ionenaustauscher zum Abscheiden des Emitters verwendet werden. Die Gruppe am AVF/RIKEN scheidet  $^{18}\text{F}$  aus der wäßrigen Lösung auf einen Graphitträger ab und erreicht damit eine Isotopenausbeute bis zu 96% [42,44].

### 2.1.3 Konversion von $\gamma$ -Strahlung über Paarbildung

$\gamma$ -Strahlung mit Energien oberhalb der doppelten Ruhemasse des Elektrons (1022 keV) wechselwirkt mit dem starken elektromagnetischen Feld der Atomkerne eines Targets und kann so Elektron-Positron Paare erzeugen. Besitzt das ursprüngliche Photon eine Energie weit oberhalb der Produktionsschwelle kann sich ein elektromagnetischer Schauer ausbilden, in dem eine ganze Anzahl Paare erzeugt werden. Dies macht den Prozeß sehr effektiv. Hochenergetische Photonen für Positronenquellen werden in der Anwendung über drei physikalische Effekte erzeugt: (1) Die Erzeugung von Bremsstrahlung über den Beschuß von Metallen mit hoher Kernladungszahl mit schnellen Elektronen an einem Linearbeschleuniger (LINAC); (2) Direkt aus der Kernspaltung an einem Reaktor; (3) Über eine (n, $\gamma$ ) Reaktion durch Neutroneneinfang an einem geeignetem Target ( $^{113}\text{Cd}$ ). Die Paarbildung findet entweder im Target selbst oder einem externen Konverter statt, wobei Positronen und Elektronen im Weiteren

elektromagnetisch getrennt werden. Es wurde auch Synchrotronstrahlung an Speicherringen als primäre Photonenquelle vorgeschlagen [45,46], jedoch nie realisiert.

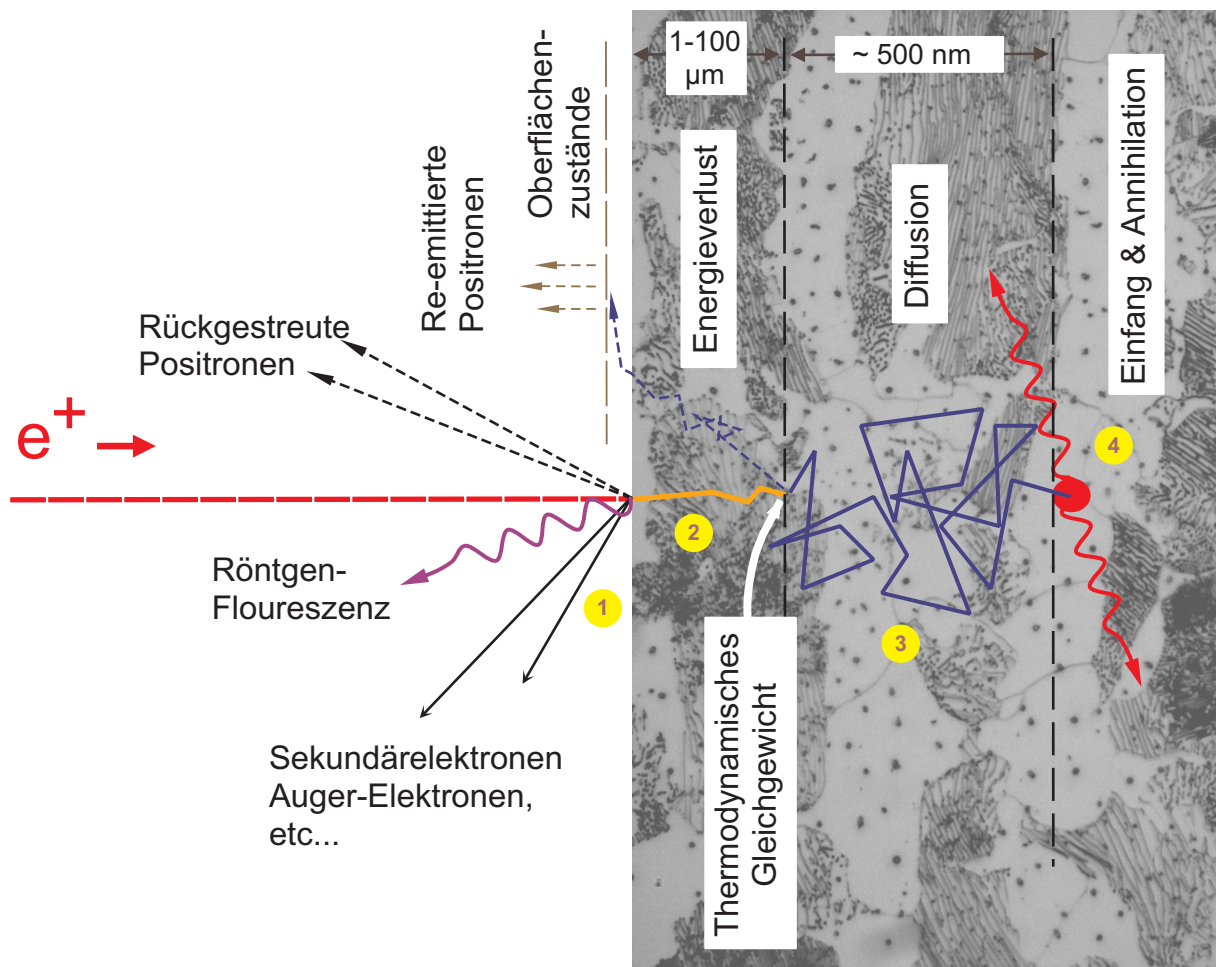
## Bremsstrahlung

Positronen durch Konversion von Bremsstrahlung zu erzeugen, gehört zu den Standardtechniken in der Physik der Speicherringe. Dabei wird ein hochenergetischer Elektronenstrahl ( $10^7 - 10^9$  eV) auf ein gekühltes Target mit hoher Kernladungszahl und Dichte (Ta, W, Pt) geschossen. Die dabei vom Elektron erzeugte Bremsstrahlung mit Energien bis zu einigen 10 MeV wird entweder im Target selbst oder in einem externen Konverter in Elektron-Positron Paare umgewandelt, wobei Effizienzen bis zu 0.006 Positronen pro einfallendem Elektron gemessen wurden [47]. Bereits Ende der 1960er Jahren wurde ein Linearbeschleuniger (LINAC) zur Erzeugung langsamer Positronen eingesetzt [48]. Heute wird der LINAC von verschiedenen Großforschungseinrichtungen zur Erzeugung langsamer Positronen für die Materialforschung verwandt. Tabelle III zeigt die Eckdaten einiger Experimente.

**Tabelle III:** Einige Experimente, die einen LINAC zur Positronenerzeugung nutzen: <sup>(a)</sup> National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, Tsukuba, Japan [49,50]; <sup>(b)</sup> Argonne National Laboratory, Argonne, USA [47,51,52]; <sup>(c)</sup> ELBE Positron Source, Forschungszentrum Rossendorf [53,54]; <sup>(d)</sup> Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, USA [55], wurde Anfang 2000 eingestellt; <sup>(e)</sup> High Energy Research Organisation KEK, Tsukuba, Japan [56,57]; <sup>(f)</sup> Beijing Electron-Positron Collider, China [58,59]; <sup>(fast)</sup> Unmoderierte Positronen; <sup>(slow)</sup> Moderierte Positronen; <sup>(+)</sup> gemessen; <sup>(\*)</sup> projiziert.

e <sup>-</sup> Energie [MeV]	Pulsrate [Hz]	e <sup>-</sup> Strom/Puls [mA]	Max. e <sup>+</sup> /s	Experiment
70	100	0.004	$1 \times 10^8$ <sup>(fast,+)</sup>	ENL/AIST <sup>(a)</sup>
15	k.a.	0.2	$3 \times 10^7$ <sup>(slow,+)</sup>	ANL <sup>(b)</sup>
40	$1.3 \times 10^6$ <sup>(*)</sup>	1	$4.5 \times 10^{13}$ <sup>(fast,*)</sup>	EPOS/ELBE <sup>(c)</sup>
100	300	400	$3 \times 10^7$ <sup>(slow,*)</sup>	LLNL <sup>(d)</sup>
2000	50	48	$4 \times 10^6$ <sup>(slow,+)</sup>	KEK <sup>(e)</sup>
1300	12.5	800 <sup>(*)</sup>	$6 \times 10^5$ <sup>(slow,+)</sup>	BEPC <sup>(f)</sup>

LINAC-Quellen sind grundsätzlich gepulst, wobei sich, bei geeigneter Pulsform und Länge, die Pulsstruktur direkt zur Lebensdauerermessung verwenden läßt. Mit einem LINAC lassen sich hohe primäre (unmoderierte) Positronenflüsse bis zu  $1 \times 10^8$  Positronen pro Sekunde erreichen [49], was einer radioaktiven Quelle von  $\sim 2.5$  mCi Aktivität entspräche. Allerdings werden für die nahe Zukunft wesentlich höhere Flüsse projiziert [47,53].



**Abbildung 2.1:** Wechselwirkung von Positronen mit dem Festkörper. (1) Beim Auftreffen auf die Oberfläche verhält sich das Positron wie ein gewöhnliches geladenes Teilchen und löst eine Reihe von Sekundärprozessen aus; (2) Nach dem Eindringen in den Festkörper gibt das Positron innerhalb kurzer Zeit seine kinetische Energie durch Stoßprozesse ab; (3) Während seiner Lebensdauer diffundiert das Positron durch das Gitter; (4) Das Positron wird entweder in einer Fehlstelle eingefangen und annihiliert dort oder im Zwischengitter.

## Kernspaltung

Auch die bei der Kernspaltung direkt entstehenden Spaltungs-Gammas lassen sich als primäre Photonenquelle für die Paarproduktion verwenden. Der High Intensity Positron Beam (POSH) am Forschungsreaktor HOR in Delft verwendet ein Array aus Wolframfolien direkt am Reaktorkern sowohl zur Paarbildung als auch zur Moderation der Positronen [60,61]. Im Anfangsstadium von POSH kam aber auch  $^{64}\text{Cu}$  als Positronenquelle zum Einsatz, das on-line im Reaktorkern über  $(n,\gamma)$  aus  $^{63}\text{Cu}$  aktiviert wurde [62]. Nach [61,62] erreicht POSH eine stabile Ausbeute von  $8 \times 10^7$  moderierten Positronen pro Sekunde.

## Neutroneneinfang

Bei der Erzeugung von Positronen aus thermischen Spaltneutronen macht man sich den enormen Einfangquerschnitt von 26000 barn der Reaktion  $^{113}\text{Cd}(n,\gamma)^{114}\text{Cd}$  zunutze. Im Mittel werden dabei 2.3 Photonen mit einer Energie größer 1.5 MeV pro Neutron abgegeben

[25,63]. Nach der Paarproduktion erreicht man insgesamt 0.66 Positronen pro thermischem Neutron [64]. Auf diesem hocheffektiven Prozeß basiert die Positronenquelle NEPOMUK am Forschungsreaktor FRM-II in Garching [65], die seit 2004 im Betrieb ist. Unter Verwendung von Platin als Konverter und Moderator werden moderierte Positronenflüsse von bis zu  $1 \times 10^8/s$  erreicht, die für eine Vielzahl von Experimenten zur Verfügung stehen [66].

## Intrinsische Quellen

Mit hochenergetischen Photonen lassen sich Positronen auch direkt innerhalb der Probe erzeugen. Da hochenergetische Gammas in Luft nur geringfügig aufstreuen und keine Positronen transportiert werden müssen, ist weder ein Vakuumaufbau noch eine Strahlführung nötig. Dadurch ist diese Methode nicht auf Festkörper beschränkt. Die Messung an flüssigen hochschmelzenden Metallen sollte ebenfalls möglich sein [67,68].

## 2.2 Wechselwirkung von Positronen mit Materie

Dringt ein Positron in Materie ein, verliert es seine gesamte kinetische Energie innerhalb eines Bruchteils seiner Lebensdauer und befindet sich danach im thermodynamischen Gleichgewicht mit dem Gitter. Nach der Thermalisation diffundiert das Positron durch den Festkörper, wobei seine Aufenthaltswahrscheinlichkeit im Zwischengitter maximal ist. Am Ende zerstrahlt es mit einem Elektron aus seiner Umgebung. Tabelle IV faßt die für die Wechselwirkung von Positronen mit Materie wesentlichen Zeitskalen zusammen. Die physikalischen Prozesse zwischen vom Auftreffen auf die Oberfläche bis zur Zerstrahlung mit einem Elektron sind in Abbildung 2.1 illustriert.

**Tabelle IV:** Zeitskalen des Positrons im Festkörper (Nach [13]). Referenzen: (a) [69], (b) [70], (c) [71], (d) [9], (e) [11], (f) [72].

	Zeitskala [s]	Ref.
Thermalisation (Fermi-Energie)	$\sim 10^{-13}$	(a)
Thermalisation ( $^{3/2} kT$ )	$\sim 3 \times 10^{-12}$	(b)
Einfang in Fehlstelle	$\sim \times 10^{-15}$	(c)
Lebensdauer des Positrons		
Zwischengitter	$1-3 \times 10^{-10}$	(d)
Fehlstelle	$2-4 \times 10^{-10}$	(d,e)
Oberflächenzustand	$4-6 \times 10^{-10}$	(f)

### 2.2.1 Oberflächeneffekte

Beim Auftreffen auf die Oberfläche verhält sich das Positron wie ein gewöhnliches geladenes Teilchen. So kommt es zum Einen zu Rückstreuprozessen und der Re-Emission von Positronen aus den oberflächennahen Lagen, wobei sich die Energiespektren beider Prozesse überlagern [73,74]. Zum Anderen finden einer Reihe von Sekundärprozessen statt, wie z. B. Rönt-

genfluoreszenzanregung und die Emission von Auger-Elektronen [75,76]. Diese Oberflächenprozesse können auch zur Materialuntersuchung herangezogen werden. So lassen sich Defektstrukturen in sehr dünnen Folien über die Intensitätsverteilung der auf der Folienrückseite re-emittierten Positronen mit mikroskopischer Auflösung beobachten. Die Bahnen der Positronen werden dazu elektromagnetisch – vergleichbar zu einem Transmissions-Elektronenmikroskop (TEM) – aufgeweitet und mit einem Flächendetektor abgebildet [77,78]. Die Auger-Spektroskopie mit Positronen (PAES) bei der ein Positron mit einem Elektron aus der K-Schale annihiliert und so die Auger-Anregung auslöst bietet, verglichen mit herkömmlicher AES, ein sehr untergrundarmes Spektrum. Im Gegensatz zur Anregung mit Elektronen wird keine kinetische Energie benötigt, um das Elektron aus der Schale zu entfernen. Es kann daher mit sehr niederenergetischen Positronen (10-40 eV) gearbeitet werden [79,80].

## 2.2.2 Energieverlust und Thermalisation

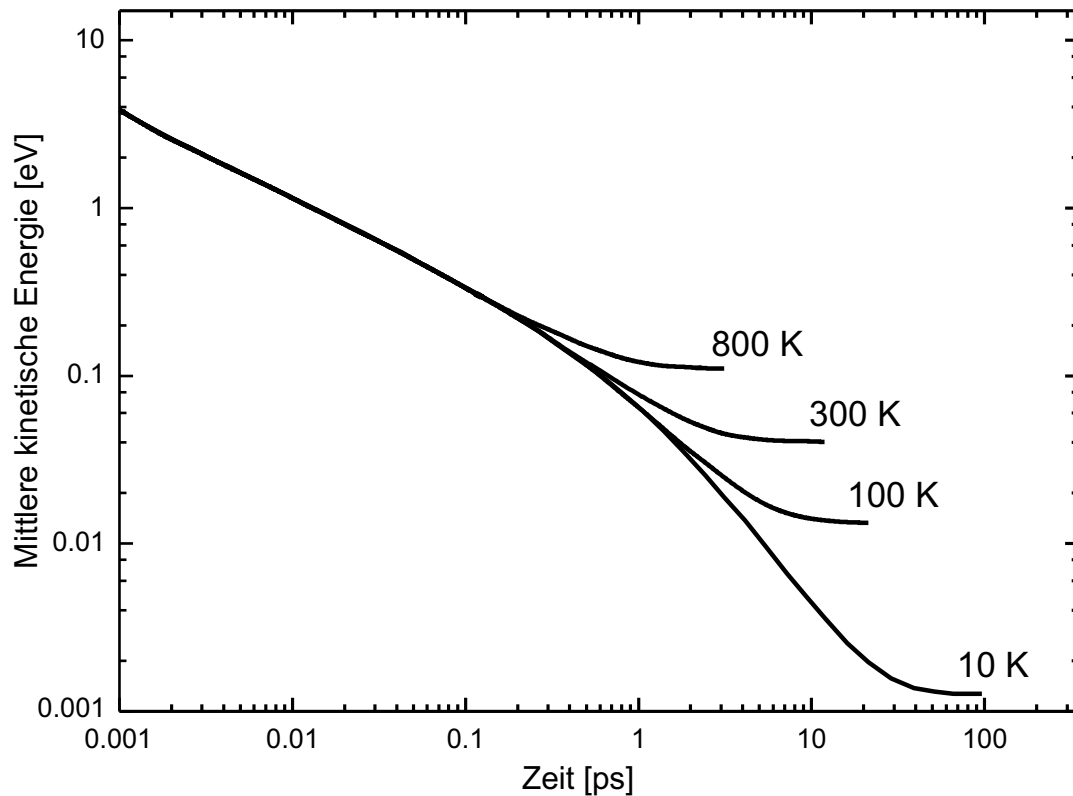
Beim Eindringen unter die Oberfläche gibt das Positron seine Energie über eine Reihe von inelastischen Stoßprozessen mit Elektronen sowie durch Phononanregung ab. Die Prozesse, die dabei eine Rolle spielen, sind ähnlich wie beim Elektron, jedoch mit einigen wichtigen Unterschieden, die sich aus der umgekehrten Ladung ergeben. So ist der Wirkungsquerschnitt für Bremsstrahlung durch die Abstoßung vom Kern geringer als der des Elektrons [81], während die inelastische Streuung an Elektronen effektiver ist [82]. Für weitere Details siehe auch [13]. Tabelle V zeigt eine Übersicht über die wichtigsten Prozesse. Nach der Thermalisation befindet sich das Positron im Gleichgewicht mit dem Gitter und seine kinetische Energie folgt einer Maxwell-Boltzmann-Verteilung [83] und liegt im Mittel bei  $\frac{3}{2} kT$  (entspricht  $\sim 40$  meV bei Raumtemperatur). Dies ist möglich, da sich unter Laborbedingungen nie mehr als ein Positron gleichzeitig in der Probe befindet. Es konnte experimentell belegt werden, daß der Anteil des Impulses des thermalisierten Positrons am Gesamtimpuls des zerstrahlenden Positron-Elektron-Paares verschwindend gering ist [84].

**Tabelle V:** Prozesse des Energieverlusts von Positronen in Materie.

Energieverlust	Energiebereich
Bremsstrahlung	$> 10^5$ eV
Inelastische Elektronenstreuung	$10^3 - 10^5$ eV
Anregung von Plasmonen	$1 - 10^3$ eV
Anregung von Elektron-Loch-Paaren	$\sim 1$ eV
Phononische Anregungen	$10^{-3} - 1$ eV

Die Geschwindigkeit des Energieverlusts hängt stark von der Temperatur des Festkörpers ab. Die Thermalisation auf Raumtemperatur findet innerhalb von  $\sim 3$  ps statt [85,86], bei 10 K dauert sie schon  $\sim 40$  ps, was einen beträchtlichen Teil der Positronen-Lebensdauer ausmacht. Abbildung 2.2 zeigt das Ergebnis von numerischen Rechnungen zur Thermalisation für verschiedene Temperaturen von Jossen et al. [87].

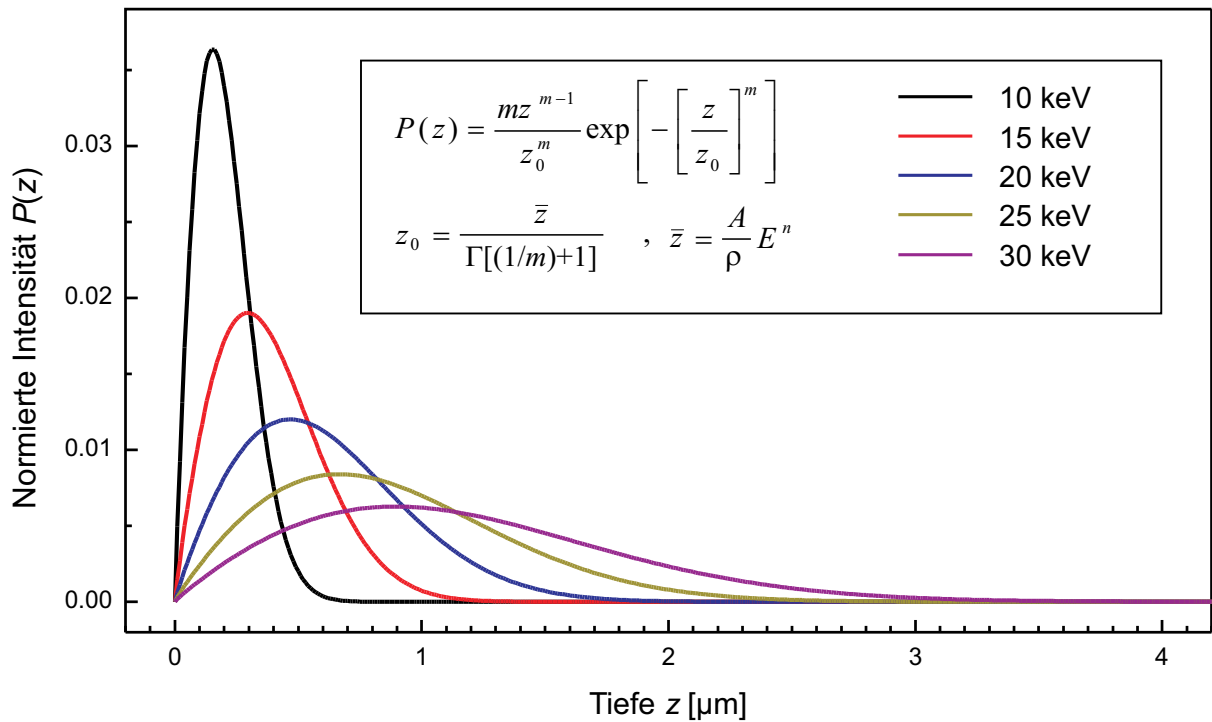




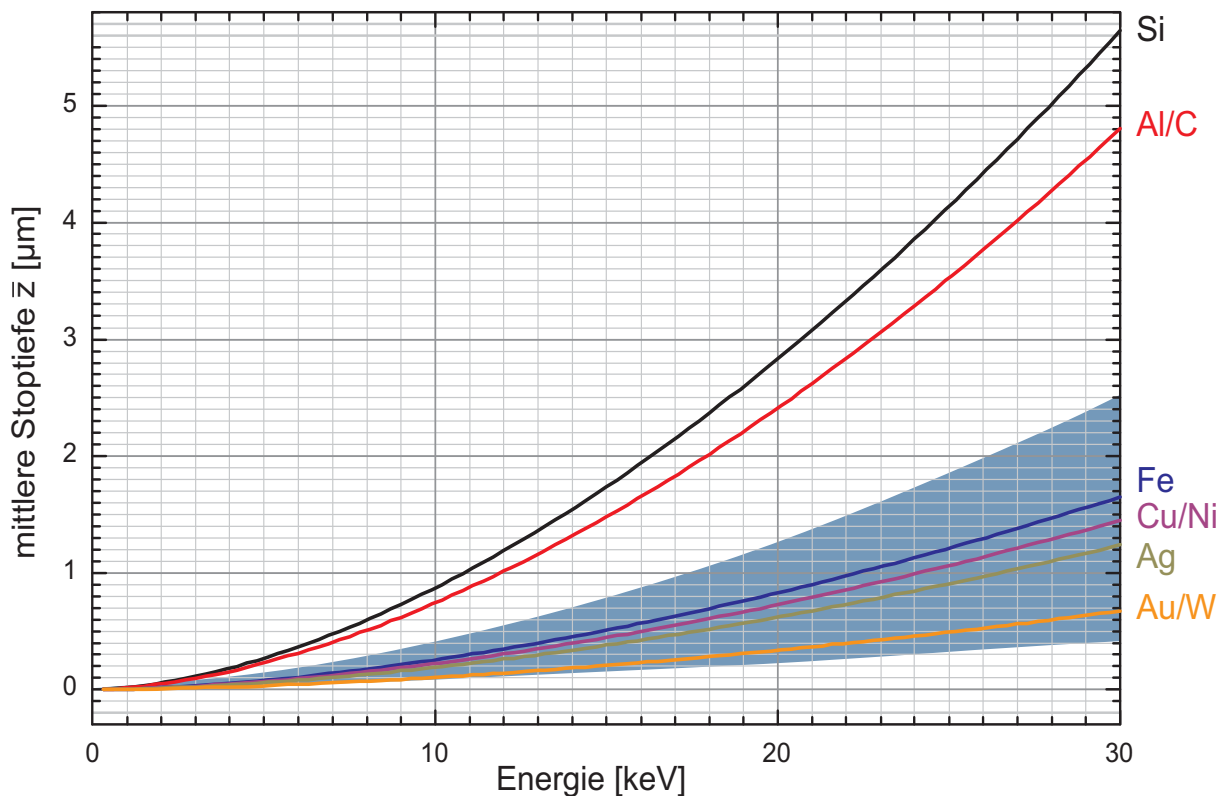
**Abbildung 2.2:** Mittlere kinetische Energie von Positronen nach dem Eindringen in Aluminium als Funktion der Zeit für verschiedene Temperaturen nach Rechnungen von Jenssen et al. [87]. Unter Normalbedingungen (300 K) wird das Gleichgewicht nach  $\sim 3$  ps erreicht.

### 2.2.3 Reichweite von Positronen in Materie

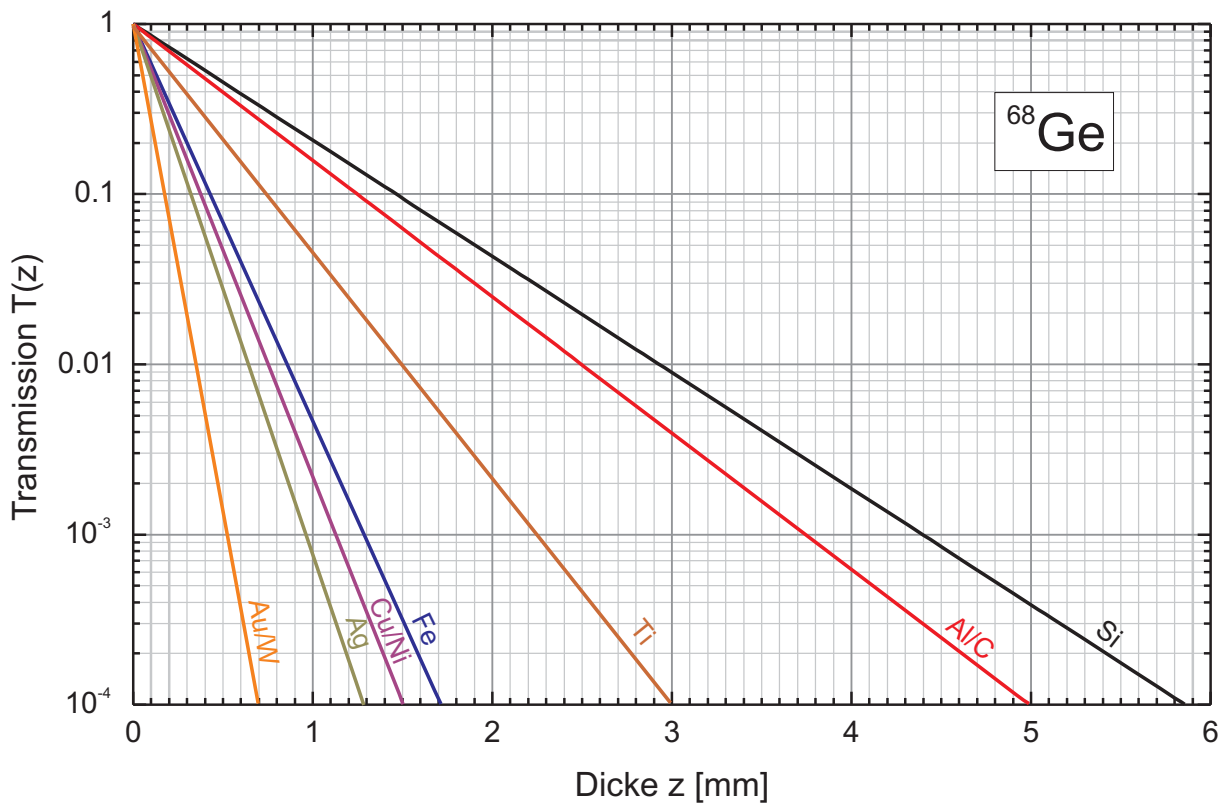
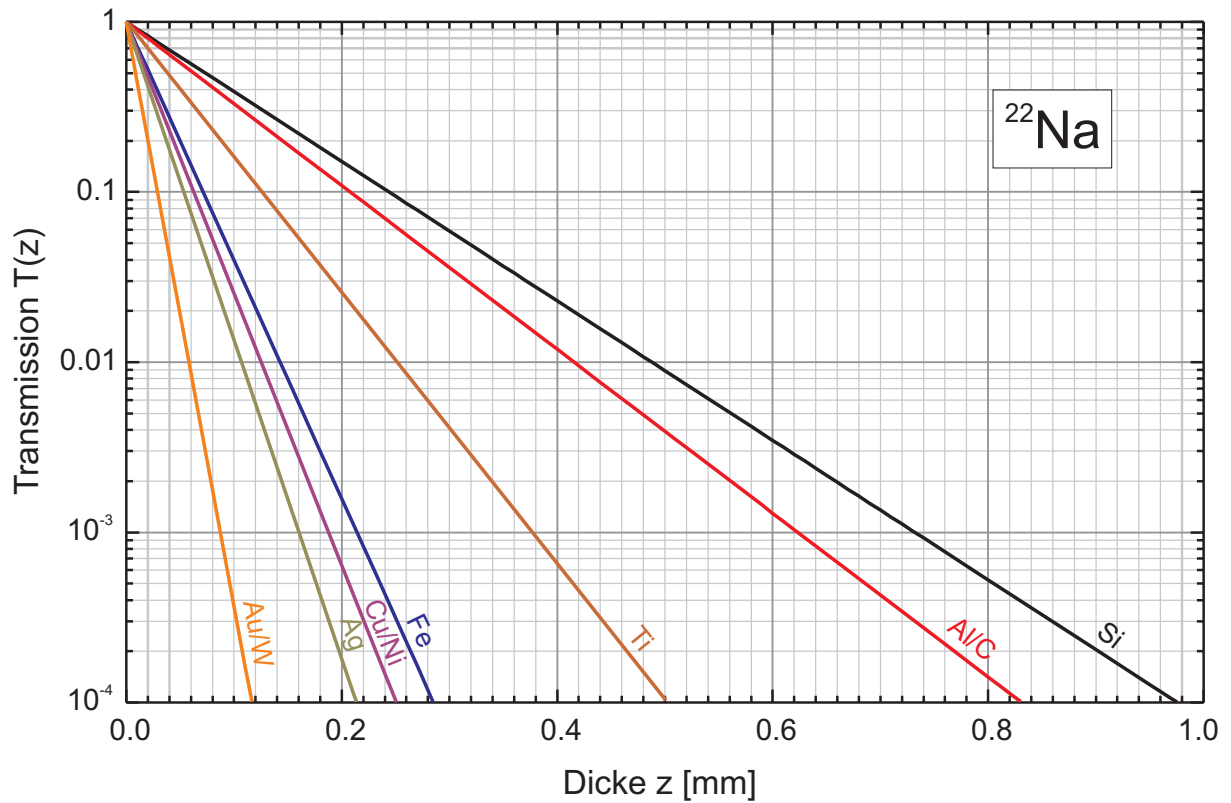
Das Implantationsprofil wird durch die Streuprozesse während der Thermalisation bestimmt und läßt sich numerisch für monoenergetische Positronen analog zu dem von Makhov [88] für Elektronen gefundenen Ansatz abschätzen [89 - 92]. Die Parameter  $n$ ,  $m$ ,  $A$  der Makhov-Verteilung müssen empirisch an das jeweilige Material angepaßt werden. Für eine tabellarische Übersicht der Parameter für einige Metalle siehe [93,94]. Für die Versuchsplanung ist Kenntnis der mittleren Eindringtiefe und der Transmission unabdingbar. Abbildung 2.3 zeigt das Implantationsprofil für Eisen und Eisenwerkstoffe bei verschiedenen Energien monoenergetischer langsamer Positronen. Mit steigender Energie dringen die Positronen tiefer ein und die Verteilung wird unschärfer, was bedeutet, daß die Positronen über ein größeres Volumen mitteln. Bei sinkender Energie steigt die Wahrscheinlichkeit zur Rückdiffusion allerdings erheblich an, so daß dem Annihilationssignal Ereignisse aus oberflächennahen Zuständen beigemischt sind. Gerade bei der Untersuchung der Verteilung plastischer Deformation ist dies unerwünscht. Energieabhängige Untersuchungen an Eisenwerkstoffen haben gezeigt, das sich die Zerstrahlungsparameter oberhalb von 20 keV nicht mehr wesentlich ändern (siehe z.B. [95]). Hinzu kommt die Gefahr der Kontamination der Meßdaten durch Annihilation an Verunreinigungen auf der Oberfläche oder an Oxidschichten. Für Plastizitätsmessungen sollte die Positronenenergie also grundsätzlich oberhalb von 25 keV liegen.



**Abbildung 2.3:** Intensitätsverteilung für monoenergetische Positronen in Eisen ( $\rho = 7.86 \text{ g/cm}^3$ ) für einige relevante Energien auf Fläche 1 normiert nach [13,93] (Makhov-Profil:  $n = 1.6$ ,  $m = 1.9$ ,  $A = 4.0 \text{ } \mu\text{gcm}^{-2}\text{keV}^{-n}$ ).



**Abbildung 2.4:** Energieabhängige mittlere Eindringtiefe für monoenergetische Positronen in einigen Elementen nach [13,93]. Sie kann nur als Anhaltspunkt für die Tiefe gelten, aus der die Information gewonnen wird, da die Eindringtiefe eine breite Verteilung aufweist. Am Beispiel Fe ist die Halbwertsbreite dieser Verteilung hellblau hinterlegt



**Abbildung 2.5:** Transmission von Positronen aus dem  $\beta^+$ -Spektrum verschiedener Positronenemitter für ausgewählte Elemente. oben:  $^{22}\text{Na}$ , unten  $^{68}\text{Ge}$ . Bei den meisten Experimenten ist es wichtig, daß mindestens 99.9% der Positronen in der Probe zerstrahlen. Um die dafür nötige Probendicke zu ermitteln, ist ein solches Diagramm sehr hilfreich.

Abbildung 2.4 zeigt die mittlere Eindringtiefe  $\bar{z}$  monoenergetischer Positronen für einige Elemente bis 30 keV. Für  $m = 1.9$  liegt das Maximum der Verteilung bei  $0.76 \bar{z}$ .  $\bar{z}$  ist reziprok von der Dichte abhängig und steigt im wesentlichen mit  $E^n$ , wobei  $n$  für viele Materialien in der Nähe von 1.6 liegt. Die mittlere Eindringtiefe ist nur als Anhaltspunkt für den Endpunkt des Energieverlusts zu verstehen, da die Makhov-Verteilung gerade bei Energien oberhalb 10 keV um einige Mikrometer verschmiert ist. Zur Verdeutlichung ist der Bereich, der oberhalb des halben Maximums liegt, für Eisen in Abbildung 2.4 hellblau hinterlegt.

Das Implantationsprofil von Positronen aus dem  $\beta^+$ -Spektrum folgt näherungsweise einem Exponentialgesetz [93]. Die mittlere Eindringtiefe liegt je nach Material und Isotop im Bereich von einigen  $10 \mu\text{m} - 1 \text{mm}$ .

Bei Experimenten mit  $\beta^+$ -Strahlern ist es wichtig, daß die Daten nicht durch Annihilationseignisse außerhalb der Probe verunreinigt werden. Die Hauptfehlerquelle liegt hier aber nicht in der oberflächennahen Annihilation, sondern bei Positronen, die die Probe durchdringen. Zwei recht nützliche Diagramme zur Abschätzung der minimalen Probendicke finden sich in Abbildung 2.5 für die Emittoren  $^{22}\text{Na}$  und  $^{68}\text{Ge}$ .

## 2.2.4 Diffusion

Nach dem Erreichen des thermischen Gleichgewichts diffundiert das Positron durch das Gitter, wobei seine Aufenthaltswahrscheinlichkeit im Zwischengitter am größten ist. Im ungestörten Gitter kann es als Bloch-artiges Wellenpaket interpretiert werden, das über den Bereich seiner deBroglie-Wellenlänge ( $\lambda_{e^+} = 5.2 \text{ nm} (300/T)^{1/2}$ ) delokalisiert ist. Bei Raumtemperatur ist  $\lambda_{e^+} = 5.2 \text{ nm}$ , was in der Größenordnung von 20 Gitterkonstanten liegt [13]. Ein thermalisiertes Positron sieht also  $\sim 10^3$  atomare Positionen gleichzeitig.

Klassisch entspricht die Diffusionsbewegung des Positrons oberhalb von  $\sim 10 \text{ K}$  einem dreidimensionalen Random-Walk mit einer isotropen Streuung an Phononen [93,96]. Die Diffusionskonstante in Metallen liegt bei Raumtemperatur (RT) in der Größenordnung von  $10^{-4} \text{ m}^2/\text{s}$  [97], die mittlere freie Weglänge bei  $\sim 5 \text{ nm}$  und die Anzahl der Streueignisse bis zur Zerstrahlung in der Größenordnung von  $10^3$ . Daraus ergibt sich eine mittlere Diffusionsweglänge für defektarme Metalle von  $200 - 500 \text{ nm}$ .

Aus der hohen Beweglichkeit des Positrons erklärt sich seine enorme Empfindlichkeit für Gitterfehler. Während seiner Lebensdauer sieht ein einzelnes Positron  $10^6 - 10^7$  Gitterpositionen. Die untere Ansprechschwelle für leerstellenartige Defekte liegt bei  $\sim 10^{-6}/\text{Atom}$  [98], während die obere Ansprechschwelle dadurch gegeben ist, daß die Wahrscheinlichkeit auf einen Defekt zu treffen sich 100% nähert [99]. Sie liegt in der Größenordnung von  $5 \times 10^{-4}/\text{Atom}$  für Einfachleerstellen [98,100].

## 2.2.5 Einfang in Defekte

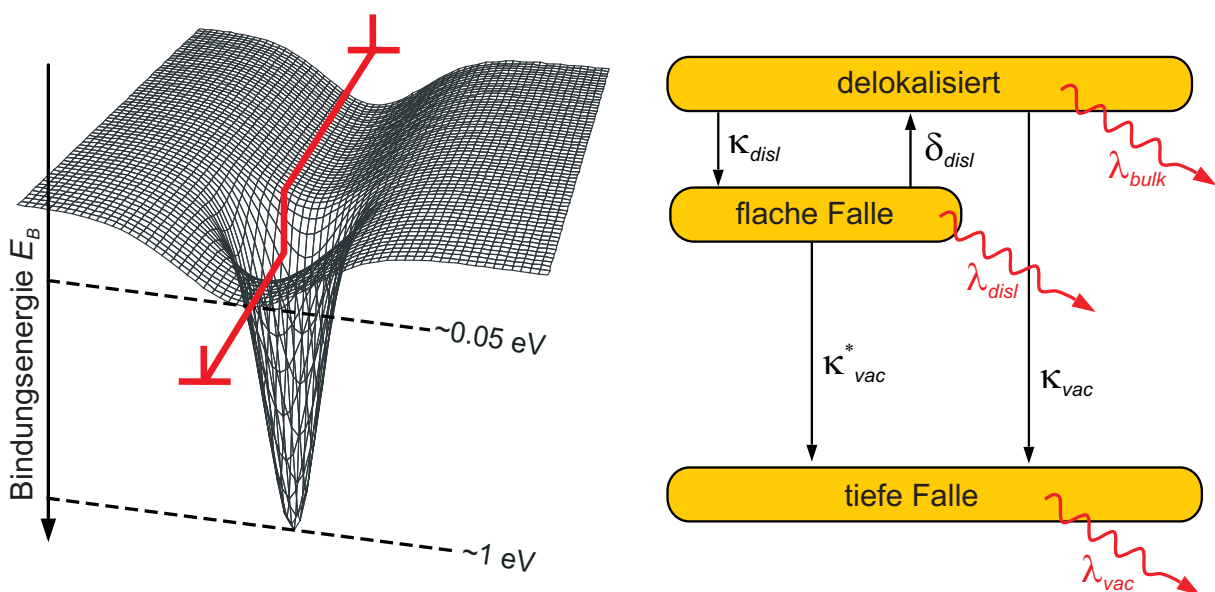
Störungen im Kristallgitter, die mit einer Vergrößerung des Atomabstandes einhergehen führen zu einer lokalen Erniedrigung des von den Kernen erzeugten elektrischen Potentials. Bezüglich des Zwischengitterniveaus des idealen Kristalls bildet sich so ein effektiv negatives Potential aus, in dem das Positron lokalisieren kann [10,101]. Die Bindungsenergie  $E_B$  des Positrons an den Defekt hängt dabei direkt von der Tiefe der Potentialmulde ab.

Daraus folgt eine natürliche Skala zur Klassifikation der Fehlstellen nach der kinetischen Energie des thermalisierten Positrons ( $\sim 0.04 \text{ eV}$  bei RT). Ist die Bindungsenergie wesentlich

größer, (z.B. 0.5 – 1.2 eV in einer Leerstelle) als die kinetische Energie, spricht man von einer tiefen Falle, aus der das Positron nicht wieder entkommen kann. Ein Versetzung hingegen bildet eine flache Falle (50 – 100 meV), aus der ein Entkommen wahrscheinlich ist [102 - 104].

Die Wahrscheinlichkeiten der Zerstrahlung des Positrons aus den verschiedenen Defekten und dem freien Zustand im Zwischengitter wird von einem Trapping-Modell beschrieben, wie es bereits 1967 vorgeschlagen wurde [105] (siehe auch: [6,10,106 - 108]. Abbildung 2.6 zeigt einen für plastisch verformte Metalle typischen Potentialverlauf (links) mit dem dazugehörigen Trapping-Modell (rechts):

Die Versetzung bildet eine flache aber ausgedehnte Potentialssenke, die von dem reziprok zum Abstand abfallenden elastischen Verzerrungsfeld hervorgerufen wird [109]. Ein Jog auf der Versetzungslinie bildet eine tiefe Falle mit einer Bindungsenergie in der Größenordnung von 1 eV. Das weitreichende Potential der Versetzung bildet dabei einen zusätzlichen Diffusionsweg für das Positron [110]. Das dazugehörige Trapping-Modell wird durch die Einfangraten für Versetzungen ( $\kappa_{disl}$ ) und Leerstellen ( $\kappa_{vac}$ ) sowie die Übergangsrate von der Versetzung in die Leerstelle ( $\kappa_{vac}^*$ ) bestimmt. Wesentlich in diesem Modell ist die nichtverschwindende Entweichrate ( $\delta_{disl}$ ) aus der flachen Falle. Die Annihilationsraten ( $\lambda_{bulk}$ ,  $\lambda_{disl}$ ,  $\lambda_{vac}$ ) beschreiben die Zerstrahlung aus den unterschiedlichen Zuständen. Mit einem solchen Modell lässt sich ein Satz von Ratengleichungen aufstellen, aus dem sich in einigen Fällen die Defektkonzentrationen bestimmen lassen [11,19].



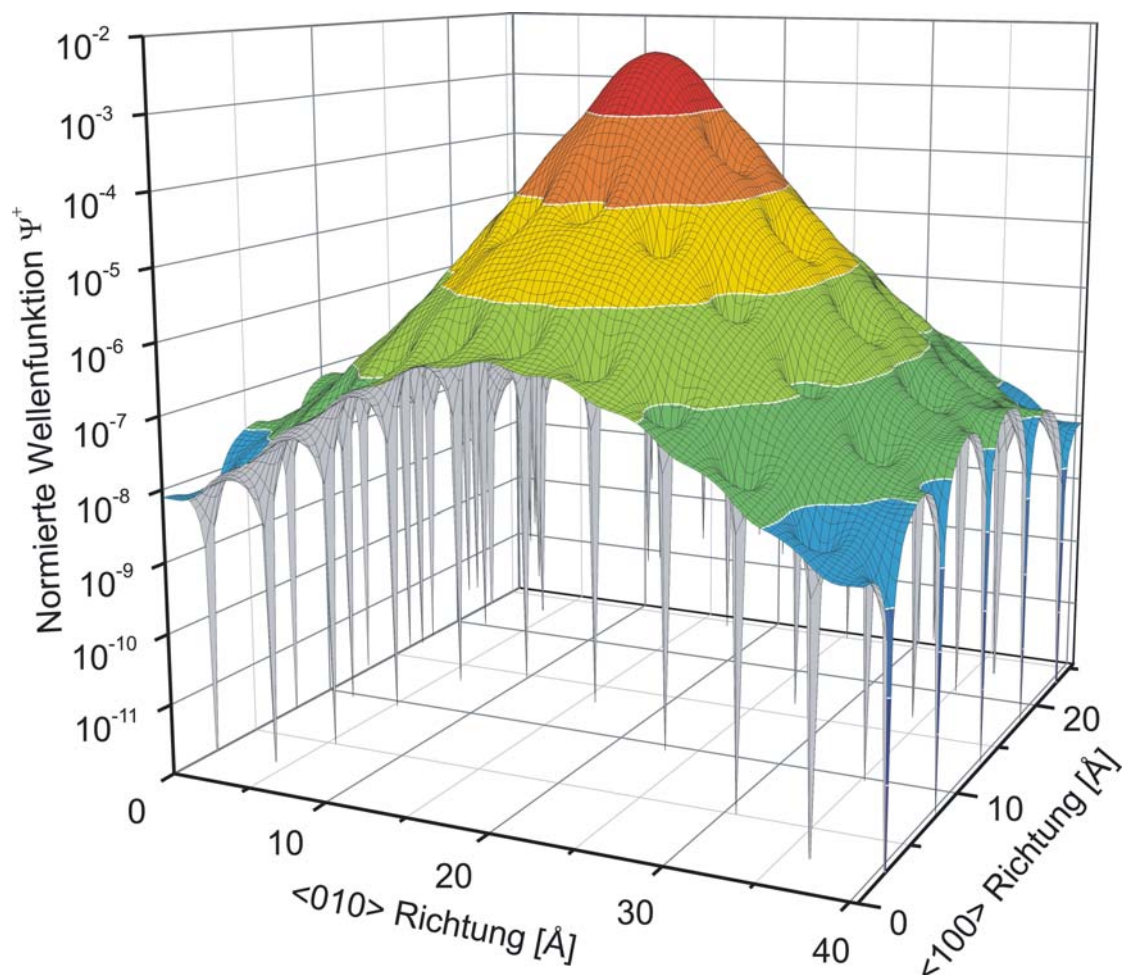
**Abbildung 2.6:** Links: Potentialverlauf um eine Versetzung mit assoziiertem leerstellenartigen Defekt (z.B. Jog). Rechts: Das dazugehörige Trapping-Modell. Die Versetzung bildet eine flache Falle aus der das Positron wieder entkommen kann. Aus der tiefen Falle ist kein Entkommen möglich. Einmal eingefangen, wird das Positron darin zerstrahlen.

Messungen der charakteristischen Positronen-Lebensdauer von Versetzungen zeigen einen ähnlichen Wert wie für Leerstellen [106 - 108]. Der Einfang in die Versetzung stellt also nur einen Zwischenzustand dar. So wird die Versetzungsdichte mit Methoden der Positronen-Spektroskopie indirekt über die Konzentration der assoziierten leerstellenartigen Defekte bestimmt.

Die Wellenfunktion des Positrons  $\Psi^+$  lässt sich zwar nicht direkt messen, aber über Simulationsrechnungen abschätzen. Abbildung 2.7 zeigt  $\Psi^+$  für ein in einer Leerstelle lokalisiertes Positron am Beispiel von Aluminium in halblogarithmischer Darstellung [111].  $\Psi^+$  wurde mit dem Code PosNew 99 [112] mit unrelaxierten Gitterpositionen berechnet. Es ist ein Schnitt durch eine  $\{110\}$ -Ebene gezeigt. Die Rechnung ergibt einen Überlapp von  $\Psi^+$  mit Elektronen der nächsten Nachbaratome von  $\sim 96\%$ .

## 2.2.6 Annihilation

Über die Annihilation des Positrons erschließen sich generell zwei physikalische Größen: Die lokale Elektronendichte und die lokale Elektronenimpulsverteilung, wobei das lokalisierte Positron überwiegend die nächsten Nachbaratome sieht. Wenn das Positron mit einem Elektron zerstrahlt, wird die Ruhemasse beider Teilchen ( $2m_0c^2$ ) in Strahlung umgesetzt. Wird kein Positronium gebildet, erfolgt die Zerstrahlung fast immer in zwei  $\gamma$ -Quanten. Der nur in Kernnähe mögliche  $1\gamma$  bzw.  $3\gamma$  Zerfall ist um  $\alpha$  bzw.  $\alpha^3$  unwahrscheinlicher als der  $2\gamma$  Zerfall (Feinstrukturkonstante  $\alpha \approx 1/137$ ) und wird hier nicht betrachtet [9].



**Abbildung 2.7:** Wellenfunktion des Positrons  $\Psi^+$  in einer Leerstelle in Aluminium in halblogarithmischer Darstellung. Schnitt durch die  $[110]$  Ebene. Der Überlapp von  $\Psi^+$  mit Elektronen der nächsten Nachbaratome beträgt  $\sim 96\%$ .

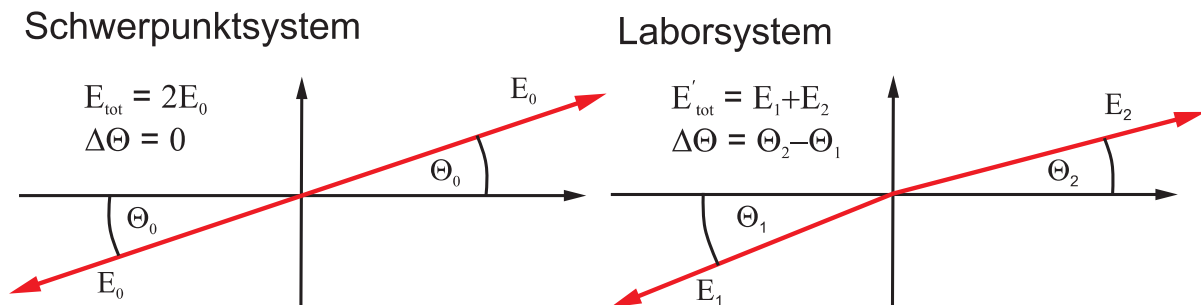
Im Schwerpunktsystem des annihilierenden Paares besitzen beide  $\gamma$ -Quanten aufgrund der Impulserhaltung die halbe Energie des Gesamtsystems ( $E_{\text{tot}} = m_0c^2 - E_B \approx m_0c^2 = 511 \text{ keV}$ ) und werden in entgegengesetzte Richtung abgestrahlt. Beim Übergang ins Laborsystem verursacht der Longitudinalteil des Paarimpulses  $p_L$  aufgrund des Doppler-Effektes eine Verschiebung der Energien der beiden Photonen um  $\Delta E = \pm p_L c/2$  (2.1), wobei sich die Gesamtenergie  $E'_{\text{tot}}$  im Laborsystem aus der Lorentz-Transformation des sich bewegenden Schwerpunktsystems ergibt (2.2).

$$E_{1,2} = E'_{\text{tot}} \pm \Delta E = E'_{\text{tot}} \left( 1 \pm \frac{p_L}{2m_0c} \right), \quad \Delta E = \frac{p_L c}{2} \quad (2.1)$$

$$E'_{\text{tot}} = E_{\text{tot}} \sqrt{1 - v^2/c^2} \quad (2.2)$$

$$\Delta\Theta = \tan^{-1} \left( \frac{p_T}{m_0c} \right) \approx \frac{p_T}{m_0c} \quad (2.3)$$

Da die kinetische Energie des Positrons klein gegenüber der der Elektronen (1-10 eV) ist, kann sie für die meisten Anwendungen vernachlässigt werden [113]. Der transversale Anteil des Impulses  $p_T$  bewirkt eine geringe Abweichung  $\Delta\Theta$  von der Antiparallelität der  $\gamma$ -Quanten (2.3). Eine Doppler-Verschiebung von  $\Delta E = 1 \text{ keV}$  entspricht dabei einem Elektronenimpuls von  $p_L = 3.91 \times 10^{-3} m_0c$ . Für isotrope Materialien entspricht dies wiederum einer Winkelabweichung von  $\Delta\Theta = 3.91 \text{ mrad}$  [114].



**Abbildung 2.8:** Einfluß des Elektronenimpulses auf die  $2\gamma$ -Zerstrahlung. Links oben: Im Schwerpunktsystem haben beide  $\gamma$ -Quanten dieselbe Energie und werden antiparallel emittiert. Im Laborsystem verursacht der Elektronenimpuls eine Verschiebung der Energien sowie eine Störung der  $180^\circ$ -Korellation (Doppler-Effekt).

Beide Impulskomponenten sind experimentell zugänglich und werden zu Untersuchungen am Festkörper eingesetzt:  $p_L$  in der Doppler-Spektroskopie (Doppler Broadening Spectroscopy DBS),  $p_T$  in der Winkelkorrelationsmessung (ACAR bzw. 2D-ACAR: Angular Corellation of Annihilation Radiation).

## 2.3 Lebensdauer-Spektroskopie

Die Elektronendichte am Aufenthaltsort des Positrons ist proportional zur Zerstrahlungsrate und damit umgekehrt proportional zur Positronen-Lebensdauer. Experimentell stehen zur Messung der Lebensdauer zwei Methoden zur Verfügung: 1.) Mit einem geeigneten Positronenemitter, über die präzise Messung der Zeit zwischen der Entstehung des Positrons und seiner Vernichtung. Dabei liefert ein koinzidentes  $\gamma$ -Quant (z.B.:  $^{22}\text{Na}$ : 1275 keV) das Signal für die Entstehung des Positrons (Start-Signal), während die Vernichtung über eines der 511 keV Gammas detektiert wird (Stop-Signal). 2.) Mit einem gepulsten Strahl langsamer Positronen, bei dem das Start-Signal durch den Puls definiert wird. In jedem Puls darf dabei höchstens ein Positron enthalten sein und der Abstand zwischen zwei Pulsen muß länger sein als die zu messende Lebensdauer. Als Stop-Signal dient auch hier eines der 511 keV Gammas.

Über die Positronen-Lebensdauer läßt sich nicht nur die Fehlstellendichte bestimmen, sondern es lassen sich auch unterschiedliche Fehlstellentypen identifizieren, falls ein Trapping-Modell für das zu untersuchende Material aufgestellt werden kann [98]. Das gemessene Lebensdauer-Spektrum läßt sich in Komponenten zerlegen, die den charakteristischen Lebensdauern des idealen Gitters und der unterschiedlichen Fehlstellentypen entsprechen. An das Spektrum wird dazu eine Funktion angepaßt, die aus der Summe der charakteristischen Lebensdauern, gewichtet mit ihren Intensitäten besteht. Eine Faltung dieser Summe mit ein bis drei Gauß-Verteilungen beschreibt dabei die Zeitauflösung des Spektrometers. Durch die Vielzahl der Koeffizienten der Anpassung sind der Zerlegung von Lebensdauerspektren aber praktische Grenzen gesetzt. So ist es auch bei weit auseinander liegenden Lebensdauern nur selten möglich, mehr als drei Komponenten zu identifizieren [115]. Bei nah beieinander liegenden Lebensdauerkomponenten liegt die Obergrenze meist bei zwei, und durch die endliche Zeitauflösung des Systems ist eine Trennung auch bei drastischer Erhöhung der Zählrate unmöglich. Ist der Abstand der Lebensdauerkomponenten kleiner als die doppelte Zeitauflösung, lassen sie sich überhaupt nicht trennen.

Es existieren einige Programmpakete zur Zerlegung von Lebensdauerspektren z.B.: Positron-Fit [116] und LT [117]. Für einen Vergleich siehe z.B. [118]. Mit Hilfe eines geeigneten Trapping-Modells lassen sich nach erfolgreicher Trennung aus den Intensitäten und Lebensdauern die Konzentrationen der verschiedenen Fehlstellentypen errechnen. Die Aufstellung des Modells ist dabei in keiner Weise trivial, da – falls vorhanden – auch flache Fallen berücksichtigt werden müssen [119], die sich in vielen Fällen der Messung entziehen. Die mittlere Lebensdauer, die ohne Modellannahmen aus dem Spektrum bestimmt werden kann, ist ein Maß für die lokale Fehlstellendichte und besitzt einen ähnlichen Informationsgehalt wie der S-Parameter. So läßt sich aus der mittleren Lebensdauer, unter der Annahme daß sich die Verteilung der Fehlstellentypen nicht ändert, in ermüdeten Metallproben die Versetzungsdichte bestimmen [99].

### 2.3.1 Klassische Sandwich-Geometrie: $\gamma$ - $\gamma$ Koinzidenz

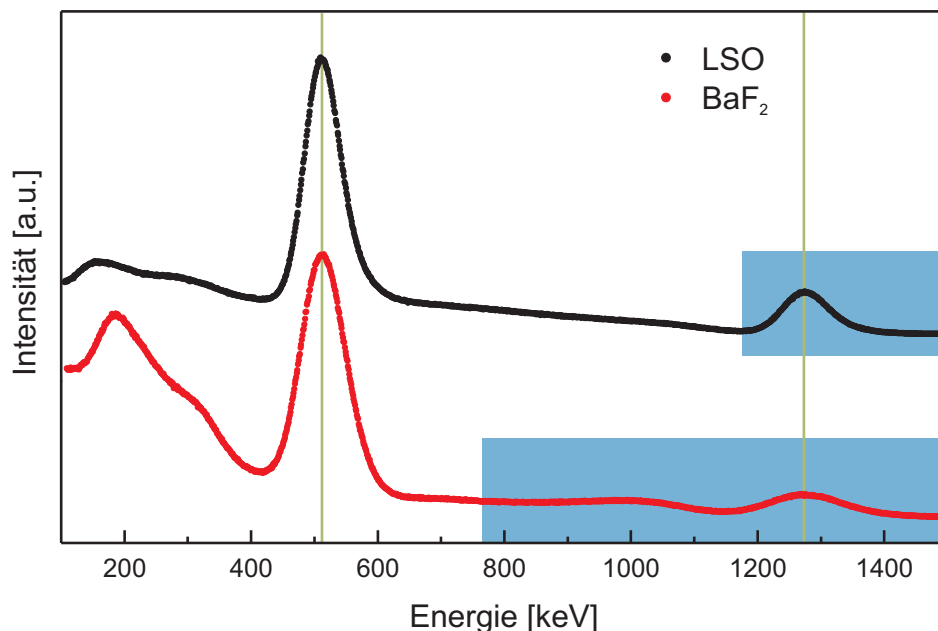
Bei der klassischen Lebensdauerspektroskopie mit  $^{22}\text{Na}$  wird das koinzidente  $\gamma$ -Quant des  $^{22}\text{Na}$  (1275 keV) und eines der 511 keV Annihilationsquanten mit Szintillationsdetektoren nachgewiesen und die Zeitspanne zwischen den beiden Signalen gemessen (1275 keV: Start, 511 keV: Stop) ( $\gamma$ - $\gamma$ -Koinzidenz, siehe z.B.: [12]).



Der Meßaufbau besteht im Prinzip aus zwei Plättchen des Probenmaterials, zwischen die eine in einer dünnen Folie (2-5  $\mu\text{m}$  Al oder Kapton) eingepackte  $^{22}\text{NaCl}$ -Quelle gelegt wird (Sandwich-Geometrie). Die Detektoren werden dann im Winkel von  $90^\circ$  oder  $180^\circ$  um das Sandwich angeordnet. Dies führt nur dann zu einem reproduzierbaren Ergebnis, falls zwei in allen relevanten Eigenschaften identische und homogene Proben zur Verfügung stehen. Start- und Stop-Signal werden über ihre Energie getrennt, wobei die Qualität der Trennung essentiell für die Zeitauflösung des Meßsystems ist (typischerweise 180 – 300 ps). Als Szintillatormaterialien kommen fast ausschließlich Plastikszintillatoren [120] oder  $\text{BaF}_2$  zum Einsatz.  $\text{BaF}_2$  hat den Vorteil einer schnell abklingenden Lichtkomponente (220 nm, 0.8 ns) die aber durch eine langsame Komponente überlagert ist (310 nm, 600 ns) [121]. Plastikszintillatoren besitzen zwar nur eine Komponente, haben aber durch ihre geringe Dichte den Nachteil einer sehr geringen Stopwahrscheinlichkeit, so daß die  $\gamma$ -Quanten nur über ihr Compton-Spektrum nachweisbar sind [120]. Da eine saubere Trennung der Signale nur über schmale Energiefenster möglich ist, wird der Löwenanteil der Signale verworfen und die maximal mögliche Zählrate ist durch Totzeiteffekte und zufällige Koinzidenzen limitiert [122].

### 2.3.2 Neue Szintillatoren

Seit einigen Jahren macht die Entwicklung von neuen Szintillatormaterialien vor allem für Anger-Kameras in der Positronen-Emissions-Tomographie (PET) große Fortschritte. Oxidische Seltenerd-Verbindungen erreichen schnelle Signalabklingzeiten und hohe Lichtausbeuten [123]. Eins dieser Materialien sticht in seinen Eigenschaften aus den neuen Materialien hervor: Mit  $\text{Ce}^{3+}$  dotiertes Lutetiumorthooxysilikat (LSO) vereint eine hohe Lichtausbeute (27 Photonen/keV, ca. das 18-fache von  $\text{BaF}_2$  [124]) mit zwei fast identischen Abklingzeiten von  $\sim 40$  ns [125;126].



**Abbildung 2.9:** Energiespektren von  $^{22}\text{Na}$ , aufgenommen mit  $\text{BaF}_2$  (●) und LSO (●) als Szintillatormaterial (vergleichbare Kristalldimensionen). Beim LSO erzeugt das 1275 keV Gamma einen klaren Peak, während bei  $\text{BaF}_2$  die Höhe des Peaks in der Größenordnung der Compton-Kante liegt. Dadurch erlaubt LSO eine saubere Trennung der Ereignisse mit schmalen Energiefenstern. Typische Energiefenster am Start-Diskriminator sind blau hinterlegt.

Gerade die letztere Eigenschaft macht LSO zu einem attraktiven Szintillatormaterial für die Lebensdauerermessung. Durch eine hohe effektive Kernladungszahl von 65.8 und eine Dichte von  $7.49 \text{ g/cm}^3$  besitzt LSO einen Absorptionskoeffizienten für  $\gamma$ -Strahlung in der Größenordnung von Wismutgermanat (BGO) [126].

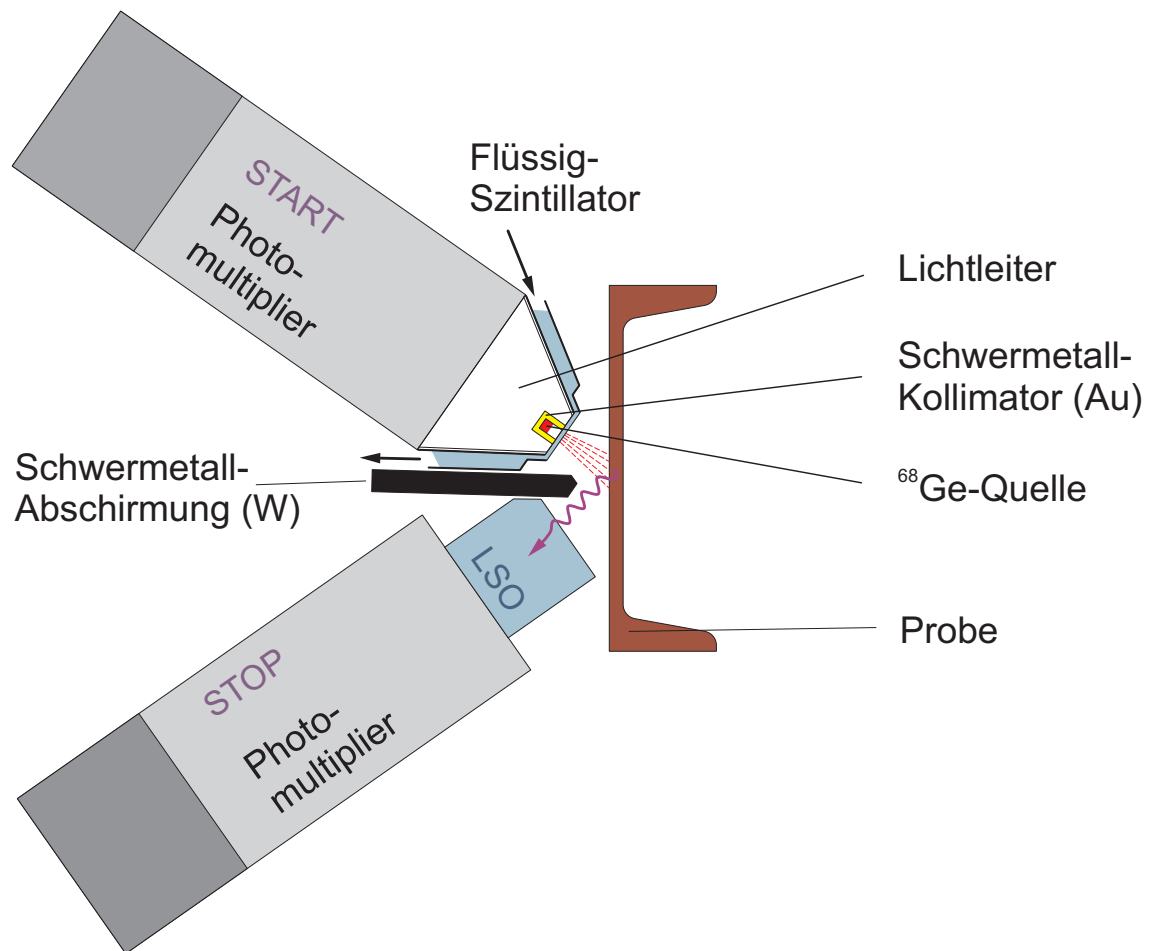
Natürliches Lutetium enthält einen Anteil von 2.6% des instabilen Isotops  $^{176}\text{Lu}$ , das über  $\beta$ -Zerfall mit einer Halbwertszeit von  $3.8 \times 10^{10} \text{ y}$  zu  $^{176}\text{Hf}$  zerfällt. Die daraus resultierende spezifische Aktivität von  $\sim 10 \text{ Bq/g}$  erzeugt einen intrinsischen Untergrund im Energiespektrum des Szintillators. Das Maximum des Spektrums von  $^{176}\text{Lu}$  liegt bei 600 keV und hat nur verschwindende Anteile größer als 1 MeV [127]. Da die Zerfälle von  $^{176}\text{Lu}$  nicht mit den Signalen des Positrons korreliert sind, kann es am Startdetektor diskriminiert werden und stört nicht bei der Lebensdauerermessung, solange die Positronenzählrate signifikant größer ist als der intrinsische Untergrund. Abbildung 2.9 zeigt die Energiespektren von LSO und  $\text{BaF}_2$  im Vergleich. Im Gegensatz zu  $\text{BaF}_2$  erzeugen die 1275 keV Gammas im LSO einen deutlichen Photopeak. Das bedeutet, daß der Compton-Anteil nicht mit in die Start-Signale hineingenommen werden muß und ein enges Energiefenster am Diskriminator eingestellt werden kann (in Abbildung 2.9 blau hinterlegt).

Ein erster Test an einer ausgeheilten Ni-Probe hat die Eignung von LSO für die Lebensdauer-spektroskopie unter Beweis gestellt [127]. Durch die Abwesenheit einer zweiten Abklingzeit im Szintillationslicht ließ sich das Spektrum ohne Probleme mit einer einkomponentigen Auflösungsfunktion analysieren.

### 2.3.3 $\beta$ - $\gamma$ -Koinzidenz

Eine Alternative Messung der Lebensdauer ist mit der  $\beta$ - $\gamma$ -Koinzidenz möglich [128,129], die gegenüber der  $\gamma$ - $\gamma$ -Koinzidenz einige Vorteile bietet. Hierbei wird eine kleine Positronenquelle in einem Kollimator in einen Lichtleiter montiert, der sich auf der Frontseite eines Photomultipliers befindet. Bei bereits realisierten Experimenten befindet sich ein Szintillatorplättchen (Plastik) vor der Austrittsöffnung des Kollimators, in dem der Energieverlust der durchfliegenden Positronen das Start-Signal erzeugt. Das Stop-Signal wird mit einem zweiten Detektor nachgewiesen, der entweder hinter der Probe oder in  $90^\circ$  zum ersten angeordnet ist [130]. Generell ermöglichen  $\beta$ - $\gamma$ -Spektrometer höhere Koinzidenzraten als  $\gamma$ - $\gamma$ -Spektrometer [99].

Um eine ausreichende Transmission zu erreichen, wird ein hochenergetischer Positronenemitter mit kurzer Halbwertszeit verwendet (in [130]:  $^{72}\text{Se}/^{72}\text{As}$ :  $E_{\text{End}} = 2.5$  und  $3.3 \text{ MeV}$ ,  $\tau_{1/2} = 8.4 \text{ d}$ ). Die hohe Positronenenergie bringt den Nachteil mit sich, daß die Positronen Strahlenschäden im Szintillator hervorrufen, so daß dieser innerhalb weniger Tage degeneriert. Ein ganz entscheidender Vorteil hingegen ist, daß keine Sandwichgeometrie nötig ist, was Messungen auch an inhomogenen Proben ermöglicht. Da es praktisch unmöglich ist, zwei identische Ermüdungsproben herzustellen, wird die  $\beta$ - $\gamma$ -Spektroskopie vorzugsweise bei der Messung der Lebensdauer in plastisch deformierten [131] und ermüdeten [99,130,132] Metallen eingesetzt. Der nächste Entwicklungsschritt hin zur praxisnahen Anwendung der Positronen-Lebensdauer ist ein robustes mobiles Lebensdauerspektrometer mit langen Wartungsintervallen, da in der praktischen Anwendung ein Wechsel von Szintillator und Quelle alle paar Tage nicht vertretbar ist.



**Abbildung 2.10:** Entwurf eines  $\beta$ - $\gamma$ -Spektrometers mit integrierten Photomultipliern (z.B. Hamamatsu H3164-10) für den mobilen Einsatz. Die Positronenquelle ist in einem kleinen Goldtöpfchen im Lichtleiter des Start-Detektors untergebracht. Das Start-Signal wird durch den Energieverlust der Positronen in einem Flüssigszintillator vor der Quelle nachgewiesen. Als Szintillator im Stop-Detektor kommt LSO zum Einsatz.

Abbildung 2.10 zeigt einen Entwurf eines solchen Spektrometers. Die Positronenquelle besteht aus  $^{68}\text{Ge}$  und ist in einem Goldtöpfchen mit 2 mm Wandstärke und einer Bohrung von 1 mm Durchmesser montiert, das gleichzeitig als Kollimator dient. Bei einer Halbwertszeit von 271 d reicht es, die Quelle ein bis zweimal pro Jahr zu wechseln. Das Start-Signal wird durch den Energieverlust der Positronen in einem Flüssigszintillator vor der Quelle nachgewiesen, der durch einen schmalen Spalt von 50 – 100  $\mu\text{m}$  Breite vor dem Kollimator umgepumpt wird. Bei einem ausreichenden Reservoir wird die Degeneration der Szintillationseigenschaften nur geringfügig mit der Zeit zunehmen. Sollte die Lichtausbeute zu sehr abnehmen, kann der Flüssigszintillator ohne Demontage des Spektrometers ausgetauscht werden. Zur Seite der Quelle hin und nach Außen sind dünnwandige Austrittsfenster für die Positronen nötig, um die Absorption gering zu halten. Da es nur gilt, eine Öffnung vom Durchmesser 1 mm abzudecken ist eine Titanfolie von 3  $\mu\text{m}$  Dicke ausreichend. Die Transmission des  $\beta^+$ -Spektrums von  $^{68}\text{Ge}$  durch zwei solcher Folien und 50  $\mu\text{m}$  Flüssigszintillator beträgt 0.95, so daß nur 5% der Positronen verloren gehen. Bei 100  $\mu\text{m}$  Flüssigszintillator wären es 0.91 und 9% Verlust.

Wegen seiner hohen Lichtausbeute bietet sich LSO als Szintillatormaterial zum Nachweis des Stop-Signals an. Die Wahrscheinlichkeit ein  $\gamma$ -Quant von 511 keV in LSO abzustoppen liegt

bei 0.91/cm [133]. Deshalb genügt ein kleiner zylinderförmiger Kristall mit einem Durchmesser von 10 mm, um eine hinreichende Nachweiswahrscheinlichkeit zu gewährleisten. Das Szintillationslicht wird mit einem modernen integrierten Photomultiplier (z.B. Hamamatsu Model H3164-10) mit einem Durchmesser von 10 mm nachgewiesen. Dieses Modell ist mit koplanaren Dynoden aufgebaut, was den Vorteil verschwindender Laufzeitunterschiede der Elektronen von der Photokathode zur ersten Dynode mit sich bringt.

Zur Abschirmung des Stop-Detektors gegenüber Annihilationssignalen aus dem Quellhalter und dem Flüssigszintillator dient eine Platte aus Wolfram zwischen den Detektoren. Sie sollte eine Dicke von mindestens 8 mm besitzen, so daß die Transmission für 511 keV  $\gamma$ -Quanten unterhalb von 5% liegt.

Ein solches Spektrometer kann kompakt und robust konstruiert werden und ist damit für die Messung der Materialermüdung an realen Bauteilen prädestiniert. In der industriellen Materialprüfung läßt sich damit der Anstieg der Versetzungsdichte während der Ermüdung z.B. in einem Wöhler-Test in-situ verfolgen. Da LSO sehr viel höhere Zählraten verträgt als herkömmliche Szintillatoren, können die Spektren in rascher Folge aufgenommen werden. Mit einer geeigneten Software ist somit ein online-monitoring der Materialermüdung im Minuten-takt möglich.

## 2.4 Doppler-Spektroskopie

Ebenso wie die Lebensdauer-Spektroskopie eignet sich auch die Doppler-Spektroskopie zur Untersuchung der Gitterfehlerdichte im Festkörper. Aus der Dopplerverbreiterung der Annihilationslinie läßt sich ein Parameter, der S-Parameter, bestimmen, der als Maß für die Gitterfehlerdichte interpretiert werden kann. Bei der Untersuchung von Plastizität und Ermüdung ist der S-Parameter die essentielle Größe der Positronenspektroskopie, deren Dynamikbereich vom thermisch ausgeheilten bis zum maximal verformten Zustand eines Metalls oder einer Legierung reicht.

Zusätzlich zu diesem Parameter können aus dem Doppler-Spektrum Informationen über die chemische Umgebung einer Positronenfalle gewonnen werden, das heißt z.B. über die nächsten Nachbaratome einer Leerstelle. Mit dieser zusätzlichen Information ist in vielen Fällen eine Identifikation von Positronenfallen möglich.

### 2.4.1 Der 2-Gamma Zerfall

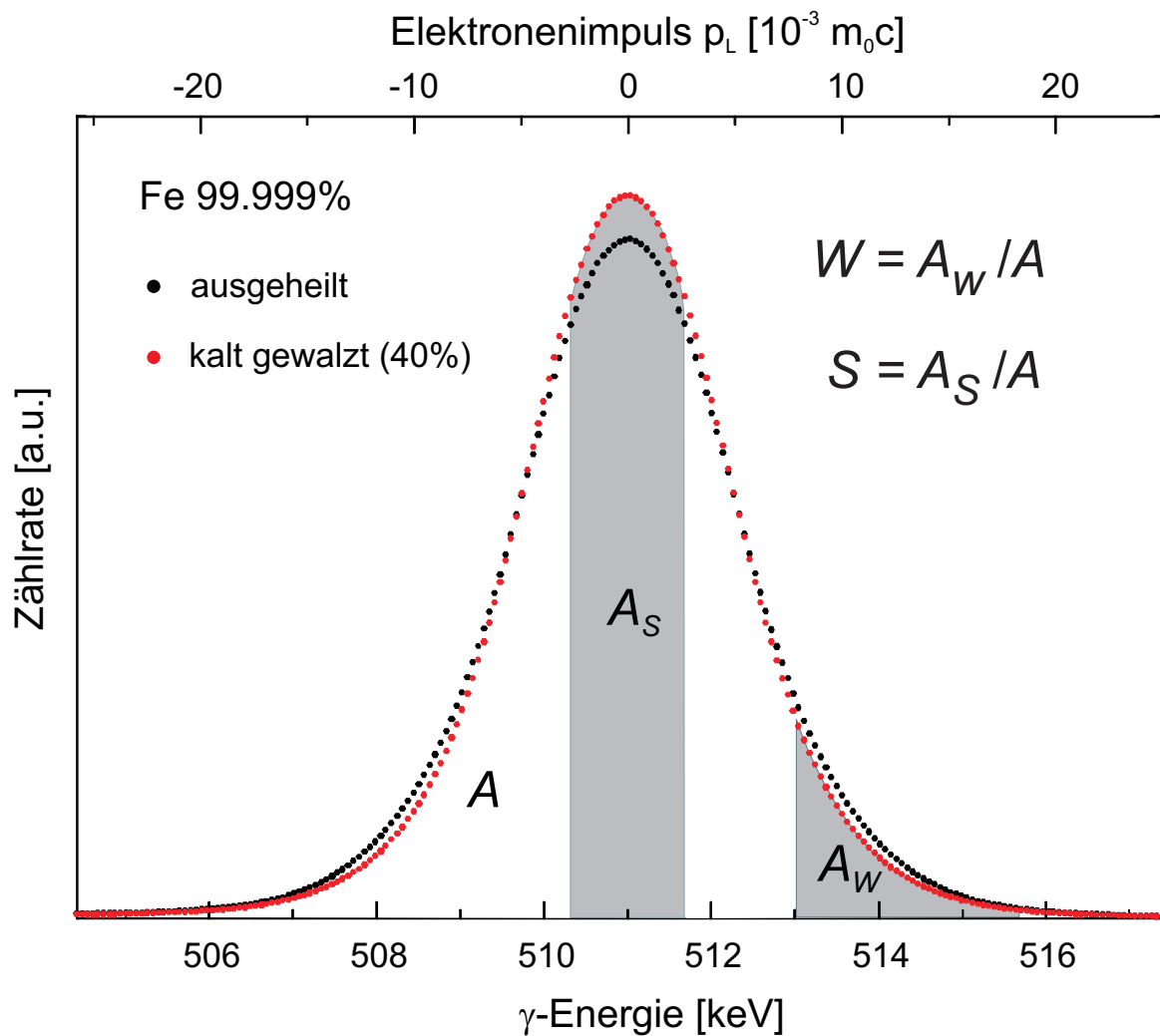
Beim 2-Gamma Zerfall geht die Gesamtenergie des annihilierenden Paares auf zwei  $\gamma$ -Quanten über. Im Laborsystem bewirkt der Elektronenimpuls eine Doppler-Verschiebung des 511 keV Annihilations-Gammas. Die daraus resultierende Dopplerverbreiterung der Annihilationslinie liefert eine Aussage über die Impulsverteilung am Aufenthaltsort des Positrons [134,135]. Sie wird im allgemeinen über Linienformparameter ausgewertet. Der S-Parameter (shape), der zuerst von MacKenzie eingeführt wurde [136], ist über den Quotienten einer zentralen Region  $A_S$  um 511 keV und dem Integral über den gesamten Peak  $A$  definiert. Er filtert den Teil der Annihilationsereignisse mit Elektronen mit niedrigem Impuls heraus. Der W-Parameter (wing) beschreibt die Annihilation mit Elektronen mit hohem Impuls und ist der Quotient eines Bereichs im äußeren Teil  $A_W$  des Spektrums und des Peakintegrals  $A$  [137]. Da  $A$  und  $A_S$  bzw.  $A_W$  keine unabhängigen Größen sind, ergeben sich die rein statistischen Fehler der Linienformparameter aus der Quadratwurzel der Varianz zu [138]:

$$S = \frac{A_S}{A}, \quad W = \frac{A_W}{A} \quad (2.4)$$

$$\Delta S = \sqrt{S(1-S)/A_S}, \quad \Delta W = \sqrt{W(1-W)/A_W} \quad (2.5)$$

Abbildung 2.11 zeigt Dopplerspektren von thermisch ausgeheiltem (schwarz:  $c_{\text{vac}} \leq 10^{-6}/\text{Atom}$ ) und mit einer Dickenreduktion von 40% kaltgewalztem reinem Eisen (rot). Zum Vergleich sind beide Spektren auf gleiche Fläche normiert.

Die Wahl der Bereiche  $A_S$  und  $A_W$  ist in gewissen Grenzen willkürlich. Im Falle des S-Parameters zeigt sich, daß sich die beste statistische Signifikanz ergibt, wenn die Integrationsgrenzen von  $A_S$  so eingestellt werden, daß der S-Parameter in einem Bereich von  $0.5 \pm 0.1$  liegt. Der W-Parameter wird üblicherweise in einem Bereich zwischen  $10 - 20 \times 10^{-3} m_0c$  bestimmt, wobei die Grenzen stark vom gemessenen Material abhängen und eine sinnvolle obere Grenze von der Gesamtstatistik im Peak bestimmt wird. Durch die geringere Anzahl an Ereignissen im äußeren Bereich des Peaks ist der W-Parameter statistisch weniger signifikant als der S-Parameter. Da die Aussage beider Werte bei gleichem Fehlstellentyp dieselbe ist, wird meistens nur der S-Parameter angegeben.



**Abbildung 2.11:** Definition der Linienformparameter S und W als der Quotient aus den Bereichen  $A_S$  und  $A_W$  und dem Gesamtintegral  $A$  am Beispiel von reinem Eisen (● ausgeheilt, ● mit 40% Dickenreduktion kalt gewalzt).

Auch unter Verwendung moderner hochauflösender Germanium-Detektoren ist die instrumentelle Auflösung mit 1.1 – 1.3 keV bei 511 keV in der Größenordnung der Dopplerverbreiterung. Dies ist ein generelles Problem der Dopplerspektroskopie. Schon geringste Änderungen der Auflösung haben einen großen Einfluß auf die Linienform. Es ist ein großer apparativer Aufwand nötig, um die Auflösung über längere Meßzeiten stabil zu halten. Dies gelingt nur mittels einer Temperierung der analogen Elektronik ( $\Delta T < 0.2\text{K}$ ) und einer Kombination aus analoger und digitaler Stabilisierung über die simultan mitgemessene  $\gamma$ -Linie eines Monitorisotops.

Die Compton-Streuung von  $\gamma$ -Quanten mit Energien oberhalb von 511 keV verschlechtert die Qualität des Spektrums erheblich, läßt sich aber durch die Verwendung geeigneter Positronenquellen vermeiden. Das sind entweder Positronenemitter mit geringem Anteil hochenergetischer Gammas, z.B.  $^{68}\text{Ge}$  ( $\sim 3\%$  bei 1077 keV), oder langsame Positronenstrahlen, bei denen die Quelle von der Probe räumlich getrennt ist und entsprechend abgeschirmt werden kann. Außerdem gibt es hier die Möglichkeit, das Untergrundspektrum bei abgeschaltetem Strahl zu messen und vom Spektrum vor der Auswertung abzuziehen. Diese Möglichkeit besteht bei der Verwendung von  $^{22}\text{Na}$  nicht auf einfache Weise, da die störenden Gammas (100% bei 1275 keV) koinzident mit den Positronen entstehen und somit nicht durch ein Veto unterdrückt werden können.

Ebenso hat der sog. Pile-Up einen störenden Einfluß auf die Linienform. Dieser entsteht, wenn zwei oder mehr Ereignisse in einem Zeitfenster integriert werden (typisch: 20  $\mu\text{s}$  bei einer shaping time von 3  $\mu\text{s}$  am Verstärker). Ab einer gewissen Zählrate ( $\geq 1.5$  kcps) steigt die Wahrscheinlichkeit von Pile-Up Ereignissen mit der Zählrate an, was zu einer Zählratenabhängigkeit der Linienformparameter führt. Dieser Einfluß kann reduziert werden, wenn man entweder mit exakt derselben Zählrate über die gesamte Meßzeit mißt, oder besser von vornherein unterhalb der Grenze von 1.5 kcps bleibt.

Da dem S- und W-Parameter keine direkten physikalischen Größen entsprechen, sie aber extrem sensitiv für Änderungen in der Fehlstellenkonzentration sind, ist es sinnvoll, relative Parameter einzuführen, die die Defektkonzentration oberhalb der Ansprechschwelle beschreiben:

$$S_{rel} = S / S_{bulk} \quad , \quad W_{rel} = W / W_{bulk} \quad (2.6)$$

$S_{bulk}$  bzw.  $W_{bulk}$  bezeichnen hier die Werte einer defektarmen Referenzprobe des gleichen Materials. Eine gute Referenz bei Plastizitätsuntersuchungen ist eine thermisch gut ausgeheilte Probe desselben Materials oder ein anderer defektarmer reproduzierbar einstellbarer Werkstoffzustand. Bei der Messung von Ausscheidungssequenzen in Legierungen hat sich auch der ausgeheilte Zustand des Hauptlegierungselements als sinnvolle Referenz herausgestellt [139]. Um eine von der Konzentration unabhängige Aussage über den Fehlstellentyp zu machen wurde der R-Parameter eingeführt [137]:

$$S = (1 - I_{def})S_{bulk} + I_{def}S_{def} \quad , \quad W = (1 - I_{def})W_{bulk} + I_{def}W_{def} \quad (2.7)$$

$$R = \frac{S - S_{bulk}}{W - W_{bulk}} = \frac{S_{def} - S_{bulk}}{W_{def} - W_{bulk}} \quad (2.8)$$

$S_{def}$  bzw.  $W_{def}$  sind hier die defektspezifischen Parameter. Die Intensität  $I_{def}$  enthält sowohl die Konzentration der Fehlstellen als auch die spezifische Einfangwahrscheinlichkeit. Der R-Parameter entspricht der Steigung in einem S/W-Diagramm [140,141]. In temperaturabhängigen oder implantationstiefeabhängigen Meßreihen kann der R-Parameter zur Identifikation der Fehlstellen herangezogen werden (siehe z.B.: [142,143]).

## 2.4.2 Positronium

Während die Bildung von Positronium in Metallen keine Rolle spielt, erweist sich die Signatur des  $3\gamma$ -Zerfalls des Ortho-Positroniums als hilfreich bei der Untersuchung von ionischen Kristallen oder amorphen Materialien.

Der Grundzustand des Positroniums ist das Singulett  $^1S$  mit  $L=0$ ,  $S=0$  (Para-Positronium p-Ps,  $\tau_{vac,p-Ps} = 125$  ps) und das Triplett  $^3S$  mit  $L=0$ ,  $S=1$  (Ortho-Positronium o-Ps,  $\tau_{vac,o-Ps} = 142$  ns). Da ein System von zwei Photonen keinen Drehimpuls von 1 besitzen kann, zerfällt das o-Ps in mindestens drei Photonen, deren Energien sich zu  $2m_0c^2$  aufsummieren. In ionischen Kristallen, amorphen oder porösen Materialien, sowie in Polymeren kann sich Positronium bilden. Das offene Volumen von Poren mit einem Durchmesser von ca. 1 – 100 nm kann durch die Messung der o-Ps Lebensdauer bestimmt werden, die im Material geringer ist als im Vakuum ( $\tau_{o-Ps} = 1.5 - 120$  ns) [144,145]. Die grundlegenden Überlegungen dazu gehen auf die Modellvorstellung von Tao [146] und Eldrup [147] zurück. Eine Übersicht über die Bestimmung des offenen Volumens über die o-Ps-Zerstrahlung findet sich in [148].

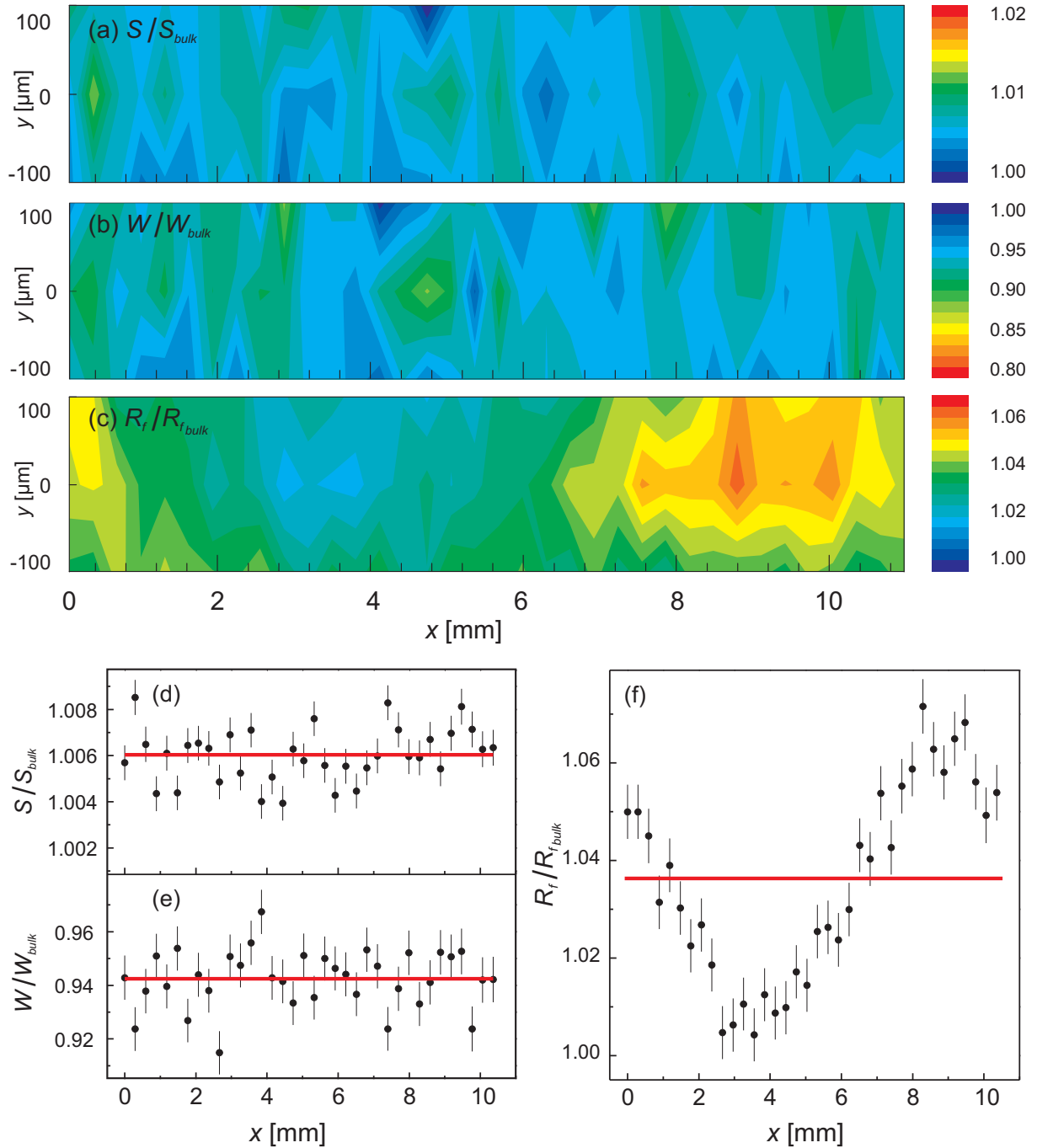
Die experimentell festgestellte verzögerte Bildung von Positronium, die das Tao-Eldrup-Modell nicht wiedergibt, läßt sich hingegen mit dem Blob-Modell von Stepanov und Byakow beschreiben [149], das für die Positronenzerstrahlung in wäßrigen Lösungen aufgestellt wurde, sich aber auch auf Polymere anwenden läßt [150,151].

Auch im Doppler-Spektrum schlägt sich die Anwesenheit von Positronium nieder. Bei der Zerstrahlung aus dem  $^1S$ -Zustand des p-Ps besitzt das Elektron einen geringen Impuls, verglichen mit den Elektronen im Festkörper: So führt schon ein geringer Anteil an p-Ps-Zerstrahlung im Doppler-Spektrum zu einem schmäleren Annihilationspeak und damit zu einem deutlich höheren S-Parameter. Wird das Verhältnis der Bildung von p-Ps und o-Ps (1:3), z.B. durch ein Magnetfeld verschoben (Positronium-Quenching [152,153]), ist dies ebenfalls im Doppler-Spektrum sichtbar.

Im Festkörper zerfällt o-Ps am wahrscheinlichsten über den Pick-Off Prozeß, bei dem es ein Elektron mit entgegengesetztem Spin zum Positron aus der Umgebung einfängt und dann in zwei Photonen zerfällt [154,155,156]. Obwohl die Pick-Off Wahrscheinlichkeit um 2 bis 3 Größenordnungen über der des  $3\gamma$ -Zerfalls liegt [157], kann über das Verhältnis  $R_f$  zwischen  $3\gamma$  und  $2\gamma$ -Zerfall, unabhängig von S- und W- Parameter Information über das offene Volumen im Festkörper gewonnen werden. Der Index  $f$  steht für den Anteil an Positronium im Spektrum und  $R_f$  variiert zwischen  $R_0$  für 0% Ps-Bildung und  $R_1$  für 100% Ps-Bildung.

$R_f$  wird aus dem Spektrum durch das Verhältnis der Zählrate  $P_f$  im Photopeak zur Zählrate  $V_f$  in einem Bereich zwischen der Compton-Kante und dem Photopeak gebildet (valley):

$$R_f = \frac{V_f - P_f}{P_f} \quad (2.9)$$



**Abbildung 2.12:** Ortsaufgelöste Doppler-Messung über eine unter Druck ermüdete einkristalline Quarzprobe. Alle Werte sind relativ zum Ausgangszustand des Materials angegeben. Flächenscans: (a), (b): S- und W-Parameter und zeigen nur eine geringfügige Variation über die Meßfläche. (c):  $R_f$  an denselben Positionen bestimmt zeigt deutlich einen geschädigten Bereich. (d) – (f): Dieselben Daten als Mittelwert über  $y$ . Eine leichte Gesamtschädigung führt zu einer geringen Erhöhung des S-Parameters bzw. Erniedrigung des W-Parameters. Lediglich  $R_f$  zeigt eine Modulation über  $x$ .

Obwohl  $R_f$  nur ein qualitativer Parameter ist, der Änderungen des offenen Volumens in Positroniumbildnern wiedergibt, reicht dies oftmals aus. In dem man  $P_f$  und  $V_f$  als Funktion vom Positronium-Anteil im Spektrum  $f$  schreibt, läßt sich eine quantitative Aussage machen:

$$P_f = fP_1 + (1-f)P_0, \quad V_f = fV_1 + (1-f)V_0 \quad (2.10)$$



Die Indizes 0 bzw. 1 stehen für  $f=0$  bzw.  $f=1$ . Lassen sich die Werte für  $f=0,1$  experimentell ermitteln, kann der Anteil  $f$  der Positronen, die als Positronium enden, nach (2.11) quantitativ bestimmt werden [158].

$$f = \left( 1 + \frac{R_1 - R_f}{R_f - R_0} \frac{P_1}{P_0} \right)^{-1} \quad (2.11)$$

Ein Beispiel für die Aussagekraft des Verhältnisses zwischen  $3\gamma$ - und  $2\gamma$ -Zerstrahlung ist die in Abbildung 2.12 gezeigte orts aufgelöste Doppler-Messung über einen unter Druck ermüdeten Quarz-Einkristall. Alle Werte sind relativ zum Ausgangszustand desselben Materials angegeben. (a) – (c) zeigen Scans über die Probenoberfläche. Während weder S- noch W-Parameter eine signifikante Ortsabhängigkeit aufweisen, zeigt der Parameter  $R_f$  einen Bereich mit erhöhtem offenem Volumen, der auf eine lokale Schädigung schließen läßt. (d) – (f) zeigen die Mittelwerte derselben Daten über  $y$ . Die Ermüdung drückt sich in einer Erhöhung der Fehlerdichte aus (höherer S-Parameter, niedrigerer W-Parameter), zeigt jedoch in diesen Parametern keine signifikante Abhängigkeit vom Ort  $x$ . Der Mittelwert des Parameters  $R_f$  ist ebenfalls auch im Mittel über  $y$  erhöht ( $R_f = 1.03$ ), gibt aber zusätzlich die Modulation aus (c) wieder.

## 2.5 Aufbereitung der Doppler-Daten

Mit einem Ge-Detektor, dessen Geometrie auf den Energiebereich um 500 keV optimiert ist, erreicht man eine Energieauflösung von  $\leq 1\text{keV}$  bei 477.6 keV ( $^7\text{Be}$ ). Die untere Grenze der Energieauflösung ist durch Gauß'sches Rauschen gegeben, das durch statistische Fluktuationen im Verhältnis zwischen absorbierter Energie und der Entwicklung von Wärme entsteht (Fano-Faktor [159,160]). Aber selbst diese sehr gute Auflösung liegt in der Größenordnung der Linienbreite der Annihilationslinie (2 - 3keV), was bedeutet, daß Detektor und Analogelektronik an der Grenze ihrer Spezifikationen arbeiten müssen. Dies macht den gesamten Aufbau anfällig für externe Störungen. So ist die verwendete Elektronik sehr sensitiv auf Temperaturschwankungen, was es nötig macht, sie in einem Klimaschrank ( $\Delta T \leq 0.1\text{K}$ ) unterzubringen. Ein weiterer Faktor ist die Luftfeuchtigkeit, da bereits ein geringer Feuchtigkeitsfilm zu Oberflächenentladungen in der HV-Elektronik führen kann, was eine instabile Spannungsversorgung des Detektors zur Folge hat. Diese Gefahr kann durch die Ausstattung des Labors mit einer Klimaanlage auf einfache Weise behoben werden.

### 2.5.1 Stabilisierung

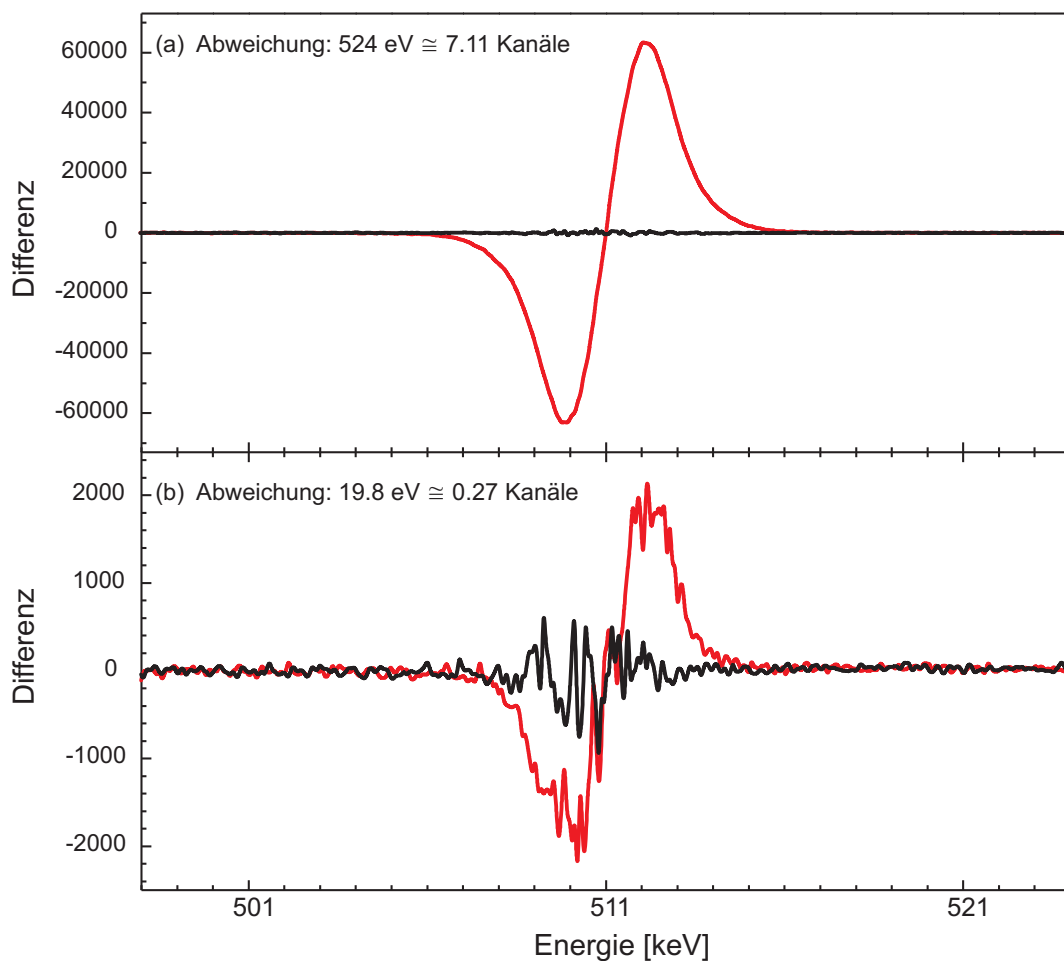
Zusätzlich zu den oben genannten Faktoren wird die Qualität des Spektrums durch eine Reihe von Störungen negativ beeinflusst, die recht unterschiedlicher Natur sein können. Es treten Schwankungen bei der Digitalisierung der Gammaenergien mit Frequenzen von Minuten bis zu Stunden oder Tagen auf. Um dieser Einflüsse Herr zu werden, ist eine aktive Stabilisierung der Elektronik während der Messung und bei der Datenauswertung nötig.

Kurzzeitige Schwankungen können über einen Hardware-Stabilizer korrigiert werden, der über zwei Flanken auf beiden Seiten des Peaks integriert und über die Asymmetrie den Verstärkungsfaktor der Elektronik nachregelt. Wird allerdings auf den Photopeak selbst stabili-

siert, besteht die Gefahr des Aufbaus eines Regelkreises mit Rückkopplung, dessen Auswirkungen die Qualität des Spektrums eher verschlechtern als verbessern. Die einzige Möglichkeit zur Entkopplung besteht darin, eine radioaktive Quelle simultan mitzumessen, die eine  $\gamma$ -Linie knapp unterhalb von 511 keV aufweist, und auf diese Linie zu stabilisieren [161].

${}^7\text{Be}$  bietet hier mehrere Vorteile: Es besitzt nur eine  $\gamma$ -Linie bei 477.6 keV (EC:  ${}^7\text{Be} \rightarrow {}^7\text{Li}$  ( $J=1/2$ )  $\rightarrow {}^7\text{Li}$  ( $J=3/2$ ),  $\Gamma = 3.9 \times 10^{-2}$  eV [162]), es hat eine erträglich lange Halbwertszeit von 53.3 d und es läßt sich über eine ( ${}^3\text{He}$ ,  $2\alpha$ ) Reaktion in einem Graphit-Target mit hohem Wirkungsquerschnitt (100 mbarn bei 11 MeV oberhalb der Schwelle bei 7.1 MeV) am Zyklotron herstellen [30].

Die Verwendung eines Monitorisotops ermöglicht es, einerseits die Stabilität des Experiments über die Halbwertsbreite der Zerfallslinie zu kontrollieren und andererseits eine Drift mit langer Zeitkonstante bei der Auswertung zu korrigieren. Dies ist insbesondere bei längeren Meßreihen notwendig. Dazu speichert man die Spektren in kurzen Zeitabständen, um sie nach der Drift-Korrektur zu addieren. Die Zentren von Monitorlinie und Photopeak werden über eine Anpassung an eine Peakfunktion (2.17) bestimmt, die auch die Form des Untergrunds berücksichtigt. Dadurch ist die Drift an zwei Punkten im Spektrum bekannt und kann sowohl im Gleichspannungsanteil als auch im Verstärkungsfaktor korrigiert werden. Eine Korrektur, die nur ganzzahlige Verschiebungen erlaubt, ist bei Weitem zu ungenau.



**Abbildung 2.13:** Zwei Beispiele für die digitale Zwei-Punkt-Driftkorrektur mit Splines: Differenz zwischen gedrifteten Doppler-Spektren von reinem Aluminium vor der Korrektur (rot) und nach der Korrektur (schwarz). (a) Drift am Photopeak: 7.11 Kanäle  $\cong$  524 eV. (b) Drift am Photopeak: 0.27 Kanäle  $\cong$  19.8 eV.

Ebenso führt die simple lineare Interpolation gerade in Bereichen mit geringer Zählrate zu Artefakten. Gute Ergebnisse liefert die Interpolation mit kubischen Splines [163], wie sie in der Bildverarbeitung seit langem Standard ist. Abbildung 2.13 zeigt zwei Beispiele anhand von Differenzspektren mit großer Drift (a) und mit geringer Drift (b). Die Differenz der unkorrigierten Spektren ist rot dargestellt, die der korrigierten schwarz. Auch wenn diese Kombination aus Hardware-Stabilisierung und digitaler Driftkorrektur [29] eine bedeutende Verbesserung gegenüber einem unstabilierten Experiment darstellt, und stabile Messungen über längere Zeiträume überhaupt erst ermöglicht, muß einem klar sein, daß jede auch noch so ausgefeilte Korrektur der Daten wiederum selber Artefakte erzeugen kann.

## 2.5.2 Untergrundreduktion zur Auswertung der Linienform

Der Untergrund unter dem Photopeak setzt sich aus einem externen Anteil, der seine Ursache außerhalb des Experiments hat, und einem intrinsischen Untergrund zusammen, der durch das verwendete Isotop und die 511-keV Annihilationsstrahlung selbst verursacht wird. Der externe Anteil läßt sich normalerweise einfach durch genügenden räumlichen Abstand zu anderen strahlungserzeugenden Experimenten reduzieren. Der intrinsische Anteil hochenergetischer Gammas kann auf zwei Weisen fast komplett eliminiert werden: 1.) Durch die Verwendung eines Positronenemitters mit geringem Anteil an hochenergetischen Zerfällen (z.B.:  $^{68}\text{Ge}$ ). 2.) Mit einem langsamen Positronenstrahl, bei dem Quelle und Detektor räumlich getrennt sind, so daß die Quelle effektiv abgeschirmt werden kann. Der von der Annihilationsstrahlung selbst verursachte Anteil besteht zum größten Teil aus Compton-Streueignissen mit geringem Energieübertrag, die in allen Materialien zwischen dem Entstehungsort des 511 keV Quants und dem aktiven Volumen des Detektors stattfinden können. Er kann experimentell zwar durch die Verwendung dünner Proben sowie dünner Vakuumfenster mit geringer Dichte und niedriger Kernladungszahl  $Z$  kleingehalten werden, stellt aber immer den größten Anteil am Untergrund. Im Bereich des Photopeaks, also nur wenige keV von 511 keV entfernt, kann das Compton-Spektrum als konstant angenommen werden, so daß die Form des Untergrunds  $Bk(E)$  einer Stufenfunktion  $\Theta(E-E_0)$  (2.12) gefaltet mit dem Photopeak  $P(E)$  entspricht (2.13). Ihre Breite entspricht dabei der Halbwertsbreite des Photopeaks.

$$\Theta(E) = 1 - \text{heaviside}(E - E_0) = \begin{cases} 1: E < E_0 \\ 0: E > E_0 \end{cases} \quad (2.12)$$

$$Bk(E) = \Theta(E) \otimes P(E) = \int_{-\infty}^{\infty} P(E') \Theta(E - E') dE' \quad (2.13)$$

In der PAS wird dieser Untergrund in vielen Fällen entweder ganz ignoriert oder durch eine Gerade angenähert, was die Auswertung der Linienform-Parameter verfälscht. Eine andere, sinnvolle Möglichkeit zur Beschreibung ist durch das stochastische Integral  $Bk_{IS}(E)$  gegeben:

$$Bk_{IS}(B_n) = A_S - \frac{(A_S - A_C) \sum_{i=0}^n B_i}{\sum_{i=0}^N B_i} \quad (2.14)$$

$A_S$  ist hierbei die Höhe der Stufe und  $A_C$  der Kontinuums-Untergrund, der nach [164] im Bereich des Photopeaks als konstant angenommen werden kann.  $B_n$  bezeichnet die Zählrate im  $n$ -ten Bin des diskreten Energiespektrums, während  $N$  die Gesamtanzahl der Bins im Photopeak ist. Das Stochastische Integral liefert eine genaue Beschreibung des Untergrundes, hat aber den Nachteil, daß es nicht parametrisierbar ist. Da für die Bestimmung der Stufe nur deren Intensität, Breite und Position wesentlich sind, läßt sich das Faltungsintegral unter der Annahme eines Gauß-förmigen Peaks geschlossen berechnen:

$$Bk(E) = \int_{-\infty}^{\infty} A_G \exp\left(-4 \ln(2) \left(\frac{E' - E_0}{\sigma}\right)^2\right) \Theta(E - E') dE' = -\frac{A_G \sigma \sqrt{\pi}}{4\sqrt{\ln(2)}} \operatorname{erf}\left(\frac{2\sqrt{\ln(2)}(E - E_0)}{\sigma}\right) \quad (2.15)$$

$A_G$  ist hier die Amplitude des Peaks,  $\sigma$  seine Breite und  $E_0$  seine Position, während  $\operatorname{erf}()$  die Error-Funktion bezeichnet. Führt man noch die Anpaßparameter  $A_S$  und  $A_C$  ein, die die gleiche Bedeutung wie in der Definition des stochastischen Integrals besitzen, läßt sich  $Bk(E)$  in der Form der inversen Error-Funktion schreiben:

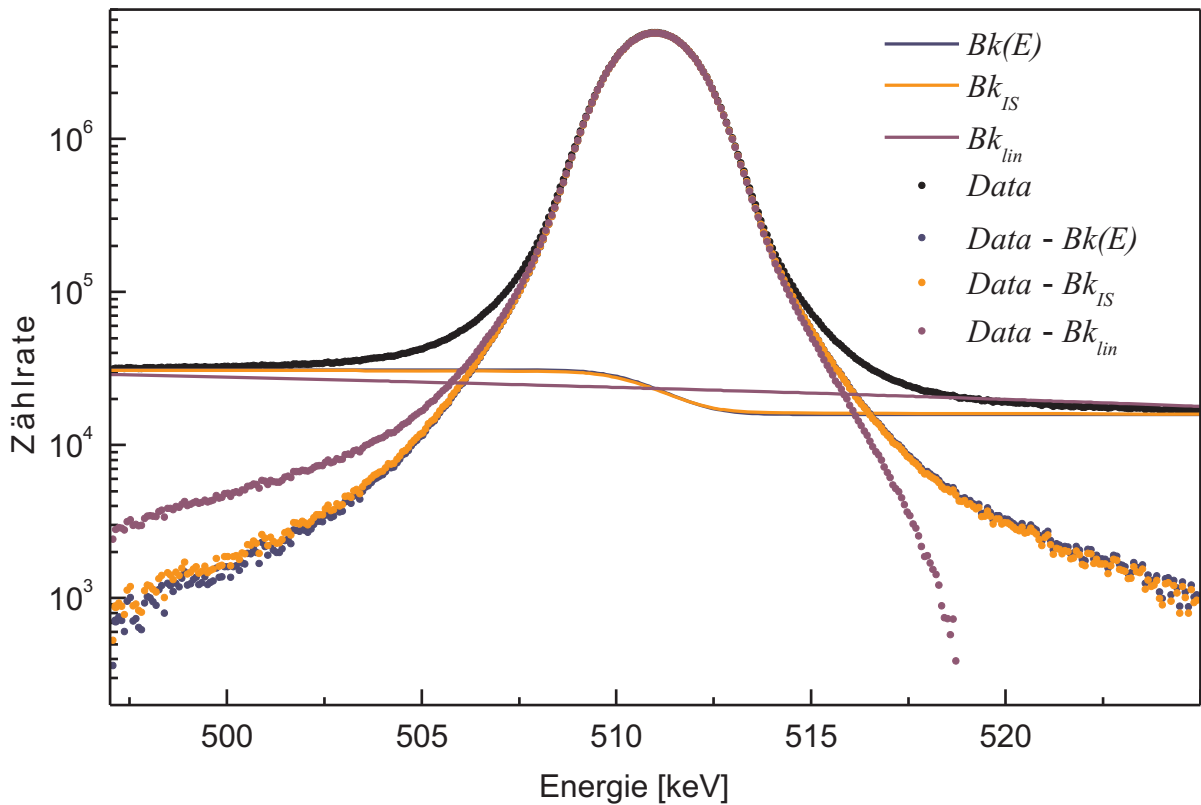
$$Bk(E) = \frac{A_S}{2} \left(1 - \operatorname{erf}\left(2\sqrt{\ln(2)} \frac{(E - E_0)}{\sigma}\right)\right) + A_C \quad (2.16)$$

Die Beschreibung des gesamten Peaks  $P(E)$  ergibt sich dann als Summe einer Gauß-Funktion und des Untergrundes, wobei für beide dieselbe Position  $E_0$  und Breite  $\sigma$  angesetzt wird:

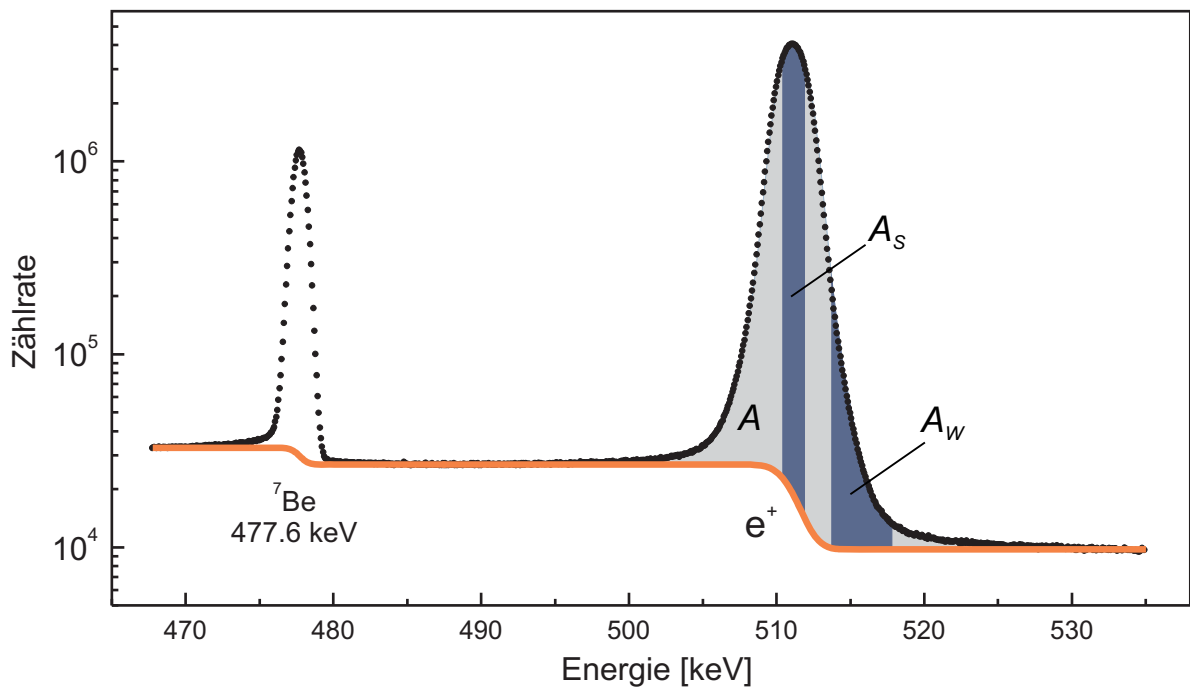
$$P(E) = A_G \exp\left(-4 \ln(2) \left(\frac{E - E_0}{\sigma}\right)^2\right) + \frac{A_S}{2} \left(1 - \operatorname{erf}\left(2\sqrt{\ln(2)} \frac{(E - E_0)}{\sigma}\right)\right) + A_C \quad (2.17)$$

$P(E)$  ist stetig und differenzierbar und kann über den Least-Square-Algorithmus von Levenberg und Marquardt [163,165] mit den 5 freien Parametern  $E_0$ ,  $\sigma$ ,  $A_G$ ,  $A_S$  und  $A_C$  an die Daten angepaßt werden. Die Verwendung von Beschreibungen wie (2.16) geht auf die  $\gamma$ -Spektroskopie der frühen 1980er Jahre zurück, als erstmals Computer mit genügend Rechenleistung zur Verfügung standen, um kompliziertere Anpaßrechnungen an die Meßdaten durchzuführen [166 - 169].

Abbildung 2.14 zeigt verschiedene Methoden zur Bestimmung des Untergrundes im Vergleich. Das stochastische Integral und die inverse Error-Funktion unterscheiden sich kaum im Ergebnis und liefern brauchbare bereinigte Daten für die Auswertung von S- und W-Parameter. Beim Abzug eines linearen Untergrundes ergibt sich aber eine Asymmetrie in den bereinigten Daten und schlimmstenfalls negative Werte auf der rechten Seite des Peaks. Zur Bestimmung des S-Parameters mag eine lineare Korrektur in manchen Fällen (schmale Peakgrenzen) noch zu gebrauchen sein, zur Auswertung des W-Parameters ist sie jedoch ungeeignet.



**Abbildung 2.14:** Verschiedene Methoden zur Bestimmung des Untergrunds im Vergleich (Indiumphosphid InP): — Inverse Error-Funktion nach (2.17), — stochastisches Integral (2.14), — linearer Untergrund. ● Rohdaten. Untergrundbereinigte Daten: ● mit (2.17), ● mit (2.14), ● mit linearem Untergrund. (2.14) und (2.17) liefern beide ein brauchbares Ergebnis, das sich nur geringfügig unterscheidet. Der lineare Untergrund ist unbrauchbar.

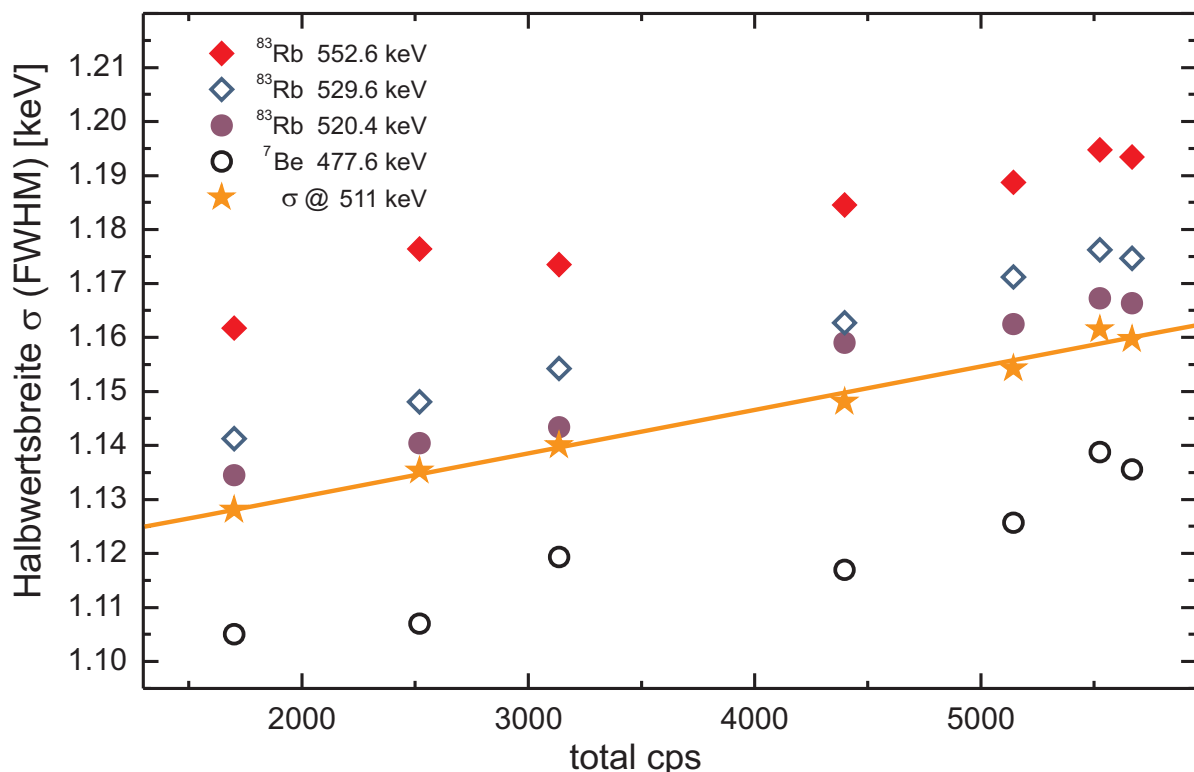


**Abbildung 2.15:** Energiespektrum von InP mit  ${}^7\text{Be}$  Monitorlinie. Die orange Linie zeigt den nach (2.17) bestimmten Untergrund. Im Annihilationspeak sind die Flächen zur Auswertung des S- bzw. W-Parameters blau markiert, während die verwendete Peakfläche grau hinterlegt ist.

Im Gegensatz zu (2.14) liefert (2.17) mit hoher Präzision die Position des Peaks. Angewandt auf Photopeak und Monitorlinie einer Serie von Spektren, lassen sich über die Anpassung von (2.17) gute Ausgangswerte zur Bestimmung einer Drift im Meßaufbau ermitteln, und zur Korrektur wie in Kapitel 2.5.1 beschrieben verwenden. Abbildung 2.15 zeigt ein Dopplerspektrum mit Monitorlinie. Die Bereiche zur Berechnung von S- und W-Parameter sind farbige unterlegt.

### 2.5.3 Energieauflösung bei 511 keV

Für viele Überlegungen ist die Kenntnis der Energieauflösung und auch der Auflösungsfunktion bei 511 keV von Bedeutung. Aber gerade wegen der Dopplerverbreiterung ist diese im Annihilationspeak nicht direkt der Messung zugänglich. Sie kann aber indirekt über einen Satz von  $\gamma$ -Linien in der Nähe von 511 keV bestimmt werden, wobei darauf geachtet werden muß, daß sich die  $\gamma$ -Linien nicht überschneiden. Das Radioisotop  $^{83}\text{Rb}$  besitzt drei geeignete  $\gamma$ -Linien bei 520.4, 529.6 und 552.6 keV [25]. Es läßt sich über eine ( $\alpha,2n$ ) Reaktion aus dem natürlichen Brom-Isotop  $^{81}\text{Br}$  herstellen ( $\sigma_{\text{max}} = 1300$  mbarn bei 25 MeV/Nukleon) [170] und hat eine Halbwertszeit von 86.2 d. In Kombination mit  $^7\text{Be}$  erhält man einen Satz von vier um 511keV verteilten Linien. Nun sinkt die Energieauflösung mit zunehmender Gesamtbelastung des Ge-Detektors, so daß sich über die Variation der Quellstärke eine Meßreihe der Auflösungsfunktionen gegen die Gesamtzählrate aufstellen läßt (siehe Abbildung 2.16).



**Abbildung 2.16:** Halbwertsbreite von vier  $\gamma$ -Linien ( $^7\text{Be}$  und  $^{83}\text{Rb}$ ) in der Nähe von 511 keV gegen die Zählrate pro Sekunde im Spektrum aufgetragen. Aus den Daten wird die Energieauflösung bei 511 keV nach (2.19) berechnet, wobei der Koeffizient  $\alpha$  für jeden Detektor individuell angepaßt wird. Die orangefarbenen Symbole (★) zeigen die errechnete Halbwertsbreite bei 511 keV (mit Regressionsgerade (—) zur Bestimmung von  $f(477.6, 511)$ ).

Mit dem Ansatz eines energieabhängigen Faktors (2.18) kann die Halbwertsbreite  $\sigma_{511}$  bei 511 keV aus den Halbwertsbreiten der  $\gamma$ -Linien interpoliert werden. In 1. Näherung hängt die Änderung der Halbwertsbreite in einem engen Energiebereich von der Quadratwurzel der Energie ab, so daß man für  $f(E_1, E_2)$  Gleichung (2.19) ansetzen kann:

$$\sigma(E_2) = f(E_1, E_2)\sigma(E_1) \quad (2.18)$$

$$f(E_1, E_2) = \sqrt{\frac{1 + \alpha E_2}{1 + \alpha E_1}} \quad (2.19)$$

Der Koeffizient  $\alpha$  wird über eine Least-Square-Anpassung von (2.19) über den gesamten Datensatz bestimmt und sein Wert – in diesem Falle  $f(477.6, 511) = 1.023(3)$  – ist nur bedingt auf einen anderen Detektor übertragbar. Allerdings ist  $\alpha$  unabhängig von der zählratenabhängigen Auflösung des Spektrometers, so daß  $\sigma_{511}$  im laufenden Meßbetrieb aus der Monitorlinie errechnet werden kann. Ist die Halbwertsbreite bei 511 keV erst einmal bekannt, kann die Auflösungsfunktion am Photopeak aus der Auflösungsfunktion der Monitorlinie mit hoher Genauigkeit durch Faltung bestimmt werden.

## 2.6 Die chemische Umgebung der Fehlstelle

Zusätzlich zu Informationen über die Fehlstellendichte enthält das Dopplerspektrum Informationen über die chemische Umgebung des Zerstrahlungsortes. Chemische Umgebung bedeutet hier die nächsten Nachbaratome einer Positronenfalle. Die Zerstrahlung des Positrons mit Elektronen aus deren Elektronenhülle führt zu einer Impulsverteilung, die charakteristisch für jedes chemische Element ist. So können die eine Positronenfalle umgebenden Atome in vielen Fällen identifiziert werden. Die "kernnahen" Elektronen aus der Hülle sind jedoch durch die umgebenden Valenzelektronen stark für das Positron abgeschirmt, so daß sie nur zu einem geringen Teil zur Gesamtstatistik des Annihilationspeaks beitragen und dieser Anteil zusätzlich von einem um Größenordnungen höheren Untergrund überdeckt ist.

Über die chemische Sensitivität des Positrons konnten in Halbleitern [171] und intermetallischen Verbindungen [172] Leerstellen auf den einzelnen Untergittern identifiziert werden, sowie Ausscheidungssequenzen in Legierungen beobachtet werden [173,174].

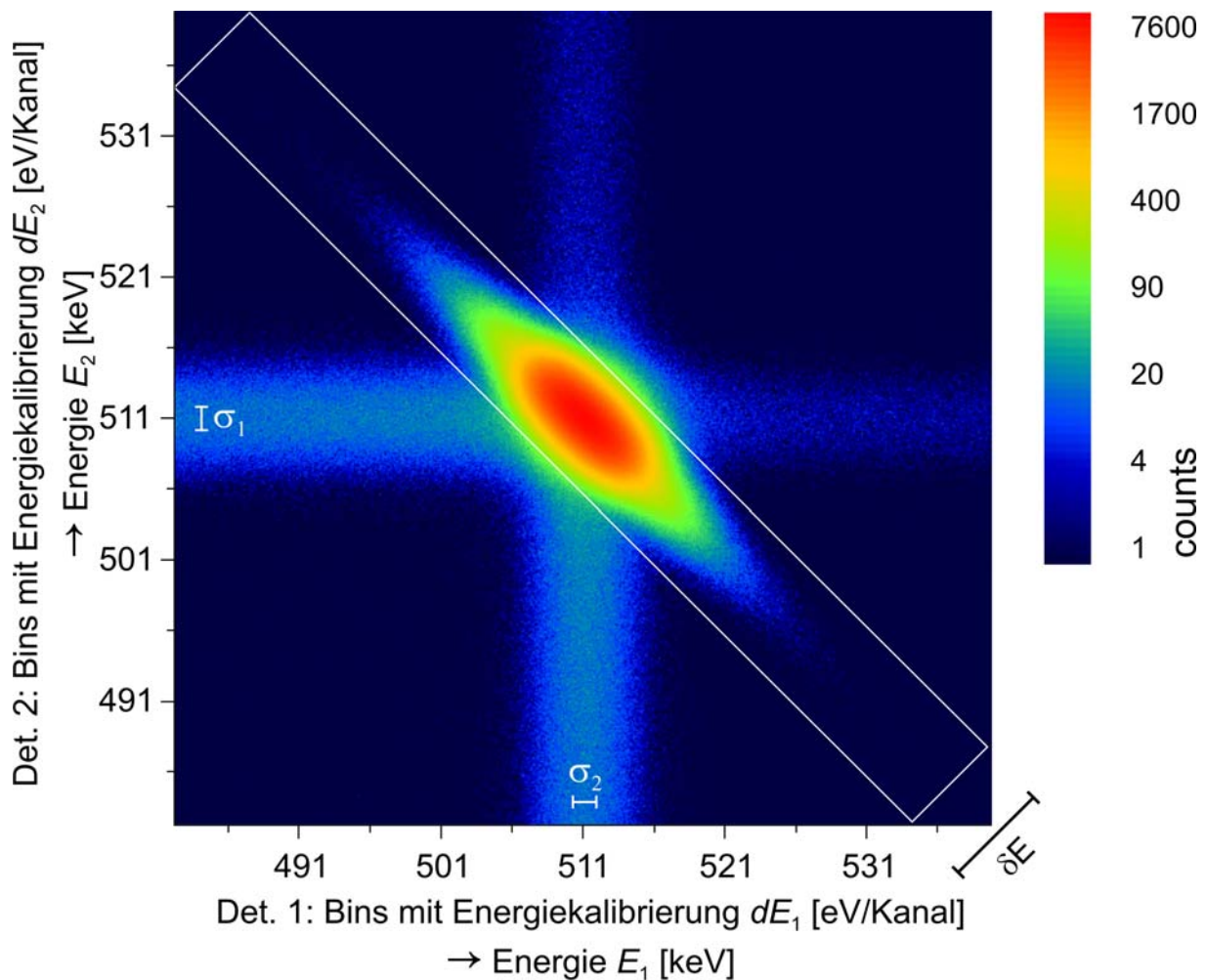
Es gibt zwei Methoden, den chemisch sensitiven Teil des Doppler-Spektrums zu extrahieren: Die Unterdrückung des Untergrundes durch die Messung beider Annihilationsquanten in 180°-Koinzidenz (Coincidence Doppler Broadening Spectroscopy CDBS [175 - 177]) sowie die genaue mathematische Beschreibung und anschließende Subtraktion des Untergrundes (High Momentum Analysis: HMA [29,178,179]).

Zusätzlich zur Zerstrahlung mit kernnahen Hüllenelektronen spielt die Annihilation mit Valenzelektronen noch eine, wenn auch geringe, Rolle im Bereich hoher Impulse. Die Hochimpulsteile ihrer Wellenfunktionen reichen durchaus in den chemisch sensitiven Bereich des Spektrums. Diese Anteile können allerdings rein experimentell nicht vom chemisch sensitiven Teil abgetrennt werden und sind nur über eine numerische Rechnung zugänglich [180].

## 2.6.1 Koinzidenzmessungen

Die Verwendung zweier Detektoren in  $180^\circ$ -Koinzidenz ermöglicht es, zusammengehörende Paare von  $\gamma$ -Quanten herauszufiltern, die aus ein und demselben Annihilationsereignis stammen. Dabei bewirkt der Longitudinalteil des Elektronenimpulses bei einem Quant eine Verschiebung zu niedrigerer Energie ( $E_1 = m_0c - \Delta E$ ), während das andere um denselben Betrag zu höherer Energie verschoben ist ( $E_2 = m_0c + \Delta E$ ).

Trägt man die koinzidenten Ereignisse in einem zweidimensionalen Plot gegen die Energien der beiden Detektoren auf, liegen die zusammengehörigen  $\gamma$ -Paare auf der durch  $E_1 + E_2 = 2m_0c$  definierten Diagonalen in der durch die Energieachsen aufgespannten Fläche (siehe Abbildung 2.17).

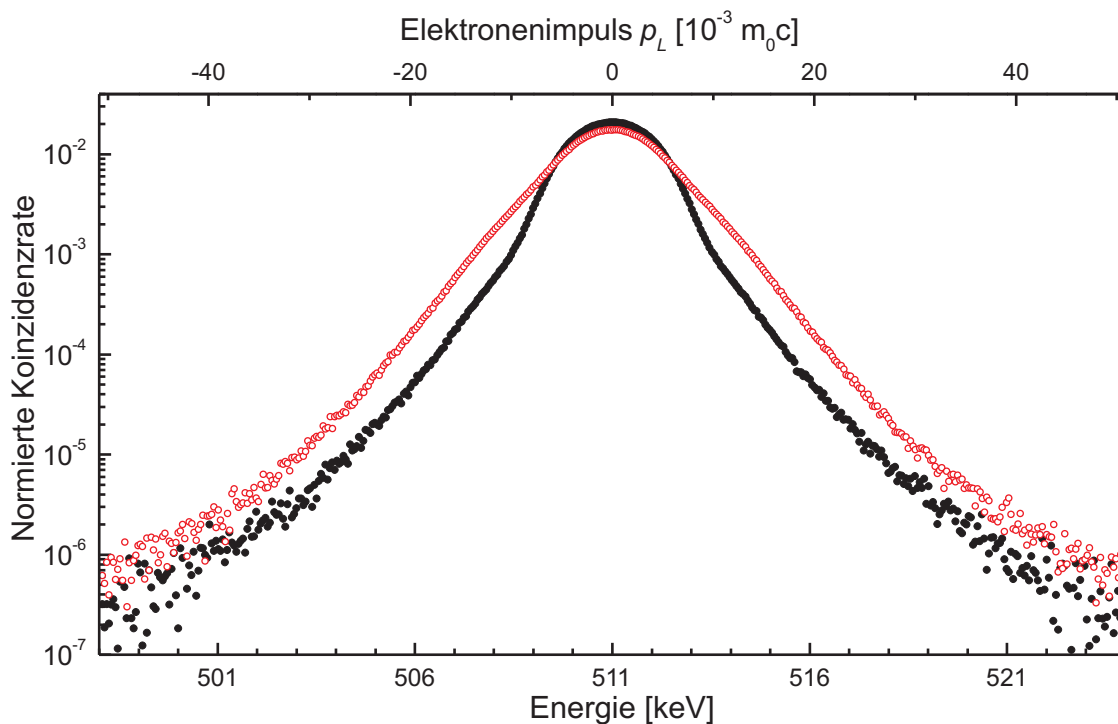


**Abbildung 2.17:** Koinzidenz-Doppler Spektrum (CDBS) von reinem ausgeheiltem Aluminium aufgenommen an der Positronenquelle NEPOMUK des Forschungsreaktors FRM II in Garching. Die koinzidenten Ereignisse befinden sich in einem diagonalen Bereich der Breite  $\delta E$  (weiß eingerahmt). Dieser wird bei der Auswertung auf seine Längsachse projiziert, so daß sich ein eindimensionales Spektrum ergibt (Abbildung 2.18). Die erhaltenen Ergebnisse hängen dabei stark von den Energiekalibrierungen  $dE_1$ ,  $dE_2$  und  $\delta E$  ab. Der kreuzförmige Untergrund wird durch zufällige Koinzidenzen zwischen den Annihilationsquanten in einem Detektor und dem Gammauntergrund im anderen erzeugt. (Matrixgröße  $512 \times 512$  Kanäle, Logarithmische Falschfarbendarstellung, Gesamtereignisse:  $1.1 \times 10^7$ , Energieauflösung:  $\sigma_1 = 1.36$  keV,  $\sigma_2 = 1.35$  keV, Energiekalibrierung:  $dE_1 = 56.21$  eV/Kanal  $dE_2 = 56.18$  eV/Kanal).



Aufgrund der endlichen Energieauflösung  $\sigma_1$  und  $\sigma_2$  der beiden Spektrometer sind die koinzidenten Ereignisse quer zur Diagonalen verschmiert, so daß man das untergrundbereinigte Doppler-Spektrum durch die Projektion eines diagonalen Streifens der Breite  $\delta E$  auf eine Dimension erhält. Mit CDBS gewonnene Spektren enthalten bei ausreichender Statistik und geringem Laboruntergrund Informationen über die Verteilung der Elektronenimpulse bis zu  $60 \times 10^{-3} m_0 c$ , eine Region, in der die Spektren der Einzeldetektoren von einem um drei Größenordnungen höheren Untergrund überlagert sind [181].

Praktisch werden CDB-Spektren mit einer analogen Koinzidenz-Elektronik aufgenommen. Die koinzidenten Ereignisse werden digitalisiert und in einer zweidimensionalen Matrix einsortiert, deren Bins einem Energieintervall entsprechen, dessen Breite durch die Energiekalibrierungen  $dE_{1,2}$  der beiden Detektoren gegeben ist. Der für die Auswertung interessante Bereich liegt symmetrisch um die Zentren des Annihilationspeaks und wird durch eine quadratische Matrix  $M$  der Größe  $n \times n$  repräsentiert. Jedes Element dieser Matrix enthält die Anzahl der Ereignisse im Energieintervall  $[E_{i-1}, E_i] \times [E_{j-1}, E_j]$ , wobei  $E_i = E_{i-1} + dE_1$  und  $E_j = E_{j-1} + dE_2$  ist. Die Projektion auf eine Dimension erfolgt in einem rechteckigen Bereich der Breite  $\delta E$  um die durch  $E_1 + E_2 = 2m_0 c$  definierten Gerade. Dieser Bereich ist in Abbildung 2.17 als weißes Rechteck eingezeichnet.



**Abbildung 2.18:** Projektion der Al-Daten aus Abbildung 2.17 (●) und ausgeheiltem Kupfer (○) auf eine Dimension nach dem unten beschriebenen Algorithmus (siehe (2.25), Breite des Projektionsfensters  $\delta E = 2.8$  keV). Zum Vergleich sind beide Spektren auf Fläche 1 normiert.

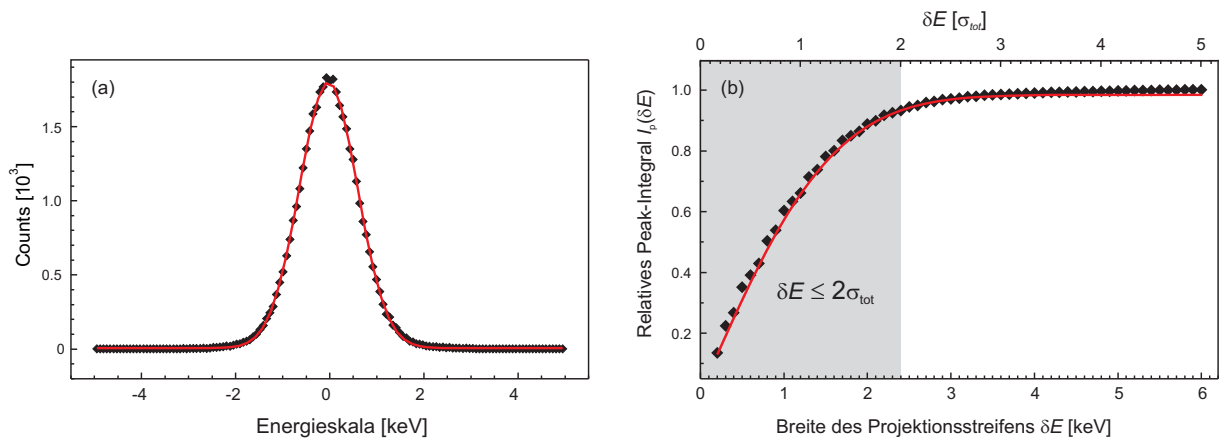
Der kreuzförmige Untergrund in Abbildung 2.17 wird durch zufällige Koinzidenzen mit dem von der Annihilationsstrahlung erzeugten Untergrund (siehe Kap. 2.6.2) und dem Gamma-Untergrund des Labors verursacht. Die höhere Zählrate auf den niederenergetischen Seiten wird durch Kleinwinkel-Compton-Streuung verursacht [182] (siehe Kap. 2.5.2). Der linke bzw. untere Arm des Kreuzes zeigt dabei höhere Zählraten als der rechte bzw. obere. Abbildung 2.18 zeigt die eindimensionalen Spektren von Al und Cu, die mittels Projektion aus den in Abbildung 2.17 gezeigten Daten berechnet wurden. Zum Vergleich sind beide

Spektren auf Fläche 1 normiert. Cu – im Gegensatz zu Al ein Übergangsmetall – zeigt ein deutlich breiteres Spektrum, bei dem der Anteil oberhalb von  $8 \times 10^{-3} m_0c$  durch die Zerstrahlung mit 3d-Elektronen verursacht wird.

Im Allgemeinen sind die Kalibrierungen der beiden Detektoren nicht gleich ( $dE_1 \neq dE_2$ ), was signifikante Auswirkungen auf die resultierende Doppler-Kurve hat, wenn es im Projektionsalgorithmus ignoriert wird. Des weiteren hängt die Qualität der Resultate von der Wahl der Breite  $\delta E$  des Projektionsbereichs um die Diagonale ab. Der Einfluß dieser Größen auf das resultierende Doppler-Spektrum wird im weiteren anhand der Spektren von Kupfer und Aluminium diskutiert. Im Anschluß wird ein Projektionsalgorithmus skizziert, der die Abweichungen in der Kalibrierung der beiden Detektoren berücksichtigt.

## Fehlerquellen bei der Datenauswertung

Die Auswahl der Breite des Projektionsfensters  $\delta E$  wirkt sich deutlich auf das eindimensionale Doppler-Spektrum aus. Ein zu schmaler Streifen verwirft zuviel Statistik, während ein zu breiter Streifen das Spektrum mit Untergrund-Ereignissen kontaminiert, und damit die Ergebnisse verfälscht. In der Literatur werden sehr unterschiedliche Werte für  $\delta E$  angegeben, die von 0.9 keV bis 2.4 keV reichen (siehe z.B. [183] und [184]) – soweit  $\delta E$  überhaupt angegeben wird. Für eine Vergleichbarkeit der Ergebnisse von unterschiedlichen CDB-Spektrometern ist allerdings die Kenntnis von  $\delta E$  unabdingbar. Gebauer et al. untersuchten den Einfluß von  $\delta E$  auf den W-Parameter am Beispiel von GaAs, und fanden keine Abhängigkeit bis 3 keV, jenseits davon aber einen Anstieg von des W-Parameters mit  $\delta E$  [185].



**Abbildung 2.19:** (a): Auflösungsfunktion des Koinzidenzsystems, bestimmt aus den zweidimensionalen Daten von Aluminium. Aus der Breite eines Gauß-Fits (rote Linie) bestimmt sich die Gesamtauflösung des Systems, in diesem Fall  $\sigma_{tot} = 1.23$  keV. (b): Anzahl der koinzidenten Ereignisse im projizierten Spektrum von Al in Abhängigkeit von  $\delta E$ , relativ zum Wert bei  $\delta E = 6$  keV (schwarze Symbole). Die rote Kurve zeigt einen Fit mit einer Error-Funktion nach (2.20). Die obere Achse gibt die Energie in Einheiten von  $\sigma_{tot}$  an. Die Region, in der der Datenverlust 5% überschreitet, ist grau unterlegt.

Es gilt also, ein Optimum für  $\delta E$  zu finden. Die untere Grenze für  $\delta E$  hängt von der Gesamtauflösung  $\sigma_{tot}$  des Systems ab. Nach Krusemann et al. kann eine gute Abschätzung für  $\sigma_{tot}$  mit einem Gauß-Fit über die durch  $E_1 - E_2 = 0$  definierte Gerade gefunden werden [183], welche senkrecht zur Koinzidenzgeraden liegt. Das Spektrum entlang dieser Geraden enthält keine physikalische Information über die Probe, bildet aber die Auflösungsfunktion des Systems ab. Abbildung 2.21 (a) zeigt die aus den Al-Daten extrahierte Auflösungsfunktion. Für die Kup-

ferdaten ergibt sich, innerhalb der statistischen Fehler, ein identischer Verlauf, weshalb die Daten hier nicht gezeigt sind. In beiden Datensätzen wurde eine Gesamtauflösung von  $\sigma_{\text{tot}} = 1.23 \text{ keV}$  gefunden.

Der Einfluß von  $\delta E$  auf die Qualität der projizierten Spektren wurde durch Variation von  $\delta E$  zwischen 0.5 und 6.0 keV bei der Projektion untersucht. Ebenso wie bei der Bestimmung der Auflösungsfunktion konnte kein signifikanter Unterschied zwischen den Al- und Cu-Daten festgestellt werden. In Abbildung 2.19 (b) ist das Integral  $I_p(\delta E)$  über den Koinzidenz-Peak relativ zum Wert bei  $\delta E = 6.0 \text{ keV}$  in Abhängigkeit von  $\delta E$  dargestellt (schwarze Symbole). Für  $\sigma_{\text{tot}} \lesssim 3\delta E$  folgt  $I_p(\delta E)$  fast exakt einer Error-Funktion (rote Linie in Abbildung 2.19 (b)), wie es bei einer Gauß-förmigen Auflösungsfunktion zu erwarten ist:

$$I_p(\delta E) = \text{erf}\left(\frac{2\sqrt{\ln(2)}\delta E}{\sigma_{\text{tot}}}\right) \quad (2.20)$$

Bei  $\delta E = \sigma_{\text{tot}}$  enthält  $I_p(\delta E)$  67% der ursprünglichen Daten, bei  $\delta E = 2\sigma_{\text{tot}}$  sind es 95%. Um den Datenverlust gering zu halten, sollte also  $\delta E > 2\sigma_{\text{tot}}$  gewählt werden. Für Werte oberhalb von  $3\delta E$  weicht  $I_p(\delta E)$  geringfügig von (2.20) ab, da hier der Untergrund aus zufälligen Koinzidenzen eine Rolle zu spielen beginnt. Dieser Untergrund hat einen deutlichen Einfluß auf die Linienform des projizierten Doppler-Spektrums, der gut mit Hilfe der Linienformparameter quantifiziert werden kann. Abbildung 2.20 zeigt S- und W-Parameter in Abhängigkeit von  $\delta E$  für die Aluminium- und Kupfer-Daten.

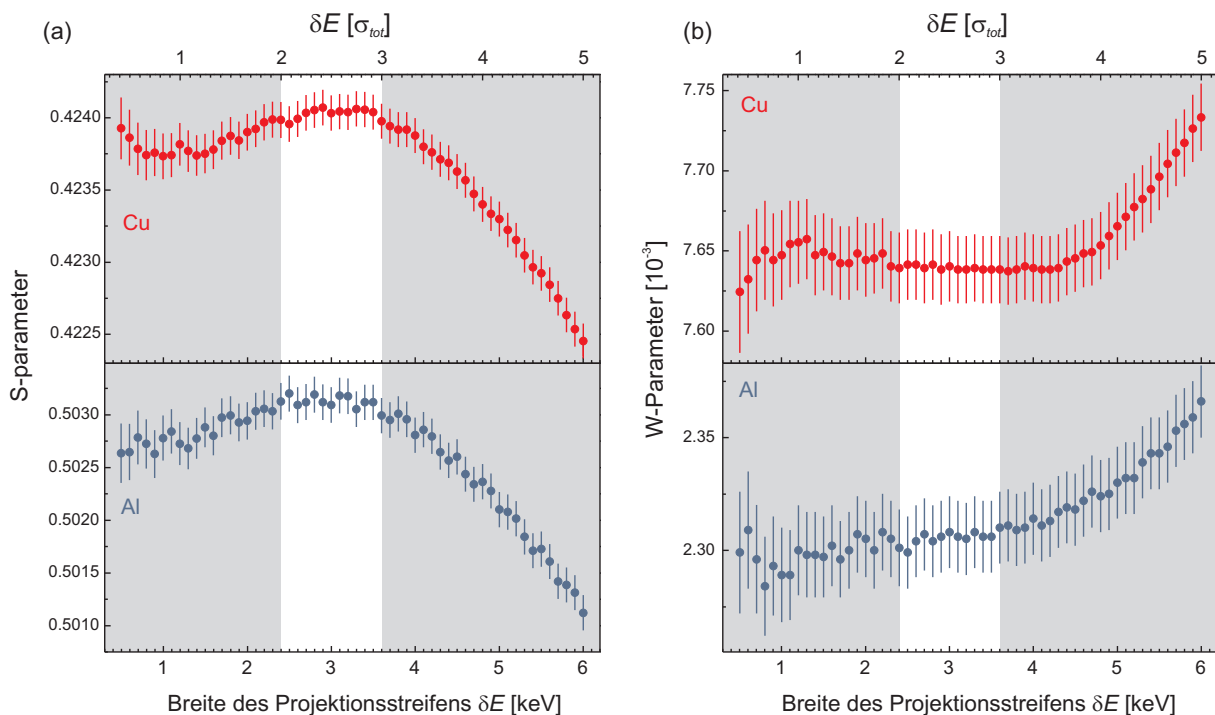


Abbildung 2.20: Abhängigkeit der Linienformparameter der projizierten Spektren von  $\delta E$  für Al (blau) und Cu (rot). (a): S-Parameter (Grenzen:  $2.74 \times 10^{-3} m_0c$ ); (b): W-Parameter (Grenzen:  $16 - 26 \times 10^{-3} m_0c$ ). Die grau unterlegten Flächen zeigen die Bereiche, in denen ein signifikanter Teil der Koinzidenzen abgeschnitten wird (jeweils links) oder der Untergrund die Linienform verfälscht (jeweils rechts).

Für beide Metalle zeigt der S-Parameter einen ähnlichen Verlauf mit einem Maximum zwischen  $\delta E = 2\sigma_{\text{tot}}$  und  $\delta E = 3\sigma_{\text{tot}}$ . In ausgeheilten Metallen wird der S-Parameter größtenteils durch Zerstrahlungsereignisse mit Valenzelektronen bestimmt, weshalb die relative Änderung mit  $\delta E$  weitestgehend unabhängig vom untersuchten Material ist. Oberhalb von  $3\sigma_{\text{tot}}$  nimmt der S-Parameter mit ansteigendem  $\delta E$  ab, da der Untergrundanteil im Spektrum steigt, was zu einer künstlichen Verbreiterung des Peaks führt. Im Verlauf des W-Parameters unterscheiden sich die beiden Metalle voneinander, da die Annihilation mit kernnahen Elektronen nicht vom Beitrag des Untergrunds getrennt werden kann. Übereinstimmend ergibt sich jedoch ein Anstieg des W-Parameters mit  $\delta E$  oberhalb von  $3\sigma_{\text{tot}}$ . Für Al entspricht der Verlauf des W-Parameters  $W(\delta E)$  den Ergebnissen von [185].

Aus diesen Ergebnissen können probenunabhängige Grenzen für die Breite des Projektionsfensters gewonnen werden:  $\delta E$  sollte im Intervall  $2\sigma_{\text{tot}} < \delta E < 3\sigma_{\text{tot}}$  liegen, um einerseits keine koinzidenten Signale abzuschneiden und andererseits die Kontamination der Daten mit Untergrundereignissen gering zu halten.

Neben  $\delta E$  spielen die Energiekalibrierungen  $dE_1$ ,  $dE_2$  der Detektoren bei der Projektion auf die Diagonale eine entscheidende Rolle.  $dE_{1,2}$  gibt dabei das Energieintervall an, das in einem zweidimensionalen Bin enthalten ist. Zum besseren Verständnis definiert man den Winkel  $\varphi$  der Diagonalen, auf der die koinzidenten Ereignisse liegen, bezüglich des von  $E_1$  und  $E_2$  aufgespannten Koordinatensystems:

$$\varphi = \arctan\left(\frac{dE_2}{dE_1}\right) \quad (2.21)$$

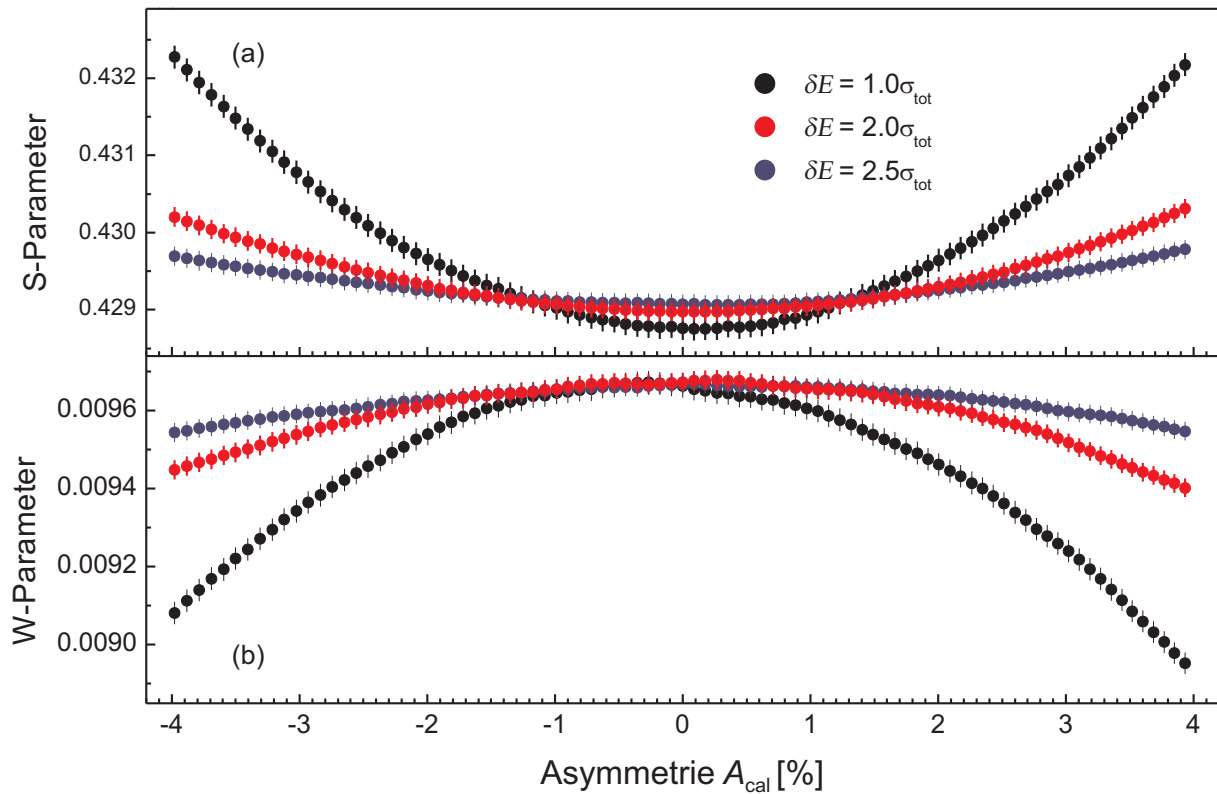
Man beachte, daß  $\varphi$  hier der Einfachheit halber positiv definiert ist. Sind die Energiekalibrierungen  $dE_1$ ,  $dE_2$  beider Detektoren gleich, gilt  $\varphi = 45^\circ$ . Sind sie nicht gleich, repräsentieren auch die Kantenlängen eines Bins nicht dasselbe Energieintervall, und die Diagonale liegt nicht genau bei  $45^\circ$ , sondern weicht um den Winkel  $\delta\varphi$  davon ab:

$$\delta\varphi = \arctan\left(\frac{dE_2 - dE_1}{dE_2 + dE_1}\right), \quad \varphi = 45^\circ + \delta\varphi \quad (2.22)$$

Bleibt dies bei der Projektion unberücksichtigt, bewirken bereits kleine Abweichungen von  $45^\circ$  ( $\delta\varphi < 0.5^\circ$ ) erhebliche Artefakte im projizierten Spektrum. Dies wurde systematisch untersucht, indem die Kalibrierung eines Detektors ohne Berücksichtigung des Unterschieds zwischen  $dE_1$  und  $dE_2$  verändert. Um die Ergebnisse von den Absolutwerten  $dE_{1,2}$  unabhängig zu machen, wird die Asymmetrie  $A_{\text{cal}}$  eingeführt:

$$A_{\text{cal}} = \frac{dE_2 - dE_1}{dE_2 + dE_1} \quad (2.23)$$

Abbildung 2.21 zeigt die Abhängigkeit der Linienformparameter S und W von  $A_{\text{cal}}$  am Beispiel eines Spektrums von reinem ausgeheiltem Kupfer für drei verschiedene Werte von  $\delta E$  (Für Al erhält man ein ähnliches Resultat). Ein von Null verschiedenes  $A_{\text{cal}}$  bewirkt signifikante Veränderungen in der Form der Doppler-Kurve, wenn es nicht bei der Auswertung berücksichtigt wird. Annihilationsereignisse mit hohen Elektronenimpulsen werden bei der Projektion unvollständig aufsummiert, während der Bereich um das Zentrum des Peaks weitgehend unbeeinflusst bleibt. Dadurch erscheint der W-Parameter zu niedrig und auch das Gesamtintegral wird unterbewertet, was sich in einem zu hohen S-Parameter widerspiegelt.



**Abbildung 2.21:** Einfluß der Asymmetrie in den Energiekalibrierungen  $A_{\text{cal}}$  auf die Linieformparameter S und W am Beispiel von reinem ausgeheiltem Kupfer für drei Werte von  $\delta E$  (Energieauflösung der Spektrometer bei 511 keV:  $\sigma_1 = 1.377$  bzw.  $\sigma_2 = 1.381$  keV). Es wurden die selben Grenzen wie in Abbildung 2.20 verwendet.

Die obigen Resultate demonstrieren, daß eine Auswertungsroutine für CDB-Spektren nicht einfach wie allgemein üblich bei  $45^\circ$  arbeiten kann, sondern die Parameter der einzelnen Detektoren explizit berücksichtigen muß. Ein solcher Algorithmus wird im Weiteren skizziert:

### Ein Projektionsalgorithmus

Aus den obigen Überlegungen zu möglichen Fehlerquellen bei der Auswertung von CDBS-Daten wird klar, daß es für die Projektion nicht ausreichend ist, diskrete Werte aus M aufzusummieren. Ein hinreichend genauer Projektionsalgorithmus muß die Werte des Dopplerspektrums durch Interpolation aus den Rohdaten bestimmen.

Bei einer CDBS-Messung werden, zusätzlich zu den Koinzidenzdaten, auch die Dopplerspektren der einzelnen Detektoren im Rohdatensatz gespeichert. Aus diesen Einzel-Spektren werden über eine Anpassung der Peakfunktion (2.17) die Zentren der Annihilations-Peaks sowie die Energieauflösungen  $\sigma_{1,2}$  der beiden Detektoren bestimmt. Wird ein Monitor-Isotop, wie z.B.  $^7\text{Be}$  mitgemessen, können die Spektren automatisch kalibriert werden. Im anderen Fall müssen die Energiekalibrierungen explizit angegeben werden.

Die Rohdaten werden so in eine quadratische Matrix M der Größe  $N \times N$  einsortiert, daß sich das Zentrum des zweidimensionalen Koinzidenz-Peaks in deren Mitte  $M_{N/2, N/2}$  befindet.  $N$  sollte dabei groß genug gewählt werden, um alle relevanten Ereignisse in M zu speichern.

Das Projektionsfenster mit der Breite  $\delta E$  wird durch eine zweite Matrix  $D$  der Größe  $n \times m$  dargestellt, die diagonal in  $M$  liegt (siehe Abbildung 2.22). Das Energieintervall  $dE_D$ , das von einem Element von  $D$  repräsentiert wird, wird durch  $n$  vorgegeben:

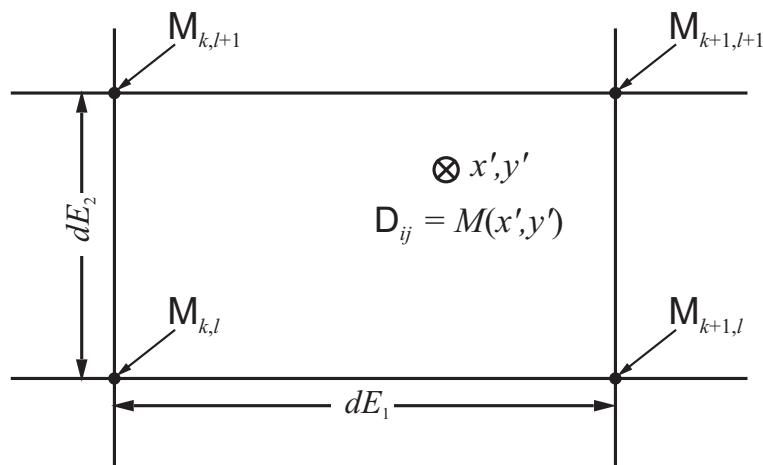
$$dE_D = \frac{\delta E}{n} \quad (2.24)$$

Die Größe  $n$  ist prinzipiell nicht festgelegt, sollte aber so gewählt werden, daß  $dE_D$  in der Nähe von  $dE_1$  und  $dE_2$  liegt. Ist  $dE_D$  wesentlich größer als  $dE_{1,2}$ , geht Information verloren, während ein kleineres  $dE_D$  keinen zusätzlichen Informationsgewinn bringt, aber den Rechenaufwand erhöht. Die Größe  $m$  ergibt sich dann aus  $n$  zu  $m = N - n$ . Es gibt nun eine eindeutige Transformation  $T$ , die jedem Element  $D_{ij}$  von  $D$  nichtganzzahlige Koordinaten  $x'$  und  $y'$  in der ursprünglichen Matrix  $M$  zuordnet.  $T$  berücksichtigt die durch Unterschiede in der Kalibrierung hervorgerufene Verkippung:

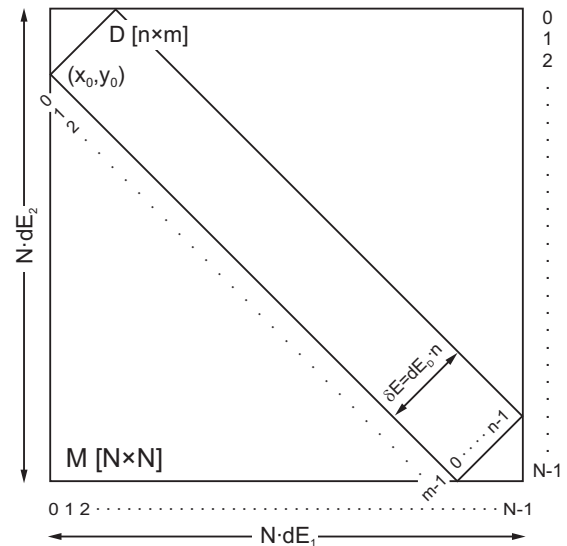
$$x' = x_0 + (j \cos \varphi + i \sin \varphi) \frac{dE_D}{dE_1}, \quad y' = y_0 + (j \sin \varphi - i \cos \varphi) \frac{dE_D}{dE_2} \quad (2.25)$$

$$i \in \{0, n-1\}, \quad j \in \{0, m-1\}$$

$x_0$ , bzw.  $y_0$  sind dabei die Koordinaten der linken Ecke des Projektionsfensters in Einheiten von  $dE_1$  bzw.  $dE_2$ .  $\varphi$  ist der in (2.21) definierte Winkel. Da  $x'$  und  $y'$  im Allgemeinen nicht ganzzahlig sind, muß der Wert  $D_{ij} = M(x'(i, j), y'(i, j))$  durch Interpolation aus den umliegenden Einträgen von  $M$  bestimmt werden.



**Abbildung 2.23:** Interpolation der Elemente  $D_{ij} = M(x', y')$  mit nichtganzzahligen  $x', y'$  auf der Matrix  $M$ . Der Unterschied zwischen  $dE_1$  und  $dE_2$  ist zur Verdeutlichung stark übertrieben dargestellt.



**Abbildung 2.22:** Skizze zur Transformation der Koinzidenzen aus der Rohdatenmatrix  $M$  in die Matrix  $D$ . Die Projektion auf eine Dimension geschieht über die Summation über  $i \in \{0, n-1\}$ .

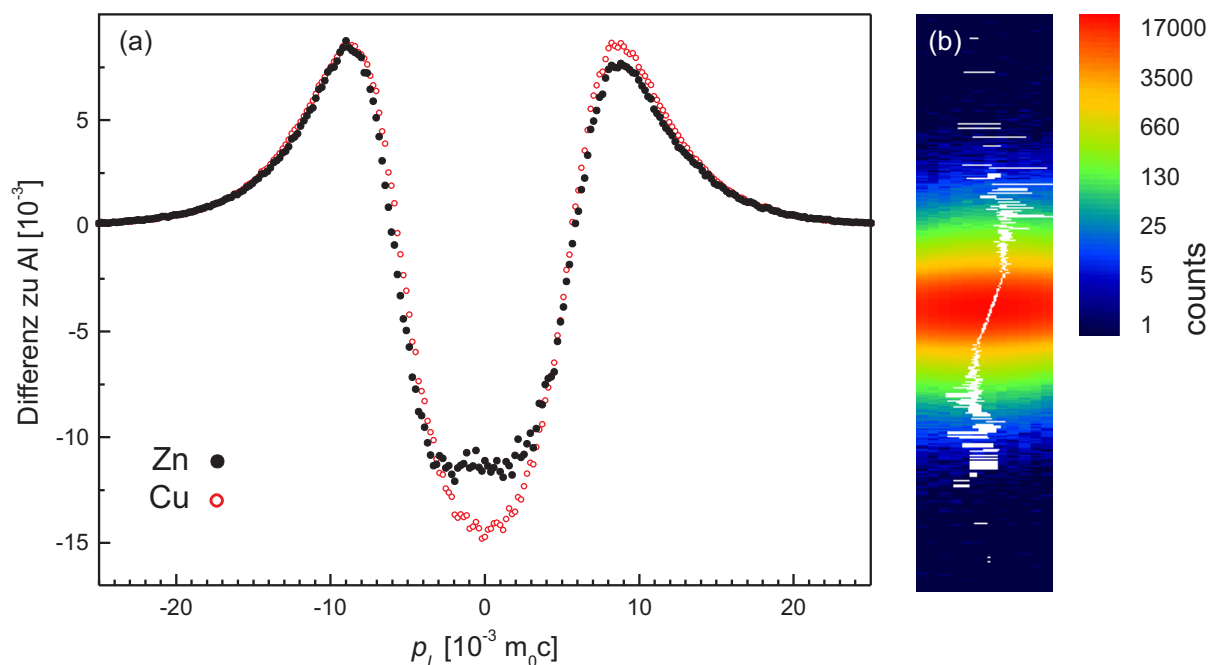
Eine einfache Interpolation über lineare Mittelwerte führt dabei zu Artefakten und ist daher nicht zu empfehlen. Bikubische Splines in zwei Dimensionen berücksichtigen sowohl die umliegenden Elemente aus  $M$  als auch die erste und zweite Ableitung nach den Indizes  $k, l$  von  $M$  (Siehe [163], pp.116). Die Interpolation mit bikubischen Splines ist eine Standardmethode aus der Bildverarbeitung und garantiert ein Maximum an Glattheit bei vertretbarem Rechenaufwand, und ist insbesondere dann von Vorteil, wenn die Werte in der Umgebung von  $(x', y')$  stark variieren. Die Projektion von  $D$  auf eine Dimension erfolgt durch Summation über  $i$ :

$$P_j = \sum_{i=0}^{n-1} D_{ij} \quad (2.26)$$

Bei dieser Interpolation entstehen Fehler hauptsächlich am Rand von  $M$  in Bereichen, in denen viele Einträge den Wert 0 oder 1 besitzen. Dies resultiert in Werten mit wechselndem Vorzeichen und Betrag  $\ll 1$ , die aber physikalisch keine Rolle spielen, und somit gleich Null gesetzt werden können.

Wird nach dem obigen Algorithmus verfahren und  $\delta E \approx 2.5 \sigma_{\text{tot}}$  gewählt, sollte die Auswertung von CDBS Daten zu vergleichbaren Ergebnissen führen, auch wenn die Rohdaten von unterschiedlichen Spektrometern stammen.

Wie oben beschrieben, kann die Vernachlässigung der Detektoreigenschaften bei der Auswertung zu Fehlern, insbesondere zu Asymmetrien, in den resultierenden Doppler-Spektren führen. Physikalisch ist ein Dopplerspektrum symmetrisch, wenn die Richtungen der Elektronenimpulse isotrop verteilt sind oder durch die Messung entsprechend über die Impulsrichtungen gemittelt wird. Das folgende Beispiel soll verdeutlichen, wie solche Asymmetrien aus Fehlern bei der Auswertung entstehen.



**Abbildung 2.24:** Entstehung von Asymmetrien in CDB-Spektren. (a): Kanalweise Differenz eines Zn- bzw. Cu-Spektrums mit einem Al-Spektrum. Energieauflösung und Energiekalibrierung der Detektoren mit denen das Zn-Spektrum aufgenommen wurde, unterschieden sich stark voneinander, während die Cu- und Al-Spektren mit gut aufeinander abgestimmten Detektoren aufgenommen wurden. (b): Die Matrix  $D$  des Zn-Spektrums in logarithmischer Falschfarbendarstellung. Die Zentren der weißen Linien zeigen die Positionen der Zeilenmaxima in  $D$ . Ihre Breite steht für die Unsicherheit bei ihrer Bestimmung.

Abbildung 2.24 (a) zeigt die CDB-Spektren von Zink und Kupfer, zur Hervorhebung der Unterschiede als Differenz zu einem symmetrischen Al-Spektrum dargestellt. Bei der Aufnahme des Zn-Spektrums unterschieden sich die beiden Detektoren sowohl in der Energieauflösung ( $\sigma_2/\sigma_1 = 1.07$ ), der Energiekalibrierung ( $dE_2/dE_1 = 1.01$ ) als auch in der absoluten Nachweiswahrscheinlichkeit ( $N_2/N_1 = 1.14$ ). Die Auswertung des Zn-Spektrums erfolgte ohne Berücksichtigung dieser Unterschiede. Die Spektren von Cu und Al wurden hingegen mit einem gut aufeinander abgestimmten Detektorpaar gemessen. Abbildung 2.24 (b) zeigt eine Darstellung der Matrix  $D$  des Zn-Spektrums in logarithmischer Falschfarbendarstellung. Die Zentren der weißen Linien stellen die Positionen der Zeilenmaxima in  $D$  dar, die durch Gaußanpassungen an die Zeilen von  $D$  gewonnen wurden. Ihre Breite entspricht dabei der statistischen Unsicherheit der Gaußanpassung. Die Asymmetrie der zweidimensionalen Zn-Daten ist in der Mitte von  $D$  besonders ausgeprägt. Im Differenzspektrum von Zn spiegelt sich dies in einer Asymmetrie bei  $8 \times 10^{-3} m_0c$  wieder, die im Kupferspektrum nicht auftritt.

Im Allgemeinen weichen die beiden Detektoren in einem Koinzidenzaufbau hinsichtlich ihrer Parameter Energiekalibrierung, Energieauflösung und absolute Nachweiswahrscheinlichkeit bei 511 keV voneinander ab. Um reproduzierbare und vergleichbare Ergebnisse zu erhalten, müssen diese Parameter bei der Auswertung berücksichtigt werden. Bleiben sie unberücksichtigt und wird, wie allgemein üblich, einfach die  $45^\circ$ -Diagonale zur Projektion verwendet, kann es zu unphysikalischen Asymmetrien im resultierenden eindimensionalen Spektrum kommen. Des Weiteren sollte die Breite des Projektionsfensters an die Energieauflösung der Detektoren angepaßt werden, um ein Minimum an Untergrund bei einem Maximum an Statistik im projizierten Spektrum zu erhalten [186].

## 2.6.2 Hochimpulsanalyse

Mit einer genauen Analyse des Untergrunds läßt sich der Hochimpulsteil der Elektronenimpulsverteilung auch aus dem Spektrum eines einzelnen Detektors ohne Koinzidenz gewinnen (High Momentum Analysis HMA) [29,178,179]. Eine notwendige Voraussetzung dafür ist ein geringer  $\gamma$ -Untergrund, insbesondere bei Energien oberhalb von 511 keV, weshalb die Verwendung von  $^{22}\text{Na}$  als direkte Positronenquelle bei der HMA nicht möglich ist.

Diese Voraussetzung kann entweder durch einen untergrundarmen Positronenemitter wie z.B.  $^{68}\text{Ge}$  oder durch einen Positronenstrahl erfüllt werden, bei dem Quelle und Spektrometer räumlich voneinander getrennt sind, und so eine einfache Abschirmung der hochenergetischen Begleitgammas möglich ist. Zusätzlich ist darauf zu achten, daß kein  $\gamma$ -Untergrund von anderen Experimenten im Labor in den Detektor gelangt.

Wo es bei der Auswertung der Linienformparameter ausreichend war, den Kleinwinkel-Compton-Untergrund [182] zu betrachten, sind zur Auswertung höherer Impulse zusätzlich der unvollständige Ladungsnachweis sowie der Pile-Up zu berücksichtigen. Vor der Bestimmung des Untergrunds muß das Spektrum auf die differentielle Energieeffizienz des Detektors korrigiert werden, um Artefakte durch ein unphysikalisch schiefes Spektrum zu vermeiden.

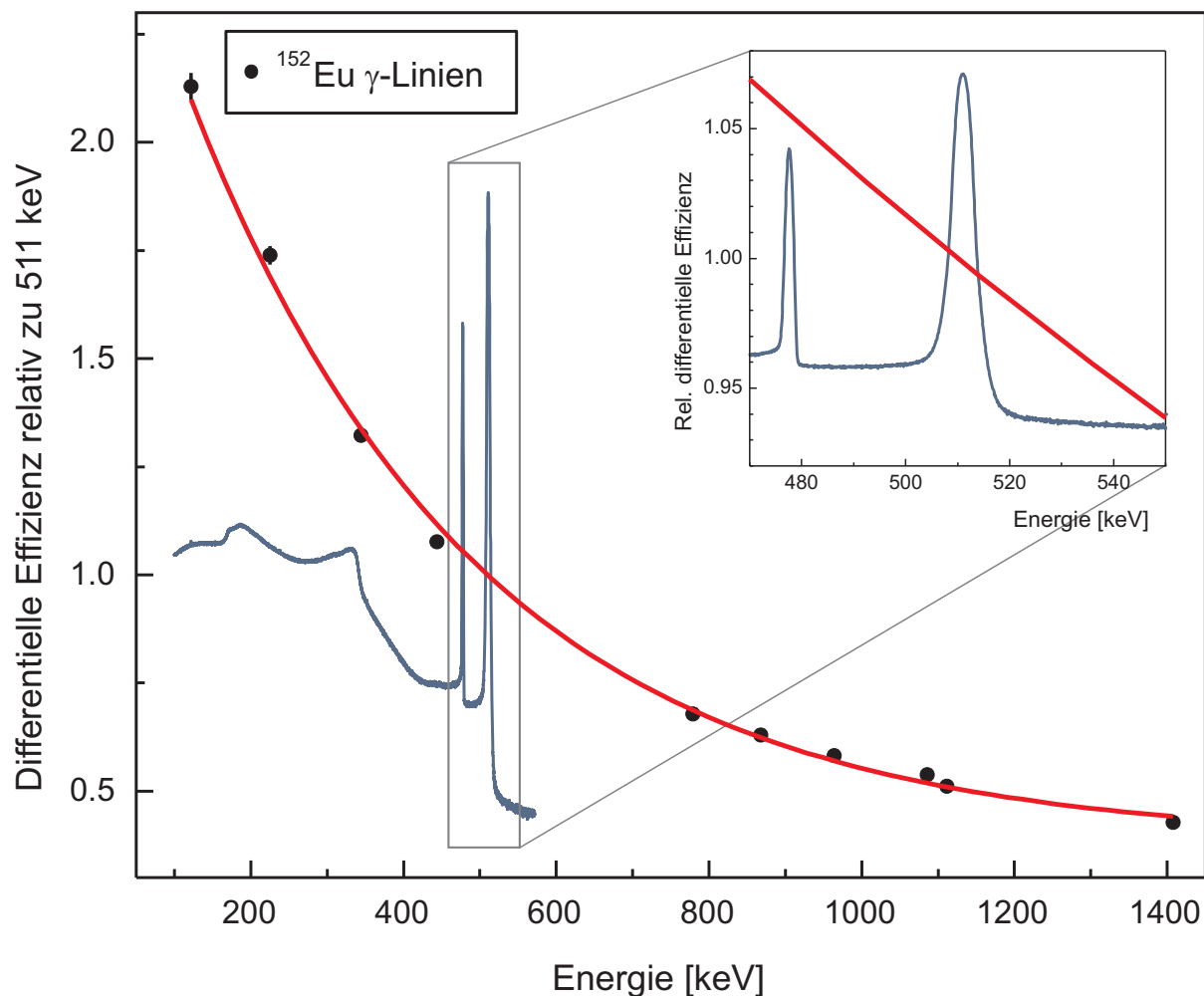


Die Energieeffizienz  $Eff(E)$  ist eine nicht-lineare Funktion der Energie, die nach [187] im Bereich um 511 keV durch eine Exponentialfunktion parametrisierbar ist:

$$Eff(E) \approx c_1 + c_2 \exp(-E/c_3) \quad (2.27)$$

Die Koeffizienten  $c_1$ ,  $c_2$  und  $c_3$  werden durch Anpassung an die Intensitäten des  $\gamma$ -Spektrums eines Radioisotops bestimmt, das eine Vielzahl von  $\gamma$ -Linien besitzt, deren relative Intensitäten bekannt sind (z.B.  $^{152}\text{Eu}$  [25, 188], siehe auch Abbildung 2.25).

Jeder reale Detektor besitzt eine endliche energieabhängige Linienbreite, die als statistisch normalverteilt angenommen werden kann. Dafür gibt es im wesentlichen zwei physikalische Ursachen. Zum einen Fluktuationen im Verhältnis zwischen dem Anteil der absorbierten Energie, die Elektron-Loch-Paare im Detektor erzeugt, und dem Anteil, der das Gitter aufheizt (Fano-Faktor) [159,160]. Zusätzlich erzeugen die Analogelektronik und der ADC weiteres statistisches Rauschen auf dem Signal.

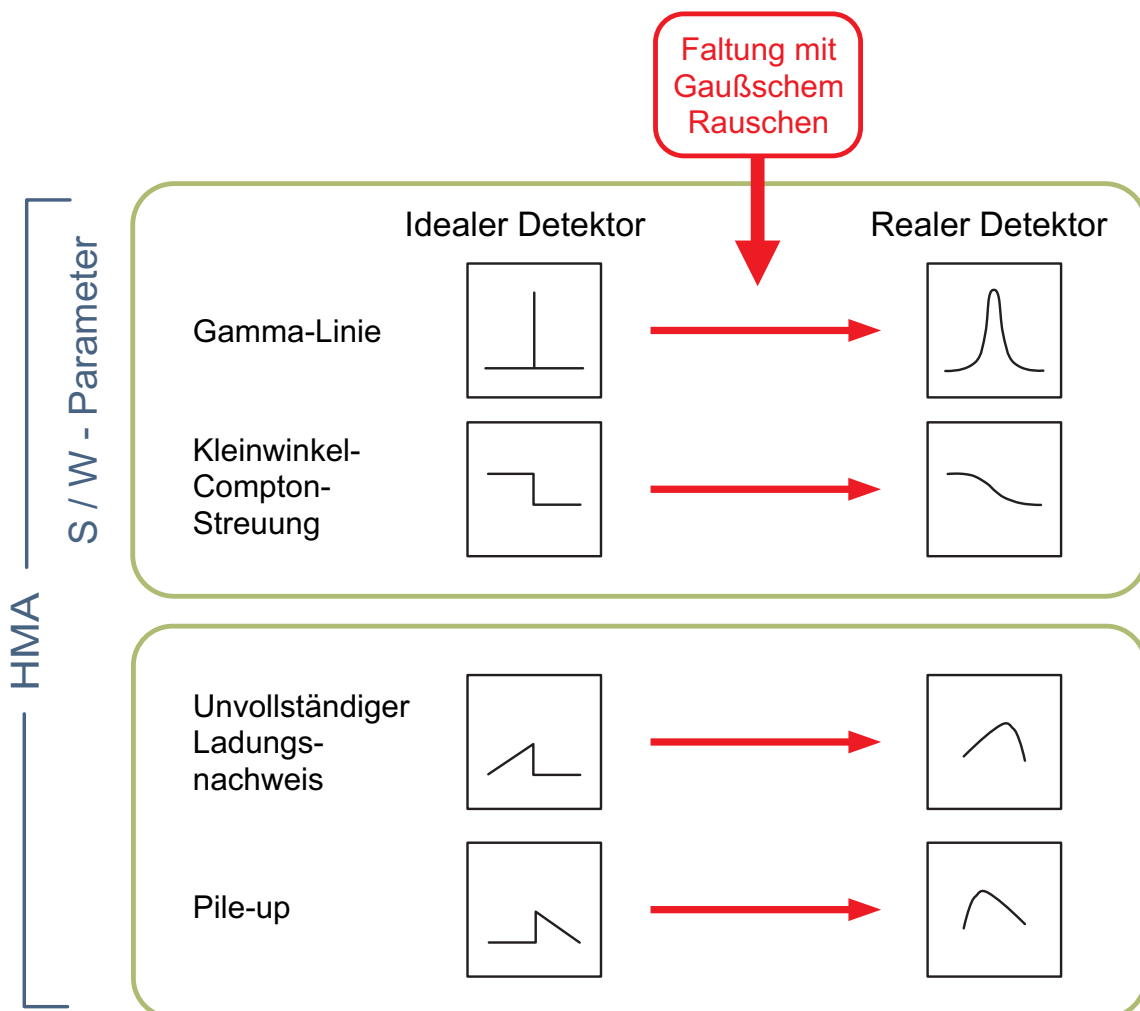


**Abbildung 2.25:** Differenzielle Effizienz eines Ge-Detektors gemessen mit dem Gammastrahler  $^{152}\text{Eu}$ , relativ zur Effizienz bei 511 keV (●) und Fit nach 2.25 (—). Die blaue Linie zeigt ein typisches Doppler-Spektrum. Im Inlett ist der relevante Bereich des Photopeaks herausvergrößert.

Ein Teil der erzeugten Ladungsträger im Detektorkristall geht durch Rekombination, den Einfang in Verunreinigungen und das Entweichen von Photoelektronen an der Oberfläche verloren. Dies resultiert in einem niederenergetischen Ausläufer am Fuß des Peaks, der durch eine Exponentialfunktion mit positivem Exponenten beschrieben werden kann.

Der Pile-Up, dessen Beitrag selbst bei geringen Zählraten um die 1000 cps im Peak nicht Null ist, erzeugt auf der hochenergetischen Seite des Peaks einen Ausläufer, der sich ebenfalls durch eine Exponentialfunktion beschreiben läßt. Abbildung 2.26 gibt eine Übersicht über die Formen der einzelnen Beiträge. Auf der linken Seite sind die Formen skizziert, die die einzelnen Beiträge in einem "idealen" Spektrometer ohne Rauschen hätten. Insbesondere würde die  $\gamma$ -Linie eines Isotops mit nicht zu kurzer Halbwertszeit die Form einer  $\delta$ -Funktion annehmen. In einem realen Detektor (Abbildung 2.26 rechts) gehen die Formen der Beiträge durch Faltung mit einer Gauß-Funktion aus denen des idealen Detektors hervor.

Eine ähnliche Beschreibung des Untergrundes wurde von Dryzek et al. angesetzt, jedoch mit  $^{22}\text{Na}$  als Positronenquelle und einem zusätzlichen NaJ(Tl)-Detektor in Koinzidenz [189]. Die Autoren erreichten eine gute Untergrundunterdrückung, konnten aber den Hochimpulsteil der Spektren nicht auswerten.



**Abbildung 2.26:** Die wichtigsten Komponenten im Untergrund einer  $\gamma$ -Linie: In einem "idealen" Detektor mit verschwindender Energieauflösung würden sowohl die  $\gamma$ -Linie selbst als auch die Untergrundkomponenten scharfe Verteilungen aufweisen. Ein realer Detektor erzeugt Gauß'sches Rauschen einer endlichen Breite und die realen Verteilungen gehen aus den idealen durch Faltung hervor (Obere Komponenten in linearer, untere in halblogarithmischer Darstellung).

Die oben beschriebenen Komponenten können analytisch repräsentiert werden. Man erhält eine Beschreibung des Peaks durch die Funktion  $P(E)$ , die stetig und differenzierbar ist. Die Terme (2.28), (2.29) und (2.32) mit der Definition (2.33) entsprechen dabei der Darstellung von  $P(E)$  nach (2.17). Die Repräsentation der Ausläufer am Fuß des Peaks (2.30) und (2.31) werden durch das Faltungsintegral einer Exponentialfunktion mit einer Normalverteilung erhalten:

$$P(E) = A_G \exp(-u(E)^2) + \quad (2.28)$$

$$\frac{A_S}{2} (1 - \operatorname{erf}(u(E))) + \quad (2.29)$$

$$\frac{A_L}{2} \exp(-\mu_L u(E))(1 - \operatorname{erf}(u(E))) + \quad (2.30)$$

$$\frac{A_H}{2} \exp(+\mu_H u(E))(1 + \operatorname{erf}(u(E))) + \quad (2.31)$$

$$A_C \quad (2.32)$$

Für eine bessere Übersichtlichkeit wird der Term  $u(E)$  eingeführt:

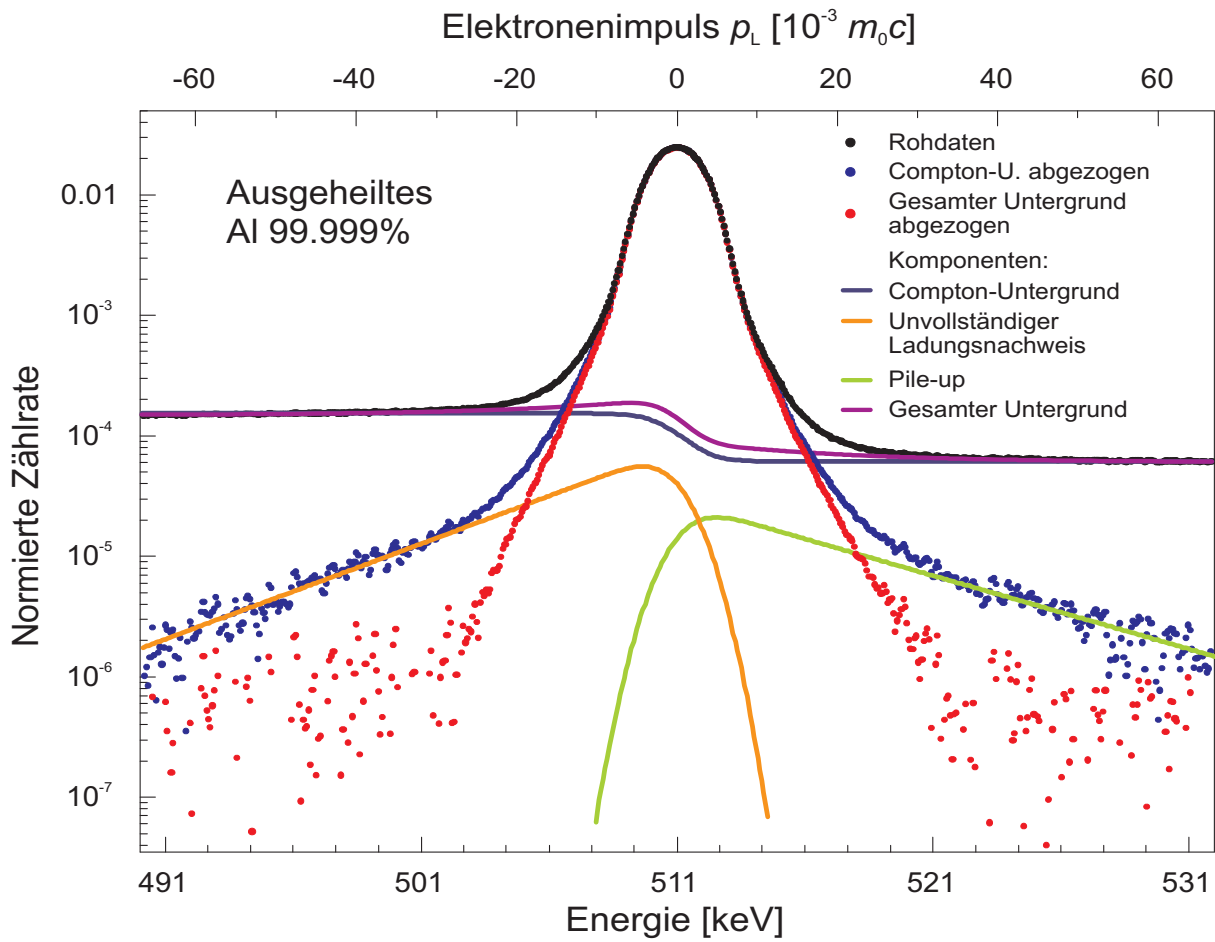
$$u(E) = \frac{2\sqrt{\ln(2)}(E - E_0)}{\sigma}, \quad (2.33)$$

wobei  $E_0$  das Zentrum des Peaks und  $\sigma$  die Breite des normalverteilten Rauschens bezeichnet. Die anderen Koeffizienten besitzen die folgende Bedeutung:

$A_G$	Amplitude des Gauß-Peaks
$A_S$	Amplitude der Stufenfunktion
$A_L$	Amplitude des niederenergetischen Ausläufers
$\mu_L$	Exponent des niederenergetischen Ausläufers
$A_H$	Amplitude des hochenergetischen Ausläufers
$\mu_H$	Exponent des hochenergetischen Ausläufers
$A_C$	konstanter Untergrund

Insgesamt enthält diese Darstellung neun Koeffizienten, deren Werte durch eine Least-Square Anpassung (Levenberg-Marquardt [163]) an den Annihilationspeak bestimmt werden. Praktisch geschieht dies in mehreren Schritten: Zuerst werden die Koeffizienten  $\sigma$ ,  $E_0$ ,  $A_G$ ,  $A_S$  und  $A_C$  mit dem reduzierten Ansatz (2.17) bestimmt und der Untergrund (2.16) abgezogen. In einem Zwischenschritt werden am resultierenden Spektrum die Koeffizienten  $\mu_L$ ,  $A_H$ ,  $\mu_H$  und  $A_C$  angepaßt um Startwerte für die Anpassung aller neun Komponenten zu erhalten, die in einem dritten Schritt durchgeführt wird [29].

Ebenso wie bei der CDBS ergibt die HMA erst ab einer Gesamtzahl von Ereignissen  $\geq 5 \times 10^7$  sinnvolle physikalische Ergebnisse, was an der statistischen Seltenheit von Annihilationseignissen mit hohen Elektronenimpulsen liegt. Abbildung 2.27 zeigt die verschiedenen Beiträge zum Untergrund sowie die Originaldaten und die untergrundkorrigierten Spektren am Beispiel von reinem ausgeheiltem Aluminium. Weitere Beispiele finden sich in [29].

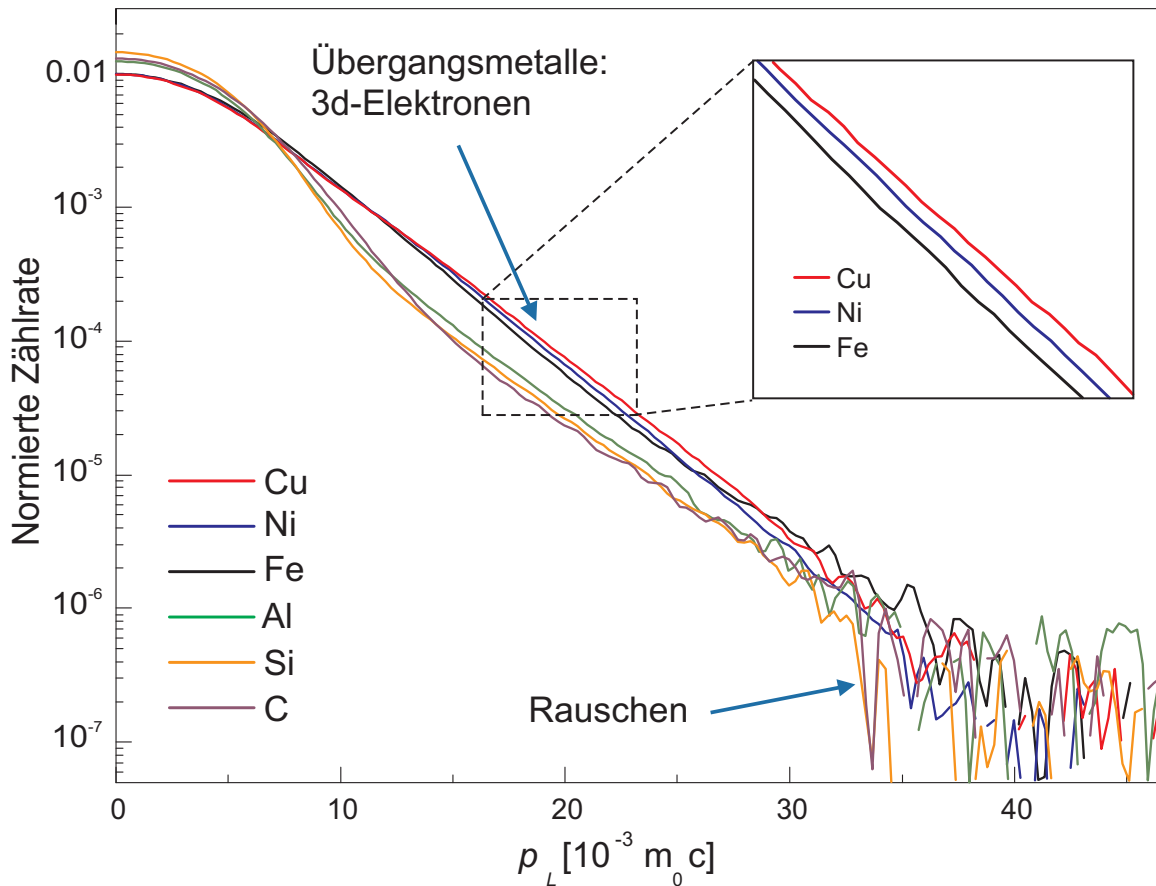


**Abbildung 2.27:** Die einzelnen Untergrundkomponenten am Beispiel von einem Aluminiumspektrum in halblogarithmischer Darstellung: (—) Kleinwinkel-Compton-Untergrund und Kontinuumsuntergrund (2.29), (2.32); (—) Unvollständiger Ladungsnachweis (2.30); (—) Pile-Up (2.31); (—) Gesamter Untergrund; (●)Originaldaten; (●) Daten nach Abzug des Kleinwinkel-Compton-Untergrunds; (●) Daten nach Abzug des gesamten Untergrunds.

Da bei der Messung über die Impulsrichtungen gemittelt wird, ist der Doppler-Peak physikalisch symmetrisch um 511 keV und es reicht zur Angabe der Ergebnisse aus, eine Hälfte des Peaks darzustellen. Dabei werden die Mittelwerte von linker und rechter Seite gebildet, um ein Faktor  $\sqrt{2}$  an Statistik zu gewinnen, wie es auch bei der CDBS allgemein üblich ist.

Abbildung 2.28 zeigt die Verteilung der Elektronenimpulse für einige reine Elemente. Bis auf Silizium wurden alle Elemente vor der Messung zur Ausheilung der Gitterfehler einer Temperaturbehandlung im Hochvakuum unterzogen (Fe: 680°C; Ni, Cu: 1000°C; Al: 500°C; C: 900°C). Bei einer Gesamtzählrate oberhalb von  $5 \times 10^7$  wird der Untergrund durch die HMA so effektiv abgezogen, daß die Elektronenimpulse bis ca.  $40 \times 10^{-3} m_0 c$  auswertbar sind. Es finden sich zwei Klassen von Spektren, deren auffallendster Unterschied in den 3d-Orbitalen der Übergangsmetalle liegt. Aber auch diese unterscheiden sich durch die mit der Kernladungszahl steigenden Elektronenimpulse (Inset in Abbildung 2.28).

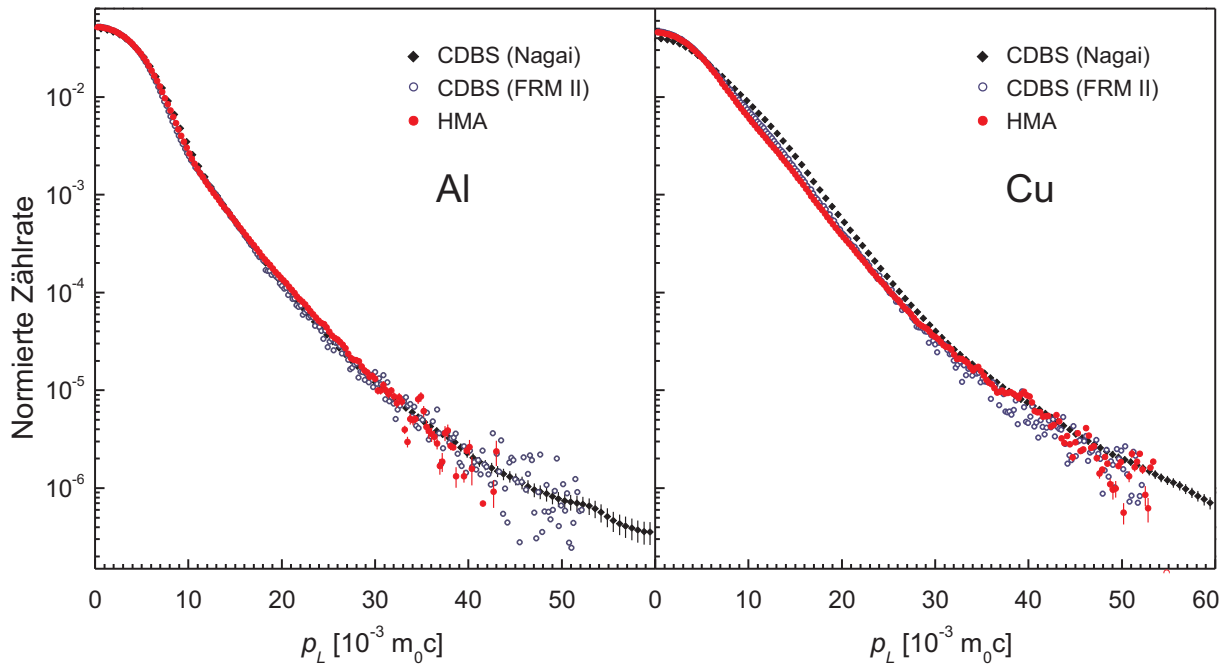
In Abbildung 2.29 sind die Spektren von Al (links) und Cu (rechts) im Vergleich zwischen HMA und CDBS dargestellt. Die CDB-Spektren vom der Positronenquelle NEPOMUK am Forschungsreaktor Garching (FRM II) (○) und die HMA-Spektren (●) wurden an genau denselben Proben gemessen. Die Spektren (◆) wurden mir freundlicherweise von Y. Nagai überlassen. Diese Datensätze sind mit einer Auflösungsfunktion gefaltet um  $\sigma = 1.3$  keV zu erreichen und wurden zusätzlich geglättet.



**Abbildung 2.28:** Elektronenimpulsverteilung einiger reiner Elemente, bestimmt mit HMA. Alle Kurven sind auf dieselbe Fläche normiert. Jenseits von  $40 \times 10^{-3} m_0 c$  verschwinden die Daten im Rauschen.

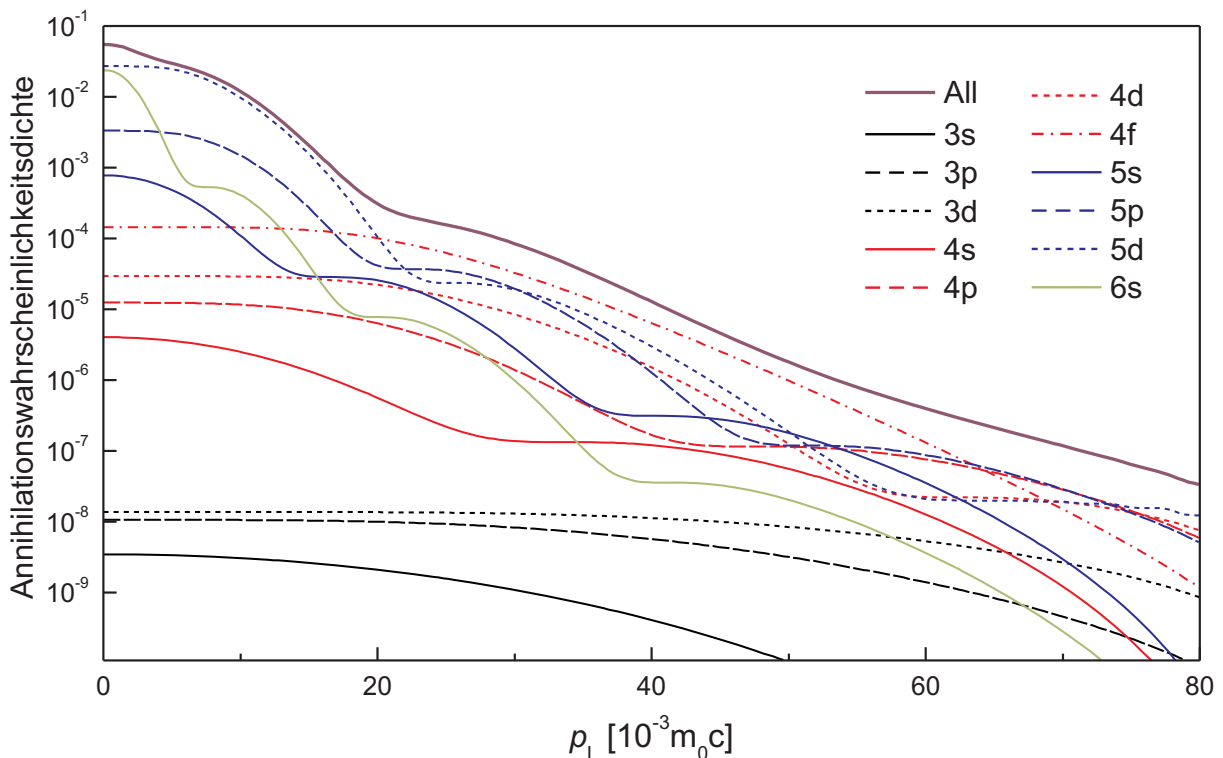
Für Al stimmen alle drei Datensätze bis auf eine Aufstreuung jenseits von  $35 \times 10^{-3} m_0 c$  gut überein. Bei Cu zeigt sich ebenfalls eine gute Übereinstimmung zwischen den HMA-Daten und den CDB-Daten vom FRM II. Die HMA-Daten wurden mit sehr hoher Statistik ( $1.1 \times 10^8$ ) gemessen, so daß Elektronenimpulse bis  $50 \times 10^{-3} m_0 c$  ausgewertet werden konnten. Die Daten von Nagai weichen jedoch bei niedrigen Impulsen ( $p_L > 8 \times 10^{-3} m_0 c$ ) von den anderen beiden Datensätzen ab. Da bei Cu die Reinheit und die Temperaturbehandlung zum Ausheilen der Defekte besonders kritisch sind, ist die Abweichung höchstwahrscheinlich auf Unterschiede in diesen Parametern zurückzuführen [178].

Das elementspezifische Dopplerspektrum kann heutzutage mit dem Programmpaket DOPPLER [190, 191] auch numerisch berechnet werden. Dabei wird die Dichte-Funktional-Theorie (DFT) [192, 193] verwendet, um die Schrödinger-Gleichung für alle Elektronenorbitale zu lösen. Die Austausch-Korrelationsenergie der Elektronen untereinander wird über eine Lokale-Dichte-Approximation (LDA) angenähert [194]. In einem ersten Schritt wird auf diese Weise die radiale Schrödinger-Gleichung eindimensional für ein Atom gelöst und aus den kugelsymmetrischen Wellenfunktionen der verschiedenen Orbitale die Elektronendichte bestimmt. Zusammen mit den Kernpotentialen wird daraus das Coulomb-Potential im Kristallgitter durch Superposition zusammengesetzt. In diesem Potential wird die Schrödinger-Gleichung für ein Positron gelöst, wobei die Wechselwirkung des Positrons mit der Elektronendichte mit LDA nach [195] approximiert wird. Die Annihilationsraten werden dann aus dem Überlapp der Positronendichte mit der Elektronendichte unter Berücksichtigung der Wechselwirkung zwischen Positronen- und Elektronendichte (Enhancement-Faktor [195]) für jedes Orbital einzeln bestimmt.



**Abbildung 2.29:** Vergleich von HMA und CDBS (Datensätze auf Fläche 1 normiert). Die Daten  $\blacklozenge$  wurden mir freundlicherweise von Y. Nagai überlassen (mit einer Auflösungsfunktion gefaltet, um  $\sigma = 1.3$  keV zu erhalten). Materialparameter: Al ( $\bullet, \circ$ ): 99.999%, 3h bei 600°C; Cu ( $\bullet, \circ$ ): 99.9998%, 8h bei 1000°C.

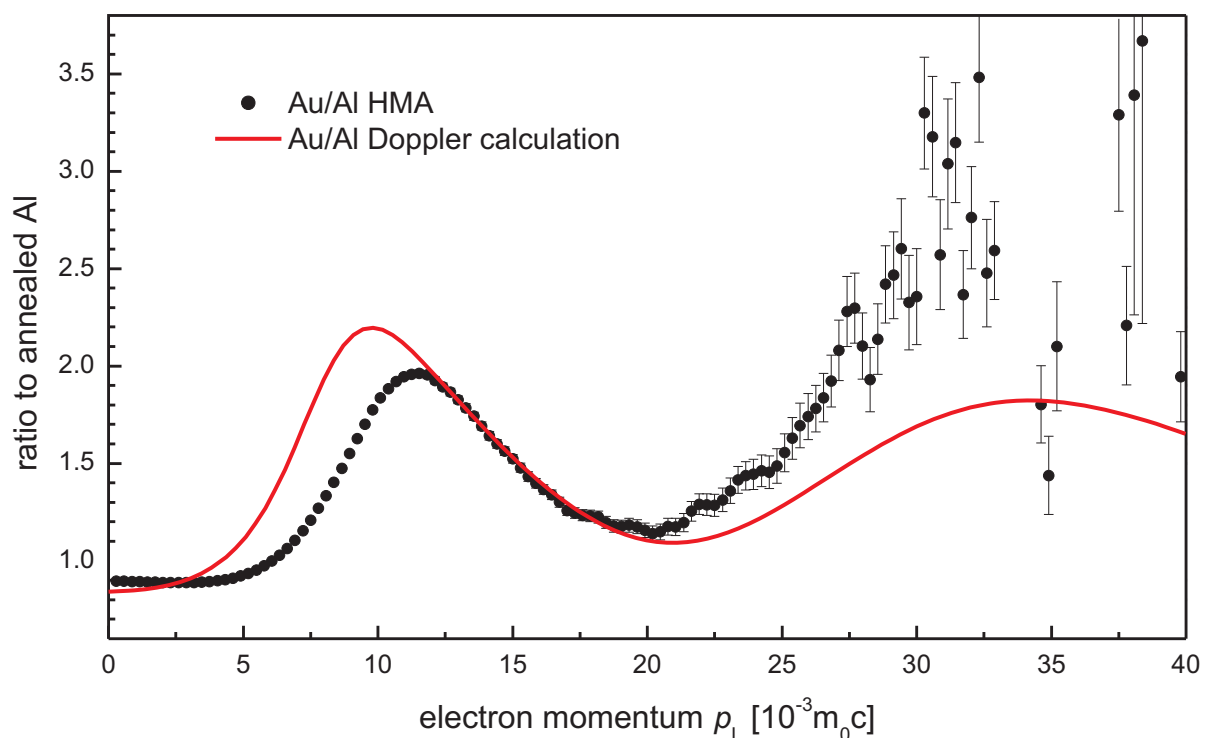
Zur Berechnung der Doppler-Spektren wird nicht die Positronenwellenfunktion, sondern eine empirische radiale Positronendichte verwendet, die durch sogenannte Fehlerfunktionen angenähert wird. Diese Funktionen sind in Kernnähe für eine Vielzahl von Elementen in [196] tabelliert und verschwinden am Kernort.



**Abbildung 2.30:** Mit dem Programmpaket DOPPLER berechnetes Doppler-Spektrum von reinem ausgeheiltem Gold ( $\text{—}$ ), sowie die Beiträge der Au-Orbitale, deren Annihilationswahrscheinlichkeit über  $10^{-10}$  liegt.

Die Elektronenwellenfunktionen werden mit der empirischen Positronendichte überlagert und mit sphärischen Besselfunktionen in den Impulsraum transformiert. Eine solche Näherung ist möglich, da der Beitrag des Positronenimpulses zum Doppler-Spektrum verschwindend gering ist. Die Konfiguration des Gitters fließt nur über die Annihilationsraten ein, mit denen die Doppler-Spektren der einzelnen Orbitale gewichtet werden. Das Gesamtspektrum entsteht dann durch Addition der Spektren der einzelnen Orbitale.

Diese Rechnung benutzt einige radikale Vereinfachungen. Insbesondere weichen die durch atomare Superposition berechneten Orbitale der Valenzelektronen stark von der wirklichen Form ab. Das führt zu Verschiebungen im Doppler-Spektrum im Bereich niedriger Impulse ( $p_L \lesssim 12 \times 10^{-3} m_0 c$ ). Dennoch lassen sich wesentliche Eigenschaften von gemessenen Doppler-Spektren in den Rechnungen wiederfinden. Für die Impulse jenseits von  $20 \times 10^{-3} m_0 c$  stimmt die Rechnung für reines Aluminium sehr gut mit den durch CDBS und HMA erhaltenen Spektren überein [178].



**Abbildung 2.31:** Vergleich von HMA-Messung zu einer numerischen Rechnung: Ratio-Plot von reinem ausgeheiltem Gold zu reinem ausgeheiltem Al. Die errechneten Spektren wurden mit einer Gauß'schen Auflösungsfunktion gefaltet, die der experimentellen entspricht (1.11 keV). Die Abweichung zwischen Rechnung und Experiment bei niedrigen Impulsen wird maßgeblich von der verwendeten atomaren Superposition verursacht.

Abbildung 2.30 zeigt das gerechnete Doppler-Spektrum von reinem ausgeheiltem Gold sowie die Beiträge der Orbitale, die mit mehr als  $10^{-10}$  zum Gesamtspektrum beitragen [197]. Das Spektrum enthält zwei Buckel bei ca.  $10 \times 10^{-3} m_0 c$  und ca.  $33 \times 10^{-3} m_0 c$ . Ersterer wird durch die Annihilation mit 3d-Elektronen bestimmt, während letzterer hauptsächlich durch Annihilation mit den 4f, 5d und 5p Orbitalen verursacht wird.

In Abbildung 2.31 ist einen Vergleich zwischen den simulierten Daten aus Abbildung 2.30 und der experimentellen Impulsverteilung von Gold als Ratio-Plot zu reinem Aluminium dargestellt. In einem Ratio-Plot werden die Spektren kanalweise dividiert, um Features bei hohen Impulsen deutlicher herauszustellen. Aluminium ist dabei eine in der Literatur weitverbreitete

Referenz. Das Minimum bei  $20 \times 10^{-3} m_0c$ , sowie das Maximum bei ca.  $33 \times 10^{-3} m_0c$  stimmen in Theorie und Experiment hinreichend gut überein. Das erste Maximum in den Meßdaten bei  $11.5 \times 10^{-3} m_0c$  (3d-Elektronen) ist in der Rechnung um ca.  $3 \times 10^{-3} m_0c$  zu niedrigeren Impulsen hin verschoben. Hier zeigt sich bereits die Abweichung durch die atomare Superposition. Eine ähnliche Abweichung zwischen Rechnung und Experiment wurde auch für reines Silber gefunden [191].

Zusammenfassend kann man feststellen, daß die über HMA mit nur einem einzelnen Ge-Detektor gewonnenen Spektren bis zu Impulsen von  $\sim 40 \times 10^{-3} m_0c$  mit Koinzidenzspektren und numerischen Rechnungen konsistent sind, wenn eine untergrundfreie Positronenquelle verwendet wird (z.B.:  $^{68}\text{Ge}$  oder ein Positronenstrahl). Bei einer Gesamtanzahl von Annihilationsereignissen von einigen  $10^8$  sind die Elektronenimpulse sogar bis  $50 \times 10^{-3} m_0c$  zugänglich. Bei der HMA kann mit Zählraten von 1000 – 1500 cps gemessen werden, ohne daß sich die Energieauflösung des Detektors signifikant verschlechtert. Das ergibt eine deutliche Verbesserung gegenüber der CDBS, da die Koinzidenzzählrate ungefähr eine Größenordnung unterhalb der Zählrate eines einzelnen Detektors liegt.

Ein weiterer Vorzug der HMA besteht darin, daß sie ohne zusätzliche Hardware in ein vorhandenes Doppler-Spektrometer implementiert werden kann. Dies ist besonders dann von Vorteil, wenn sich an einer Anlage aus geometrischen Gründen kein zweiter Detektor anbringen läßt. In Kombination mit einem Feinfokus-Positronenstrahl kann mittels HMA die chemische Umgebung von Gitterdefekten ortsaufgelöst gemessen werden, was besonders bei der Untersuchung von inhomogenen oder plastisch verformten Proben von Interesse ist.

### 2.6.3 Untersuchung von Ausscheidungen in einer Al-Cu-Mg Legierung

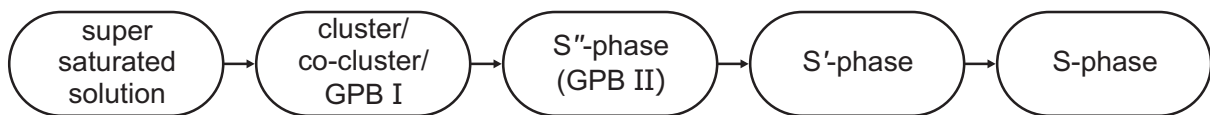
Technisch nutzbare Aluminiumlegierungen erhalten ihre Härte über feinverteilte Ausscheidungen in der Größenordnung von wenigen Nanometern bis zu einigen zehn Nanometern, die die Versetzungsbewegung effektiv behindern. Die erste ausscheidungsgehärtete Al-Legierung (3.5-4.5 Gew.% Cu, 1 Gew.% Mg) wurde 1906 von A. Wilm durch Zufall entdeckt und von ihm Duralumin getauft [198]. Die Zugfestigkeit von Duralumin liegt gegenüber reinem Aluminium beim 5- bis 7-fachen. Als AA 2024 (AlCu4Mg1) findet es bis heute fast unverändert eine breite Anwendung im Flugzeugbau. Erst 1938 gelang es jedoch, die Struktur reiner Kupfer-Ausscheidungen mittels Röntgenbeugung aufzuklären [199,200] Diese bilden sich scheibenförmig auf den  $\{100\}$ -Ebenen des Al-Gitters. Zu Ehren ihrer Entdecker A. Guinier und G.D. Preston werden die Cu-Ausscheidungen als Guinier-Preston-Zonen (GPZ) bezeichnet.

Metallurgisch werden Al-Cu-Mg Legierungen durch Lösungsglühen, Abschrecken und Auslagern hergestellt. Direkt nach dem Lösungsglühen und Abschrecken befindet sich die Legierung in einem metastabilen Zustand und Cu und Mg liegen in einer übersättigten festen Lösung vor (supersaturated solid solution). Die Kinetik der Ausscheidungsbildung ist recht komplex und läuft über mehrere metastabile Phasen ab, was als Ausscheidungssequenz bezeichnet wird. Die in [201] vorgeschlagene und noch heute akzeptierte Ausscheidungssequenz für Al-Cu-Mg ist in Abbildung 2.32 skizziert.

Im übersättigten Mischkristall diffundieren die Legierungselemente über einen schnellen, durch Platzwechselprozesse mit eingeschreckten Leerstellen angetriebenen Mechanismus, wobei sich metastabile Bindungszustände aus Leerstellen und Legierungsatomen bilden. An diese lagern sich weitere Legierungsatome an und bilden nach kurzer Zeit Agglomerate aus wenigen Atomen. Je nachdem, ob sie aus einem Element (Mg, Cu), oder aus beiden bestehen,



spricht man von Clustern oder Co-Clustern [202]. Durch weitere Anlagerung bilden sich aus diesen Cu- und Mg-reiche Zonen, die als Guinier-Preston-Bagaryatskii-Zonen (GPB I) bezeichnet werden [201]. Die Struktur dieser Frühphasen konnte bisher nicht eindeutig geklärt werden, da sie im Gegensatz zu der GPZ in reinen Al-Cu Legierungen [203] nicht im Transmissions-Elektronenmikroskop (TEM) nachweisbar sind. Es ist aber sehr wahrscheinlich, daß Cluster, Co-Cluster und GPB I koexistieren [204]. Im weiteren Verlauf bildet sich eine im TEM identifizierbare Phase, die S''-Phase, deren Struktur allerdings ebenfalls ungeklärt ist. Für die GPB I und die S'' wurden eine Vielzahl von Gitterkonfigurationen vorgeschlagen. Für eine Übersicht und Diskussion der verschiedenen Modelle siehe [205,206]. Da Leerstellen in Al bei Raumtemperatur hochbeweglich sind, läuft die Bildung der GPB I innerhalb einiger Stunden bei RT ab, während die Ausbildung der S''-Phase, die für die Härte der Legierung verantwortlich ist, sich durch Auslagern bei RT nach ca. 5 Tagen einstellt. Bei höheren Temperaturen und längerer Auslagerungszeit (16h bei 200° C) bildet sich schließlich die Gleichgewichtsphase S. Die S'-Phase wird inzwischen nicht mehr als eigene Phase, sondern als Koexistenzbereich von S'' und S angesehen [206].



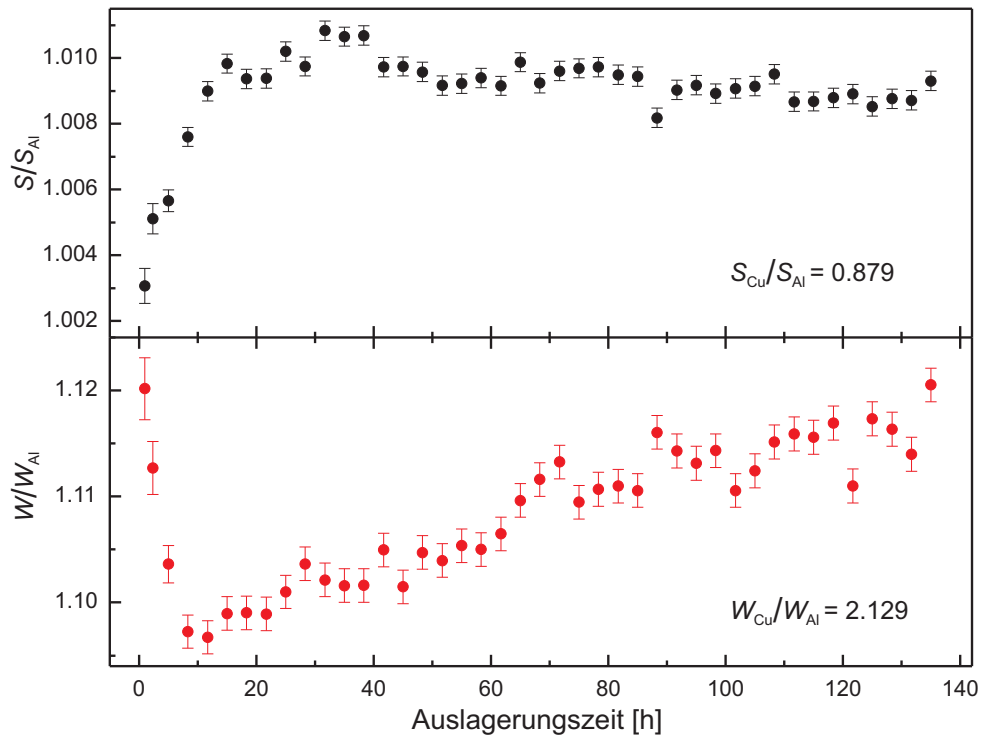
**Abbildung 2.32:** Schema der Ausscheidungssequenz einer Al-Cu-Mg Legierung [201]. Aus dem übersättigten Mischkristall bilden sich bei RT zunächst Agglomerate aus wenigen Atomen (Cluster/Co-Cluster), sowie Cu- und Mg-reiche Zonen (GPB I), die miteinander koexistieren. Diese wachsen im weiteren zu größeren Ausscheidungen (S''-Phase). Die Gleichgewichtsphase S wird erst bei ca. 250° C erreicht S' stellt eine Mischung aus S'' und S dar.

Die S-Phase besitzt die chemische Zusammensetzung  $Al_2CuMg$ , ihre kristallographische Struktur war ebenfalls lange Zeit umstritten, obwohl sie im TEM sichtbar ist [207]. Die an  $Al_2CuMg$  Einkristallen gemessene [208] und für die S-Phase bereits 1952 vorgeschlagene orthorhombische Struktur (Cmcm) [209,210] konnte inzwischen durch den Vergleich von Elektronen-Strukturrechnungen [211] mit Beugungsmessungen [212] bestätigt werden.

Über den Einfang von Positronen in diese Leerstellen läßt sich ihre chemische Umgebung – und deren Änderung – während der Auslagerung beobachten, was bereits 1979 für Al-Zn Legierungen gezeigt werden konnte [213]. Eine relativ aktuelle Übersicht über Untersuchungen zu Al-Legierungen mit Positronen findet sich in [214].

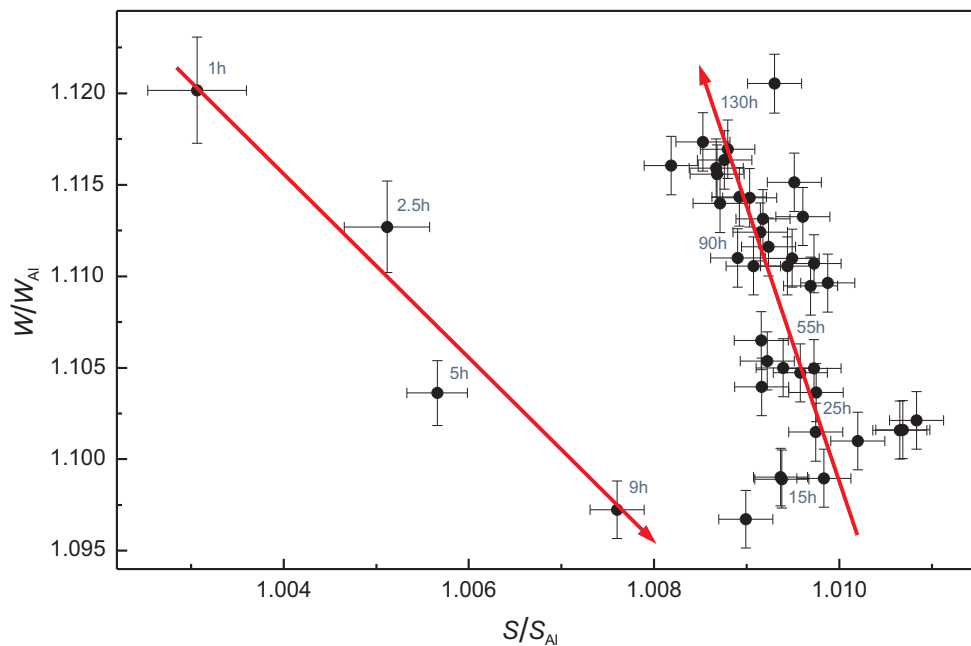
Abbildung 2.33 zeigt S- und W-Parameter von AA 2024 relativ zu reinem ausgeheiltem Aluminium während der Auslagerung bei Raumtemperatur nach Lösungsglühen bei 500 °C und Abschrecken in Wasser. Der Bereich zur Bestimmung des W-Parameters wurde zwischen 8 und  $25 \times 10^{-3} m_0c$  festgelegt, um die Annihilation mit den 3d-Elektronen des Kupfers herauszufiltern (siehe Dopplerspektrum in Abbildung 2.36).

Auf der Zeitachse ist das Ende einer jeden Messung relativ zum Zeitpunkt des Abschreckens angegeben. Innerhalb der ersten Stunde nach dem Abschrecken liegt der W-Parameter wesentlich über dem von reinem Aluminium, was auf einen hohen Anteil von Leerstellen mit Cu-haltiger atomarer Umgebung hindeutet ( $W_{Cu}/W_{Al} = 2.13$ ). Der S-Parameter ist in Bezug zu reinem Aluminium nur geringfügig erhöht. Es ist aber davon auszugehen, daß er durch die kupferreiche Umgebung der Leerstellen erniedrigt wird ( $S_{Cu}/S_{Al} = 0.978$ ), wie es auch bei ermüdetem AA 2024 gefunden wurde [139].



**Abbildung 2.33:** S- und W-Parameter von AA 2024 relativ zu reinem ausgeheiltem Aluminium während der Auslagerung bei Raumtemperatur. Die angegebene Zeit steht für das Ende einer Messung.

Dieses Ergebnis kann durch Einfang der Positronen in Cu-Leerstellen Komplexen (Cu-Vac) erklärt werden, die allein aus statistischen Gründen direkt nach dem Abschrecken vorliegen. Innerhalb von ca. 10 Stunden sinkt der W-Parameter auf ein Minimum, während der S-Parameter seinen Maximalwert erst nach ca. 40 Stunden erreicht. Im weiteren Verlauf der Auslagerung fällt der S-Parameter leicht ab und der W-Parameter steigt wieder auf den Wert nach dem Abschrecken an.



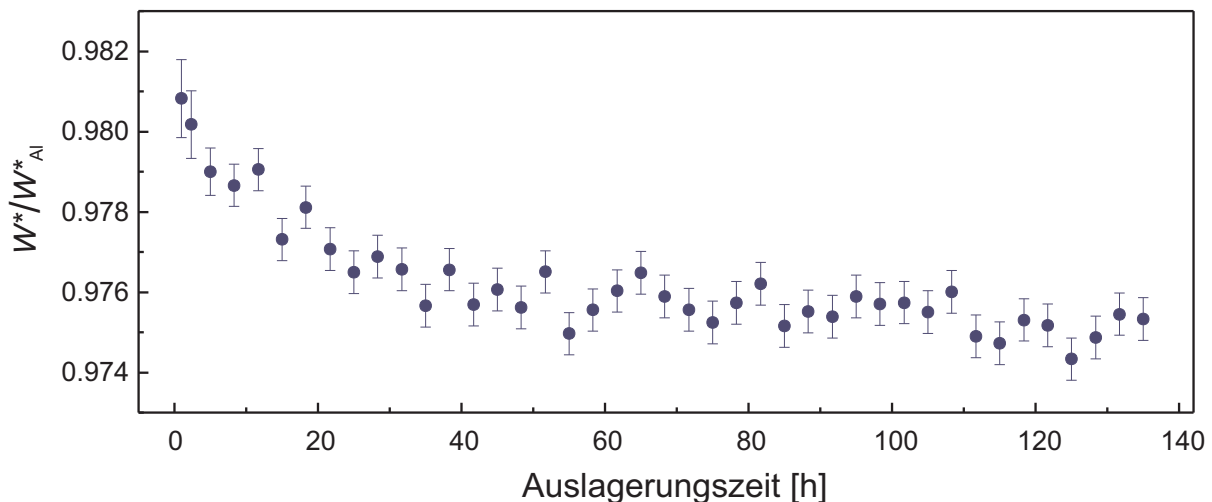
**Abbildung 2.34:** Ausscheidungssequenz von AA 2024 im W(S)-Diagramm. S- und W-Parameter sind auf reines ausgeheiltes Aluminium bezogen. Die Auslagerungszeit in Stunden steht für das Ende der Meßzeit.

Der unterschiedliche Verlauf von S- und W-Parameter deutet auf das Vorhandensein von zwei verschiedenen Positronenfallen hin, zwischen denen Konkurrenz beim Einfang der Positronen besteht. Deutlicher wird das in der  $W(S)$ -Darstellung in Abbildung 2.34, in der die Meßwerte auf zwei Geraden mit unterschiedlicher Steigung liegen, zwischen denen ein Übergangsbereich existiert [215].

Die Erhöhung des S-Parameters auf Kosten des W-Parameters während der ersten 10 Stunden ist ein Hinweis auf die Bildung von Cu-haltigen Clustern, deren Konzentration ansteigt, während die Konzentration von Cu-Vac Komplexen in der Al-Matrix abnimmt. Das Doppler-Spektrum von AA 2024 (Abbildung 2.36) zeigt aber auch einen deutlichen Beitrag von Mg, woraus folgt, daß Mg bei der Clusterbildung ebenfalls eine Rolle spielt.

Der W-Parameter war bisher so definiert, das der Anteil der 3d-Elektronen des Kupfers aus dem Doppler-Spektrum herausgefiltert wurde. Er läßt sich aber auch ein Parameter  $W^*$  definieren, der auf die Annihilation mit Elektronen des Mg sensitiv ist. Wie das Dopplerspektrum in Abbildung 2.36 zeigt, liegen die dazugehörigen Ereignisse im Impulsbereich zwischen 3 und  $7 \times 10^{-3} m_0c$ . Da die Dopplerkurve von Mg unter der von Al liegt, bedeutet ein niedrigerer Parameter  $W^*$  einen höheren Anteil der Annihilation mit Mg. Abbildung 2.35 zeigt den Verlauf von  $W^*$  mit der Auslagerungszeit. Der Anteil von Mg an der Annihilation nimmt innerhalb der ersten 20 Stunden deutlich zu und geht nach ca. 60 Stunden in Sättigung.

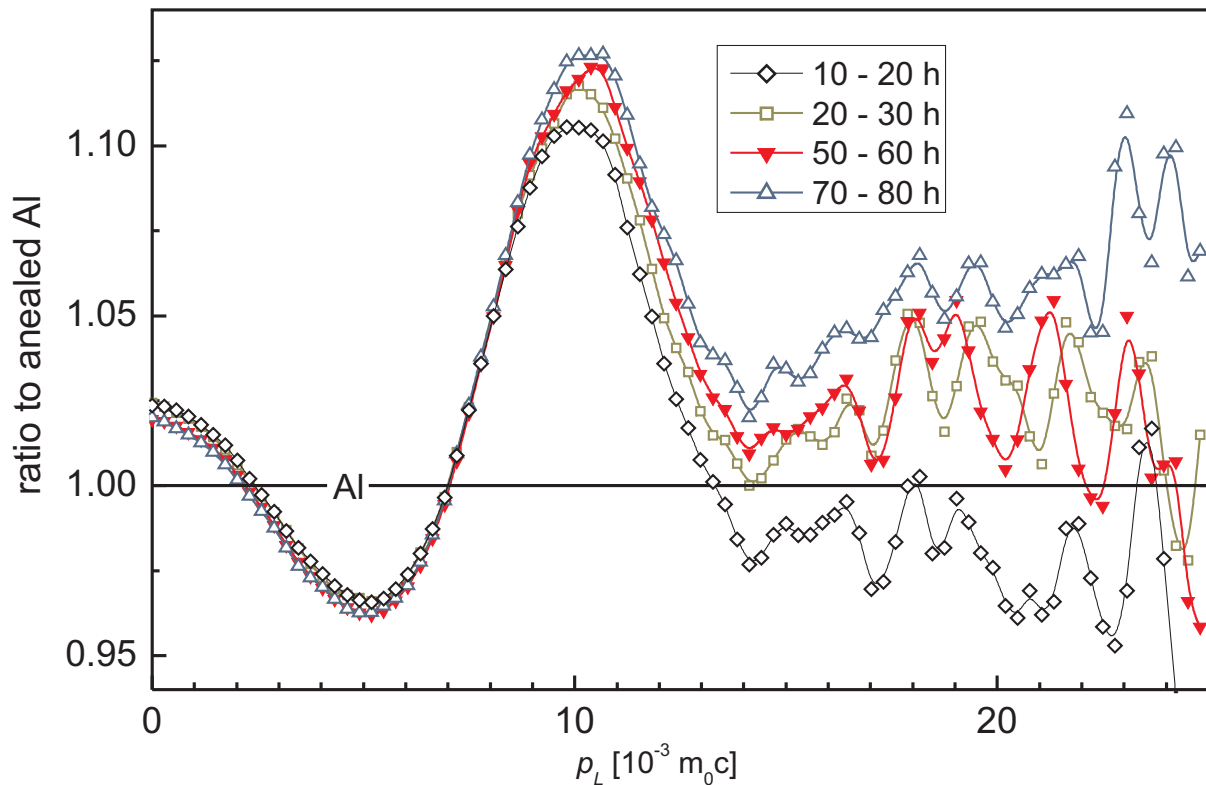
Der geringe Anteil von Mg zu Beginn der Auslagerung spricht dafür, daß sich keine stabile Mg-Vac Komplexe bilden, sondern der Anstieg von  $W^*$  auf den Einfang in Cu-Mg Co-Cluster mit anhaftenden Leerstellen beruht, deren Konzentration im Laufe der Zeit steigt.



**Abbildung 2.35:** Der Parameter  $W^*$ , der den Anteil der Annihilation mit Mg im Dopplerspektrum beschreibt, über die Auslagerungszeit. Da das Doppler-Spektrum von AA 2024 im Impulsbereich zur Bestimmung von  $W^*$  unterhalb dem von Al liegt, bedeutet ein niedriger Parameter  $W^*$  einen höheren Anteil an Annihilationen mit Mg-Elektronen.

Dies wird durch neuere Elektronen-Strukturrechnungen bestätigt, die eine Abstoßung zwischen Mg Atomen und Leerstellen in Al zeigen [216]. Würde Mg die Rolle eines Leerstellenfängers spielen, wie in der älteren Literatur oft angenommen, wäre sein Einfluß direkt nach dem Abschrecken am größten.

Eine genauere Untersuchung ist nur über das komplette Doppler-Spektrum möglich. Abbildung 2.36 zeigt vier mit HMA aus den vorherigen Daten gewonnene Doppler-Spektren relativ zu reinem ausgeheiltem Aluminium [215].



**Abbildung 2.36:** Doppler-Spektren von AA 2024 während der Auslagerung bei Raumtemperatur als Ratio-Plot. Es sind jeweils 10 Stunden zusammengefasst. Die Änderungen im Dopplerspektrum der ersten 10 Stunden sind zu groß, um diese Spektren für die HMA aufzuaddieren.

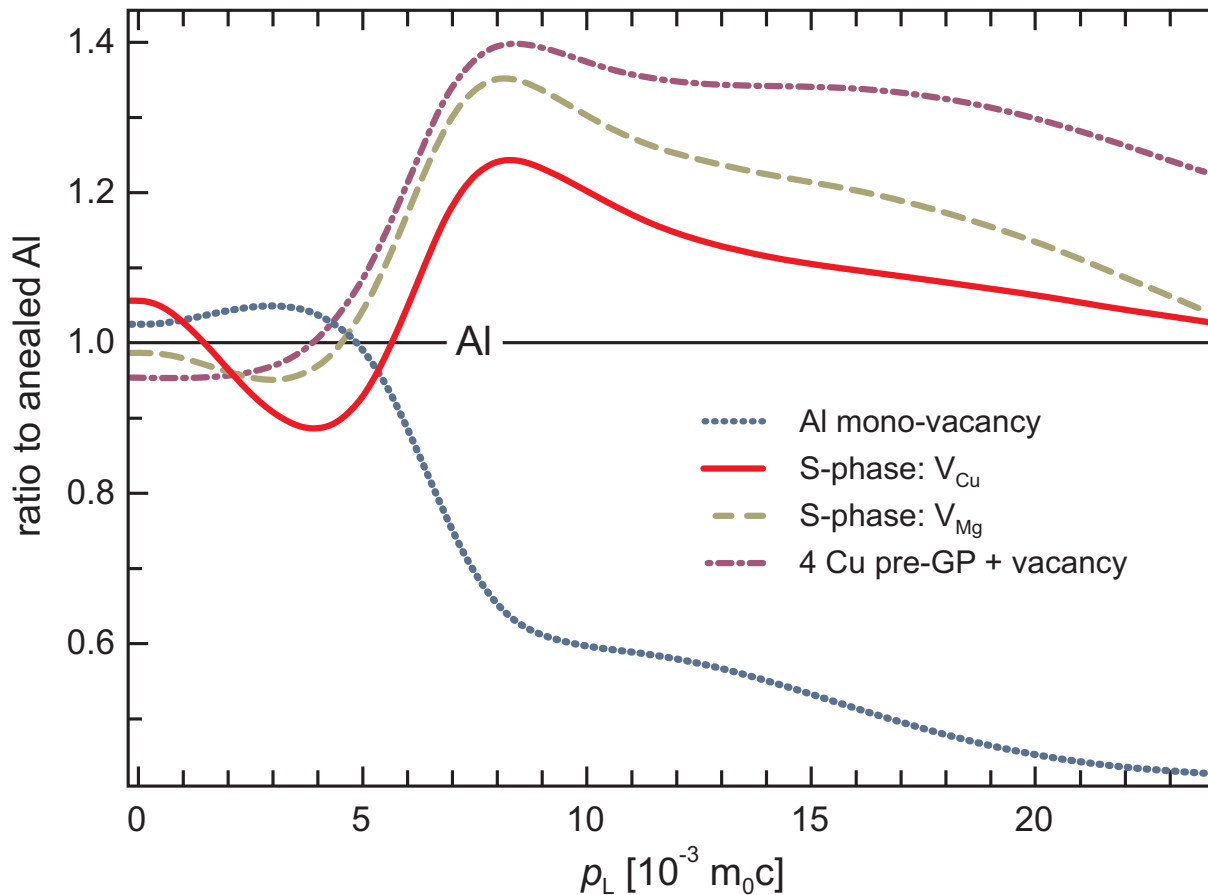
Dabei wurden die Rohdaten von jeweils zehn Stunden Meßzeit aufaddiert. Die Daten der ersten zehn Stunden konnten nicht sinnvoll addiert werden, da sich die Spektren in der Anfangsphase zu stark ändern.

Allen vier Spektren gemein ist ein hoher Beitrag der Leerstellen bei niedrigen Impulsen, der Beitrag von Mg, der zu einem Minimum bei  $5 \times 10^{-3} m_0c$  führt, sowie der Beitrag der 3d-Elektronen des Kupfers (Maximum bei  $\sim 10 \times 10^{-3} m_0c$ ). Wie es auch die Parameter  $W$  und  $W^*$  zeigen, nimmt der Anteil von Mg und Cu über die Auslagerungszeit zu.

Das Verständnis von Dopplerspektren einer Legierung ist aber nicht so einfach, da sie im Allgemeinen nicht durch Linearkombination aus den Spektren der Legierungselemente und der Matrix zusammengesetzt werden können. Dies gilt besonders dann, wenn die Gitterstruktur einer ausgeschiedenen Phase von der sie umgebenden Matrix abweicht, oder die Gitterabstände der umliegenden Matrixatome durch die Ausscheidung verändert werden. Für einen Vergleich mit numerisch gerechneten Spektren ist es daher nötig, die genaue atomare Konfiguration einer Modellstruktur, sowie ihre Wechselwirkung auf die umliegenden Matrixatome zu berücksichtigen.

Im Allgemeinen verändert die Anwesenheit von Fremdatomen die Gitterabstände zu den Matrixatomen signifikant. Man spricht in diesem Zusammenhang von relaxierten Atompositionen. Diese können mit einem ab-initio Code, wie z.B. SIESTA [217], selbstkonsistent berechnet werden. Ebenso wie das oben beschriebene Programmpaket DOPPLER basiert SIESTA auf der Dichte-Funktional-Theorie [192,193]. SIESTA berechnet aber nur die Valenzelektronen explizit, während die kernnahen Orbitale zu Pseudo-Wellenfunktionen zusammengefasst werden. Die dadurch eingesparte Rechenzeit macht die Berechnung einer größeren Anzahl von Atomen in realistischen Zeiten überhaupt erst möglich. SIESTA bestimmt

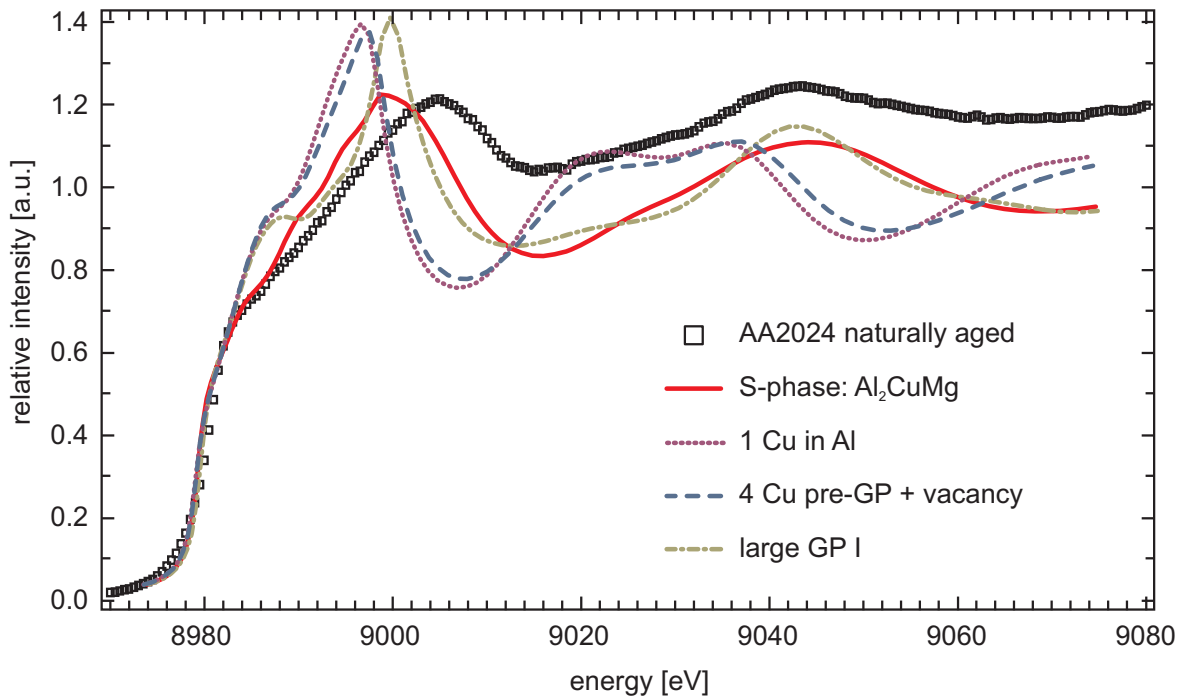
die Coulomb-Kräfte auf die Atome in der Ausgangskonfiguration und verschiebt deren Koordinaten dann in Richtung niedrigerer Kräfte. Dies wird iterativ solange durchgeführt, bis sich alle Atome im Kräftegleichgewicht befinden. Aus den so erhaltenen relaxierten Atomkoordinaten wird das Annihilations-Spektrum mit DOPPLER berechnet.



**Abbildung 2.37:** Berechnete Doppler-Spektren verschiedener Modellstrukturen für die Frühstadien der Ausscheidungssequenz mit DOPPLER relativ zu Aluminium. Lediglich die S-Phase mit einer Leerstelle auf dem Cu-Untergitter stimmt mit den experimentellen Spektren überein.

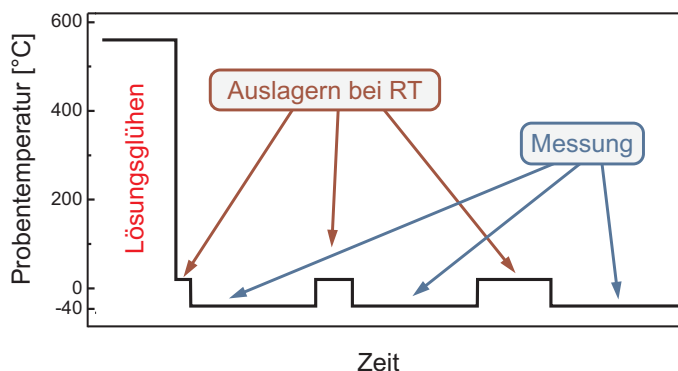
Abbildung 2.37 zeigt die berechneten Spektren einiger möglicher Kandidaten [215]: Einfach-leerstelle in Al, die S-Phase mit einer Leerstelle auf den Cu-Untergitter (S- $V_{Cu}$ ), bzw. auf dem Mg-Untergitter (S- $V_{Mg}$ ), sowie eine Mini-GPZ aus vier Cu-Atomen die in einer  $\{100\}$ -Ebene um eine Leerstelle angeordnet sind.

Über einen Vergleich mit den experimentellen Daten läßt sich die Leerstelle in Al mit Sicherheit ausschließen. Auch die Mini-GPZ und S- $V_{Mg}$  sind unwahrscheinlich, da beide im Bereich niedriger Impulse unterhalb von Eins liegen, was den experimentellen Daten widerspricht. Die S-Phase mit  $V_{Cu}$  stimmt aber relativ gut mit dem Experiment überein, was darauf hinweist, daß die frühen Ausscheidungsphasen der S-Phase zumindest ähnlich sind.



**Abbildung 2.38:** Gemessenes XANES-Spektrum von ausgelagertem AA 2024 ( $\square$ ) und mit FEFF-8 berechnete Spektren für mehrere Modelannahmen der Frühstadien der Ausscheidungsbildung (Linien).

Eine ergänzende Methode zur Identifikation der frühen Phase bietet die Röntgen-Absorptions-Spektroskopie (XAS). Schlägt ein Röntgen-Quant ein Elektron aus dem Atom heraus, verläßt es diese als Kugelwelle, die an den umliegenden Atomen gestreut wird. Dies führt zu Strukturen im Spektrum in der Nähe der Absorptionskante, die spezifisch für die Abstände der umgebenden Atome sind (X-ray absorption near edge structure XANES [218]). Minima und Maxima in den XANES-Spektren ergeben sich dabei durch Interferenz von Mehrfach-Streuereignissen. Ebenso wie Doppler-Spektren lassen sich XANES-Spektren auf der Basis von relaxierten Atomkoordinaten simulieren. Das Programm FEFF-8 [219] berechnet sowohl Einfach- als auch Mehrfachstreuung der Elektronen an den umliegenden Atomen, wobei auch die übernächsten Nachbarn mitberücksichtigt werden. Abbildung 2.38 zeigt ein gemessenes

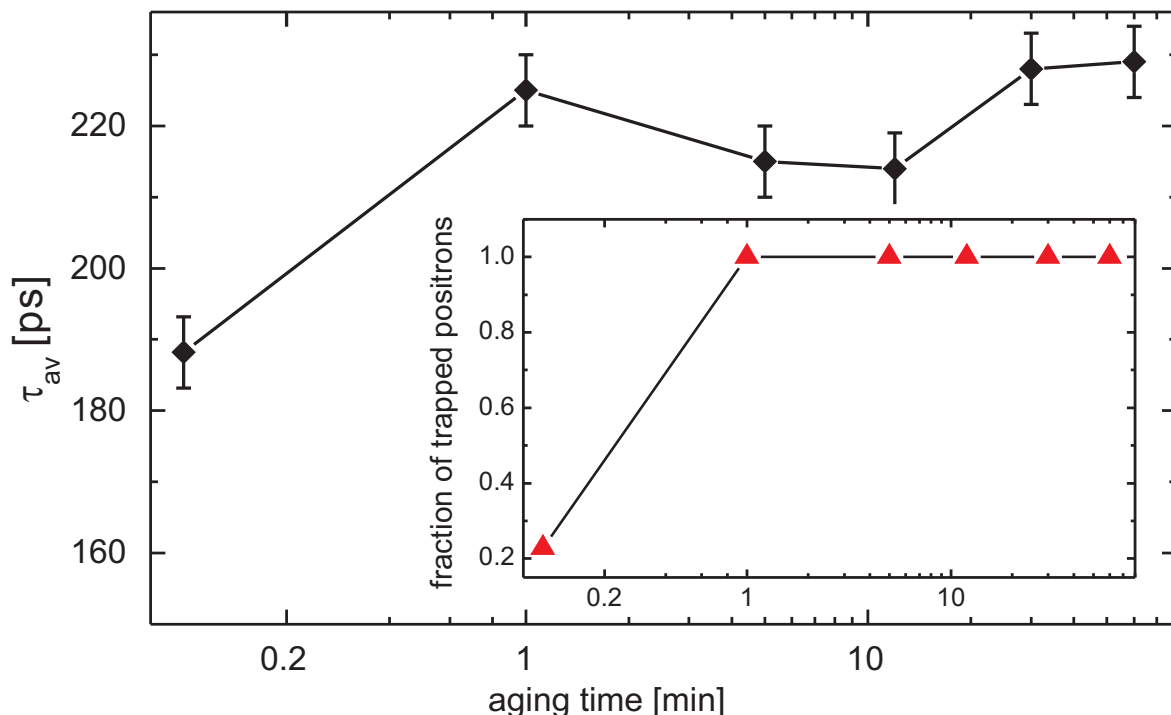


**Abbildung 2.39:** Meßschema mit gekühltem Probenhalter. Nach Lösungsglühen (30 min bei 560°C) und Abschrecken bei RT wird die Probe auf -40°C abgekühlt. Die Messungen finden bei dieser Temperatur statt. Zur Auslagerung wird der Probenhalter für das entsprechende Zeitintervall auf RT

XANES-Spektrum der K-Kante des Kupfers in AA 2024 sowie die berechneten Spektren mehrerer Modellannahmen [220].

Übereinstimmend mit den Resultaten der Doppler-Messungen zeigt auch hier die S-Phase (rote Linie in Abbildung 2.38) die beste Übereinstimmung mit den Meßergebnissen. Das erste Maximum liegt bei der Rechnung bei niedrigerer Energie als im Experiment, was darauf hindeutet, daß die Atomabstände des Cu zu ihren Nachbarn im AA 2024 etwas kleiner sind als in der reinen S-Phase.

Die Untersuchung der Ausscheidungskinetik direkt nach dem Abschrecken ist mit Positronenspektroskopie bei Raumtemperatur nicht möglich, da sich die Struktur der Legierung während der Messung zu stark verändert. Es konnte aber von Røyset et al. gezeigt werden, daß die Kinetik bei  $-40^{\circ}\text{C}$  einfriert und eine Lagerung über den Zeitraum einiger Stunden keinen Einfluß auf die Struktur der Legierung hat [221]. Wird die Probe direkt nach dem Abschrecken bei RT auf einen gekühlten Probenhalter [222] montiert, können die ersten Minuten der Ausscheidungssequenz mit Positronen untersucht werden. Die Messungen finden dann bei  $-40^{\circ}\text{C}$  statt, während die Auslagerung durch kurzzeitiges Aufheizen auf RT simuliert wird. Durch geschicktes Experimentieren kann die Zeit zwischen Abschrecken und Einbau auf unter eine Minute beschränkt werden, so daß die Probe ca. 2 Minuten nach dem Abschrecken auf  $-40^{\circ}\text{C}$  abgekühlt ist. Abbildung 2.39 zeigt eine Skizze des Zeitverlaufs einer solchen Meßreihe.

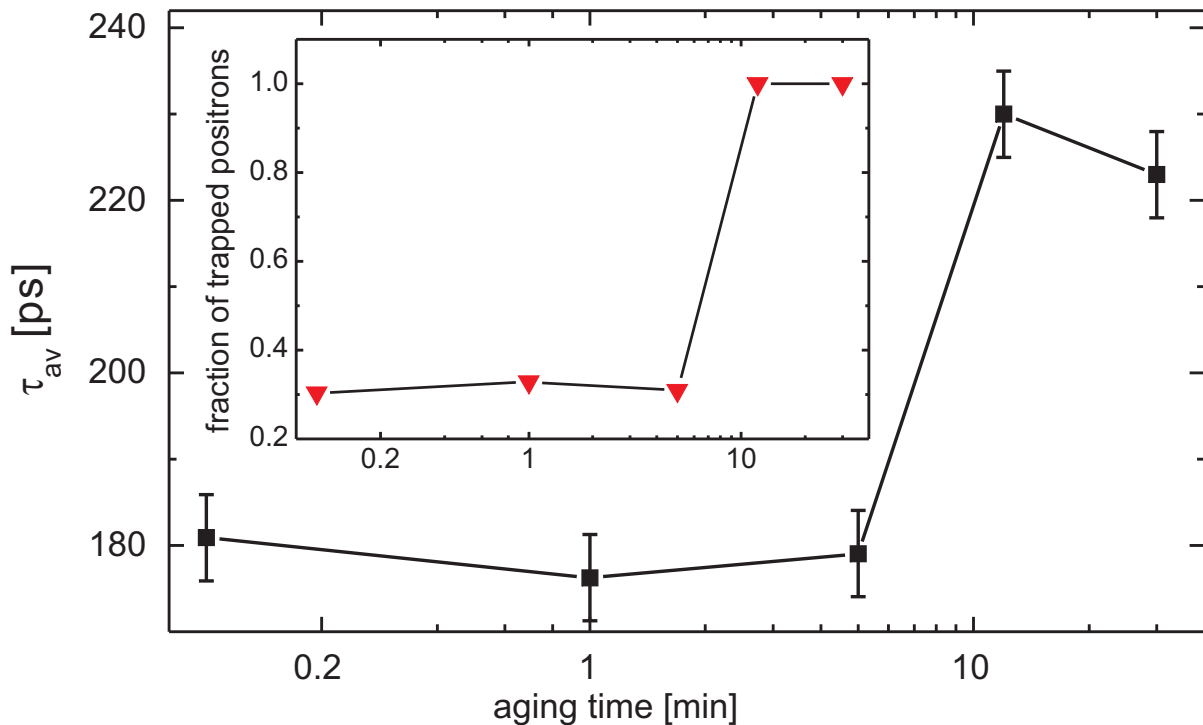


**Abbildung 2.40:** Mittlere Positronen-Lebensdauer in einer AlCuMg-Laborlegierung über der Auslagerungszeit nach dem Abschrecken. Ein Totaleinfang in Al-Leerstellen ( $V_{Al}$ ) wird erst nach einer Minute erreicht.

Die ersten Minuten der Ausscheidungssequenz wurden auf diese Weise an zwei Laborlegierungen mit Positronen-Lebensdauerspektroskopie untersucht [223]: Einer AlCuMg-Legierung mit 1.87 at.% Cu und 1.78 at.% Mg, die weitestgehend AA2024 entspricht, und einer AlMg-Si-Legierung mit 0.42 at.% Mg, 0.41 at.% Si.

Die Lebensdauern in der AlCuMg-Legierung sind über den Zeitraum von einer Stunde nach dem Abschrecken in Abbildung 2.40 halblogarithmisch dargestellt. Jedes untersuchte Spektrum enthält  $1.7 \times 10^7$  Ereignisse, was eine verlässliche Auswertung garantiert. Im Inlett sind die aus den Spektren nach [224] errechneten Anteile des Einfangs in leerstellenartige Defekte angegeben. Das erste Spektrum direkt nach dem Abschrecken besteht aus zwei Komponenten: einem 30%igen Einfang in leerstellenartige Defekte und 70% der reduzierten Al-Lebensdauer. Alle weiteren Spektren lassen sich nicht in mehrere Komponenten zerlegen und zeigen Totaleinfang in Al-Leerstellen-Komplexe, wie er auch von anderen Autoren nach einer Zeit von 30 – 60 min gemessen wird [225,226].

Bei der anderen auf diese Weise untersuchten Legierung (AlMgSi mit) ist dieses Verhalten noch ausgeprägter (siehe Abbildung 2.41). Hier sind die Spektren bis 5 Minuten nach dem Abschrecken zweikomponentig mit einem Einfang von 30% in leerstellenartige Defekte. Erst nach 10 min wird das aus der Literatur bekannte einkomponentige Spektrum mit 220 ps Lebensdauer gefunden [223].



**Abbildung 2.41:** Mittlere Positronen-Lebensdauer in einer AlMgSi-Laborlegierung über der Auslagerungszeit nach dem Abschrecken. Nach 10 min wird der Wert für Totaleinfang in  $V_{Al}$  erreicht. Innerhalb der ersten 5 min werden nur ~30% der Positronen in Leerstellen eingefangen

Laborlegierungen unterscheiden sich von technischen Legierungen durch das weitgehende Fehlen von Verunreinigungen. Trotz dieses Unterschieds lassen sich Ergebnisse vergleichen, wenn man berücksichtigt, daß die Diffusion von Legierungselementen in den reineren Legierungen schneller abläuft.

Im frühesten Stadium der Ausscheidungssequenz scheint ein Großteil der Legierungsatome in Form von Leerstellen-Fremdatom-Komplexen vorzuliegen, die ein steiles Trapping-Potential und damit einen niedrigen Einfangquerschnitt aufweisen, so daß der Großteil der Positronen im Al-Bulk zerstrahlt. Erst wenn sich im weiteren Verlauf der Ausscheidungssequenz weitere Legierungsatome angelagert haben und Agglomerate aus mehreren Fremdatomen um eine Leerstelle entstehen, findet ein Totaleinfang in diese Leerstellen-Fremdatom-Komplexe statt.



# Kapitel 3

## Positronen-Mikrosonden

### 3.1 Ein Überblick aktueller Projekte

Die meisten plastisch verformten oder ermüdeten Materialproben zeigen eine stark inhomogene Verteilung der Gitterfehler über das Probenvolumen. Je nach Probengeometrie ändert sich die Versetzungsdichte in Abständen weniger Mikrometer signifikant. Mit Positronenquellen, die üblicherweise Durchmesser von 0.5 bis einigen Millimetern besitzen, lassen sich diese Strukturen nicht auflösen. Für eine Untersuchung dieser Phänomene mit Positronen ist es daher unabdingbar, in den Mikrometerbereich vorzustoßen.

Die einfachste, wenn auch unbefriedigendste Methode, eine Ortsauflösung unterhalb der Abmessung einer radioaktiven Quelle zu erhalten, ist das Ausblenden der Annihilationsstrahlung mit Kollimatoren [227]. Auf diese Weise wurden Ortsauflösungen um 100  $\mu\text{m}$  erreicht, jedoch der größte Anteil der Positronen verworfen. Weitaus effektiver ist es, einen langsamen Positronenstrahl mit definierter Energie auf die Probe zu fokussieren.

Eine zwingende Voraussetzung zur Realisierung eines Feinfokus-Positronenstrahls sind monoenergetische Positronen, die über Moderation aus dem  $\beta$ -Spektrum eines Positronenemitters gewonnen werden. Dabei macht man sich die negative Austrittsarbeit einiger reiner Metalle (z.B.: W, Mo, Pt) für Positronen zunutze. Thermalisiert ein Positron oberflächennah im Moderator, kann es zur Oberfläche diffundieren und wird von dort mit definierter Energie senkrecht zur Oberfläche emittiert. Die Energieverteilung moderierter Positronen entspricht dabei einer Maxwell-Verteilung [13]. Die Moderation von Positronen wurde 1950 erstmals von Madansky und Rasetti untersucht [228]. Auch wenn es den Autoren nicht gelang, moderierte Positronen signifikant nachzuweisen, erwies sich ihre Idee als richtig und konnte von Cherry 1958 bestätigt werden [229]. Seitdem sind große Fortschritte in der Entwicklung von Moderatoren gemacht worden, wobei hauptsächlich hochschmelzende Metalle (z.B.: [230]) wie W oder Pt sowie feste Edelgase [231,232] zum Einsatz kommen. Für eine Übersicht über die Positronenmoderation siehe auch [13,233].

Um eine laterale Auflösung im Submillimeterbereich zu erreichen, wurden in den letzten Jahrzehnten unterschiedliche Ansätze verfolgt: So kann die negative Austrittsarbeit direkt zur Abbildung von Strukturen auf moderierenden Oberflächen verwendet werden (Positron Re-Emission Microscopy (PRM) [234]). Der Kontrast wird dabei durch Unterschiede in der Moderationseffizienz erzeugt, die z.B. von Unterschieden in der Defektkonzentration, Bereichen mit verschiedener Kristallorientierung oder Oberflächenstrukturen herrühren [235]. Eine hohe Ortsauflösung wird bei der PRM durch wiederholte magnetische nicht-konservative Strahlverkleinerung durch Remoderation erreicht (brightness enhancement [236]). Erste bildgeben-

de Resultate durch Abbildung des mit Positronen bestrahlten Bereichs auf eine Kanalplatte wurden 1988 von Brandes et al. in Transmissionsgeometrie [78] und von van House et al. in Reflektionsgeometrie [237] erzielt. Die Reflektionsgeometrie bietet dabei den Vorteil, daß auch dicke Proben untersucht werden können, wenn ihre Oberfläche eine genügende Reinheit aufweist. 1995 wurde von Goodyear und Coleman ein weiteres PRM vorgestellt, das in Reflektionsgeometrie arbeitet [238].

Bestrahlt man, ähnlich wie in einem Transmissions-Elektronenmikroskop (TEM), eine dünne Folie mit Positronen ( $E_{\text{kin}}$  zwischen einigen keV und einigen 100 keV), kann ein Kontrast auch ohne die Moderationseigenschaften des Targets erzeugt werden. Durch seine entgegengesetzte Ladung unterscheidet sich die Wechselwirkung des Positrons mit dem Target dabei wesentlich von der des Elektrons, so daß andere Kontraste als im TEM erhalten werden. Ein solches Transmissions-Positronenmikroskop (TPM) wurde erstmals 1988 von van House et al. aufgebaut [239]. Am KEK in Japan befindet sich derzeit ein TPM im Aufbau, das aus einem modifizierten kommerziellen TEM besteht, das an den langsamen Positronenstrahl des KEK angeschlossen werden soll [240,241]. Bei den hier beschriebenen Geräten RPM und TPM ist die Größe des Positronenstrahlflecks auf der Probe nicht relevant für die erreichte Ortsauflösung. Diese wird, wie auch beim TEM, ausschließlich durch die Qualität der Strahl-optik bestimmt.

Ein anderer Zugang zu hoher Ortsauflösung, der es ermöglicht die Fehlstellenverteilung in prinzipiell beliebigen Proben zu untersuchen, besteht darin, einen fein fokussierten Positronenstrahl in die Probe zu implantieren und die Annihilationsparameter von Positron und Elektron zu messen. Dabei definiert die Diffusion des Positrons ein physikalisches Limit für die minimal erreichbare Ortsauflösung, das für Strahlenergien von 1 - 50 keV nach [89,242] zu 0.2 - 2  $\mu\text{m}$  abgeschätzt werden kann, wobei der Diffusionsradius stark von der Dichte des untersuchten Materials und seiner Fehlstellenkonzentration abhängt. Zum Abrastern der Probe wird entweder der Positronenstrahl mittels Scan-Spulen wie beim Raster-Elektronenmikroskop (SEM) über die Probe geführt, oder die Probe bei feststehendem Strahl unter der Strahlposition bewegt. Das erste Raster-Positronenmikroskop (Scanning Positron Microscope SPM), wurde 1988 von Brandes et al. realisiert [243], wobei jedoch nur eine Auflösung von Millimetern erreicht wurde. 1995 schlugen Seijbel et al. [244] und Zecca et al. [245,246] unabhängig voneinander ein SPM vor. Seijbel setzte dabei auf ein modifiziertes kommerzielles SEM, das den Positronenstrahl des Forschungsreaktors in Delft über eine Remoderatorstufe als primäre Positronenquelle verwendet.

Der Entwurf von Zecca basiert auf einem gepulsten langsamen Positronenstrahl mit  $^{22}\text{Na}$  als Quelle, bei dem über die Pulsflanke ein Start-Signal zur Lebensdauerermessung zur Verfügung steht. Der Positronenstrahl mit einem Durchmesser von 2 mm wird durch eine von Shao et al. vorgeschlagene magnetische Linse (sog. Pfannenkuchenlinse [247]) am Probenort auf einige Mikrometer zusammengezogen. Dieses Konzept schließt ferromagnetische Materialien als Proben aus, da diese das Fokussierungsfeld verzerren würden. Das Gerät wurde 1997 in München realisiert und erste Testmessungen an einer Au/Si Struktur wurden veröffentlicht [248].

Ein weiterer sehr ambitionierter Entwurf wurde 1997 von Sterne et al. vorgestellt [249,250]. Wie das SPM von Zecca basiert es auf einem gepulsten Positronenstrahl, dessen Phasenraum durch drei aufeinanderfolgende Remoderationsstufen verkleinert wird. Um trotzdem hohe moderierte Flüsse zu erreichen, sollte der am LINAC des LLNL erzeugte Positronenstrahl als primäre Positronenquelle verwendet werden [55]. Es wurden Pulsraten von 20 MHz bei einer Zeitauflösung von 100 ps angestrebt. Dieses Projekt wurde aber leider aus politischen Gründen eingestellt.

1993 wurde am Helmholtz-Institut in Bonn ein SPM entworfen und 1996 in Zusammenarbeit mit der Firma Zeiss/LEO Electron Optics fertiggestellt. Im Unterschied zu anderen Positronen-Mikrostrahlen wurde die Bonner Positronen-Mikrosonde (BPM) konsequent als Laborgerät konzipiert. Der Nachteil geringerer primärer Positronenflüsse im Vergleich zu Reaktor- oder Beschleunigerquellen wird durch eine hocheffiziente Moderation und eine verlustarme Strahlführung kompensiert. Selbst mit einer  $^{22}\text{Na}$ -Quelle mittlerer Stärke (10 mCi) lassen sich so Zählraten von 2000 cps im Photopeak des  $\gamma$ -Spektrums erreichen, was  $\sim 5.7 \times 10^4$  Positronen am Probenort entspricht. Als erste Testmessung wurde bereits 1997 die Fehlstellenverteilung bei einem Drei-Punkt-Biegeversuch in Kupfer vermessen [251,252]. Für die BPM wurden 1996 vom Bundespatentamt zwei Patente erteilt [253].

Inzwischen wurde in Japan ein weiterer Feinfokus-Positronenstrahl fertiggestellt, der mit einer  $^{22}\text{Na}$ -Quelle als primärem Positronenstrahler arbeitet. Die Geometrie der Quelle weist große Ähnlichkeiten mit der der BPM auf. Im Gegensatz zur BPM wird aber ein Moderator aus festem Neon verwendet, der zwar im Vergleich zum Wolfram-Moderator eine höhere Effizienz liefert, aber auch instabiler im Bezug auf die Anzahl der moderierten Positronen ist. Ebenso wie bei der BPM werden Komponenten aus der Elektronenmikroskopie für die Fokussierung und Strahlführung verwendet. In ersten Testmessungen an einem Kupfernetz erreicht das System einen Strahldurchmesser von  $14.5 \mu\text{m}$ , bei einer Zählrate von 150 – 200 Positronen pro Sekunde [254].

## 3.2 Die Bonner Positronen-Mikrosonde (BPM)

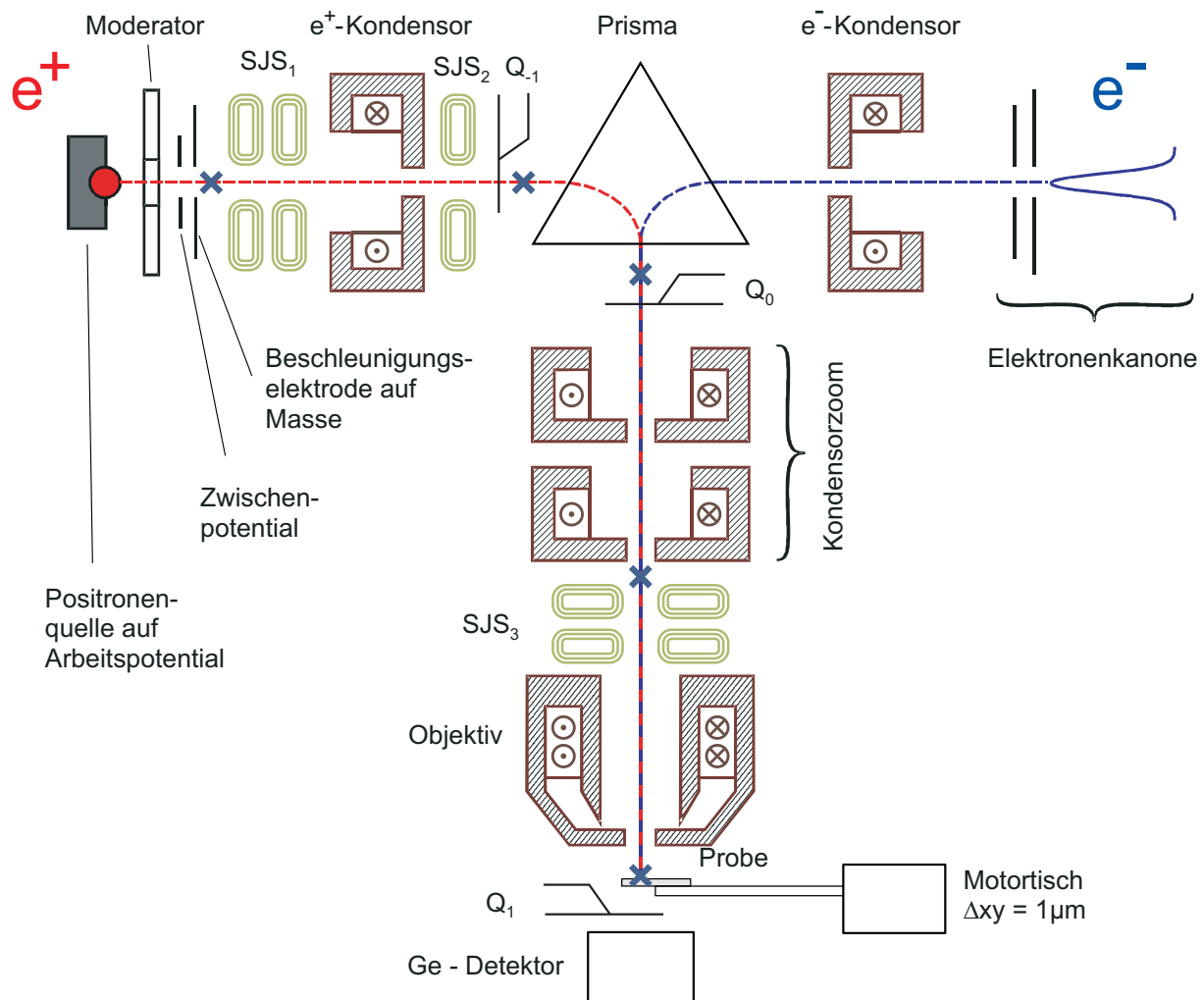
### 3.2.1 Funktionsweise der BPM

Die Bonner Positronen-Mikrosonde (BPM) besteht aus der Kombination eines Positronenstrahls mit feinem Fokus und einstellbarer Strahlenergie und einem voll funktionsfähigem Raster-Elektronenmikroskop (SEM). Mit einem motorgesteuerten 2-Achsen-Positioniertisch ( $\Delta x, \Delta y = 1 \mu\text{m}$ ) verfügt die BPM über ein absolutes Koordinatensystem im dem eine Probe im SEM-Modus eingemessen werden kann. Über die so gefundenen Koordinaten lassen sich die mit Positronen erhaltenen Ergebnisse problemlos den Positionen auf der Probenoberfläche zuordnen, so daß ein zusätzliches Anbringen oder Aufdampfen von Positionsmarken (Pt, Au, Pd) nicht nötig ist. Zusätzlich können die Meßpositionen auch bei einer zwischenzeitlichen Entnahme der Probe aus der Vakuumkammer wiedergefunden werden, was insbesondere bei zerstörungsfreien Reihenuntersuchungen, wie z.B. Ermüdungsversuchen essentiell ist.

**Tabelle VI:** Eigenschaften der Bonner Positronen-Mikrosonde im Überblick.

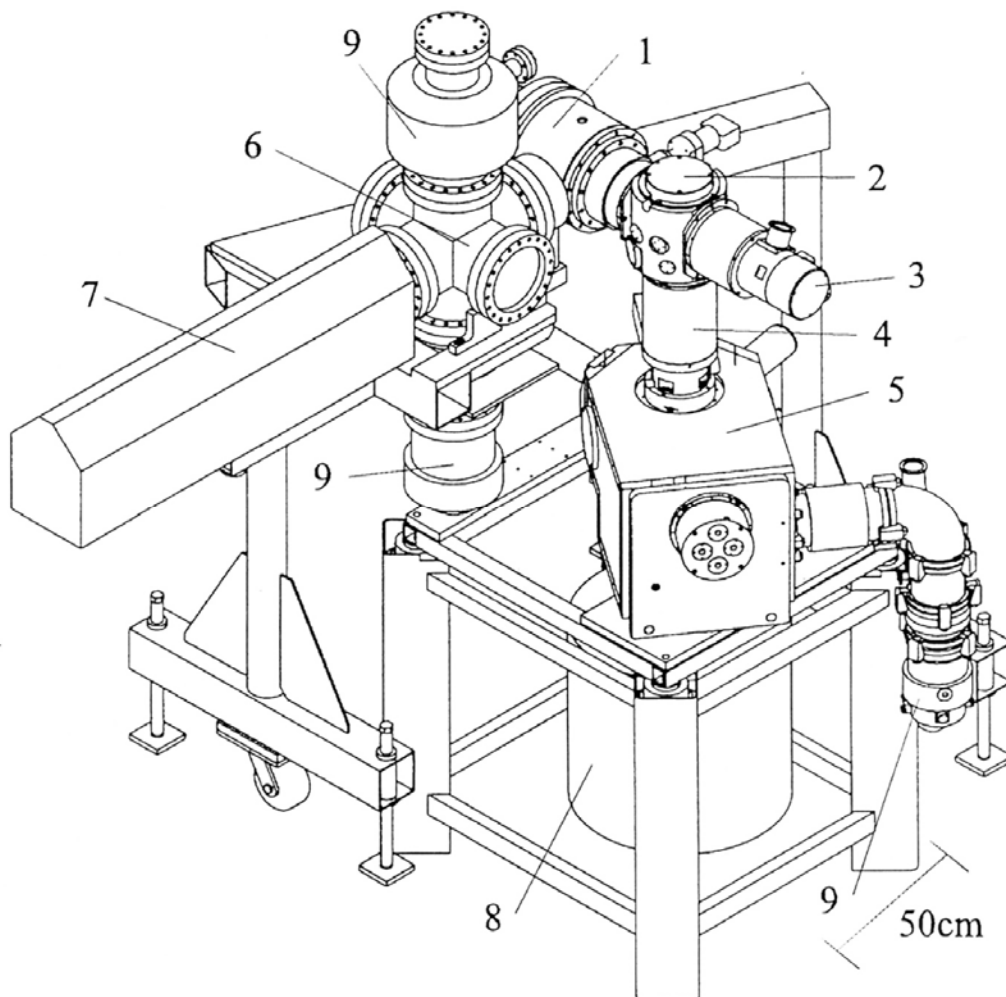
Gammas im Photopeak (511 keV):	Positronen	$\leq 2000$ cps
	Untergrund	0.7 cps
Strahlenergie:	Positronen	4.5 - 30 keV
	Elektronen	0.3 - 30 keV
Strahldurchmesser:	Positronen	1 - 200 $\mu\text{m}$
	Elektronen	$< 12$ nm

Tabelle VI gibt einen Überblick über die wesentlichen Parameter der BPM. Im Normalbetrieb bei Strahldurchmessern um die  $20\ \mu\text{m}$  wird eine Zählrate von bis zu 2000 Annihilationsgammas pro Sekunde im Energiespektrum erreicht. Das heißt, daß ein Bildpunkt, je nach der für die Meßaufgabe nötigen Statistik, zwischen 100 und 300 Sekunden Meßzeit erfordert. Damit läßt sich z.B. die komplette plastische Zone vor einem Ermüdungsriß innerhalb eines Tages vermessen. Eine Verringerung des Strahldurchmessers unter  $20\ \mu\text{m}$  ist nur unter Einbußen in der Zählrate möglich. An der Grenze der Ortsauflösung bei  $1\ \mu\text{m}$  sinkt die Zählrate auf 50 Gammas pro Sekunde ab. Die Strahlposition bleibt aber hinreichend lange stabil, um auch mit diesen Zählraten vernünftig zu messen.



**Abbildung 3.1:** Funktionsweise der Bonner Positronen-Mikrosonde. Eine Positronenquelle und eine Elektronenkanone sind auf der gegenüberliegenden Seite eines magnetischen Prismas angeordnet. Kondensorenlinen fokussieren beide Teilchenstrahlen auf die Eingangsebene des Prismas, das sie um  $90^\circ$  nach unten auf den Eingangsfokus einer elektromagnetischen Säule abbildet. Eine in der Rasterelektronenmikroskopie übliche Kombination aus Kondensorzoo und Objektivlinse fokussiert die Strahlen schließlich auf die Probe, die auf einem programmierbaren Motortisch montiert ist. Im Strahlengang befinden sich drei Strahljustiersysteme, hier in grün dargestellt und mit SJS<sub>1</sub> – SJS<sub>3</sub> bezeichnet. Die Lage der Cross-Over ist durch blaue Kreuze markiert. Es stehen drei Szintillationsdetektoren zum Einfädeln des Strahls zur Verfügung (Q<sub>-1</sub> – Q<sub>1</sub>).

Abbildung 3.1 zeigt eine Skizze des Funktionsprinzips: Positronenquelle und Elektronenkanone befinden sich auf den gegenüberliegenden Seiten eines magnetischen Prismas. Kondensorlinsen fokussieren beide Teilchenstrahlen auf die Eingangsebenen des Prismas. Dessen Geometrie geht auf Castaign und Henry zurück [255], und wurde in der Transmissions-Elektronenmikroskopie (TEM) als Energiefilter zur Kontrastoptimierung eingesetzt. Die Idee dabei ist ein symmetrisches Einkoppeln beider Strahlen in den Strahlengang ohne Umpolen oder Schalten des Ablenkfeldes des Prismas. Dadurch werden Remanenzeffekte vermieden, die eine Neujustage des Strahlengangs nach jedem Wechsel der Teilchenart erforderlich machen würden. Besitzen beide Strahlen dieselbe kinetische Energie, bildet das Prisma sie mit demselben Feld auf den Eingangsfokus der SEM-Säule ab. Eine übliche Kombination aus Kondensorzoom und Objektivlinse projiziert die Strahlen auf die Probenposition. Eine übliche Kombination aus Kondensorzoom und Objektivlinse projiziert die Strahlen auf die Probenposition.



**Abbildung 3.2:** Skizze des Aufbaus der BPM. Abschirmung, Vakuumschläuche und Leitungen sind der Übersichtlichkeit halber weggelassen. (1) Quellkammer mit Positronenquelle. (2) magnetisches Prisma, (3) Elektronenquelle, (4) SEM-Säule mit Kondensorzoom und Objektivlinse, (5) Probenkammer mit Motor-tisch, (6) Kammer zur Präparation des Moderators, (7) Linearführung, (8) Ge-Detektor mit Dewar, (9) schwingungs isolierte HV-Vakuumpumpen.

Je nach Wahl der Spulenströme in der Säule kann der Durchmesser des Positronenstrahls zwischen 1  $\mu\text{m}$  und 200  $\mu\text{m}$  eingestellt werden, was einen weiten Anwendungsbereich erlaubt. Über die einstellbare Positronenenergie zwischen 4.5 und 30 keV sind sowohl die Oberflächeneigenschaften bei 4.5 bis  $\sim 20$  keV zugänglich, als auch das Probeninnere (bulk) bei

30 keV. Zur Entkopplung von Gebäudeschwingungen und Trittschall ist die BPM auf einem 80 mm dicken Aluminiumblech montiert, das an Federn aufgehängt ist. Für weitere Details zur BPM siehe [256].

Die Annihilationsstrahlung der Positronen wird mit einem koplanaren, auf  $\gamma$ -Energien von 0.5 MeV optimierten Germanium-Detektor gemessen (Nachweiswahrscheinlichkeit bei 0.5 MeV:  $\sim 60\%$ ), der mit analoger und digitaler Stabilisierung eine Energieauflösung von 1.05 keV bei 477.6 keV ( ${}^7\text{Be}$ ) erreicht. Der Ge-Detektor ist so unter der Probenkammer angebracht, daß er einen Raumwinkel von  $\Omega/4\pi \approx 0.3$  abdeckt.

Im Gegensatz zum in [245,248] beschriebenen Aufbau, ist zur Strahlfokussierung kein zusätzliches inhomogenes Magnetfeld unterhalb der Probenposition nötig, so daß der Probenort ab 2 mm unterhalb der Objektivlinse feldfrei ist. Das ist eine zwingende Voraussetzung für die Untersuchung ferromagnetischer Werkstoffe (z.B.: Stähle, Ni-Legierungen).

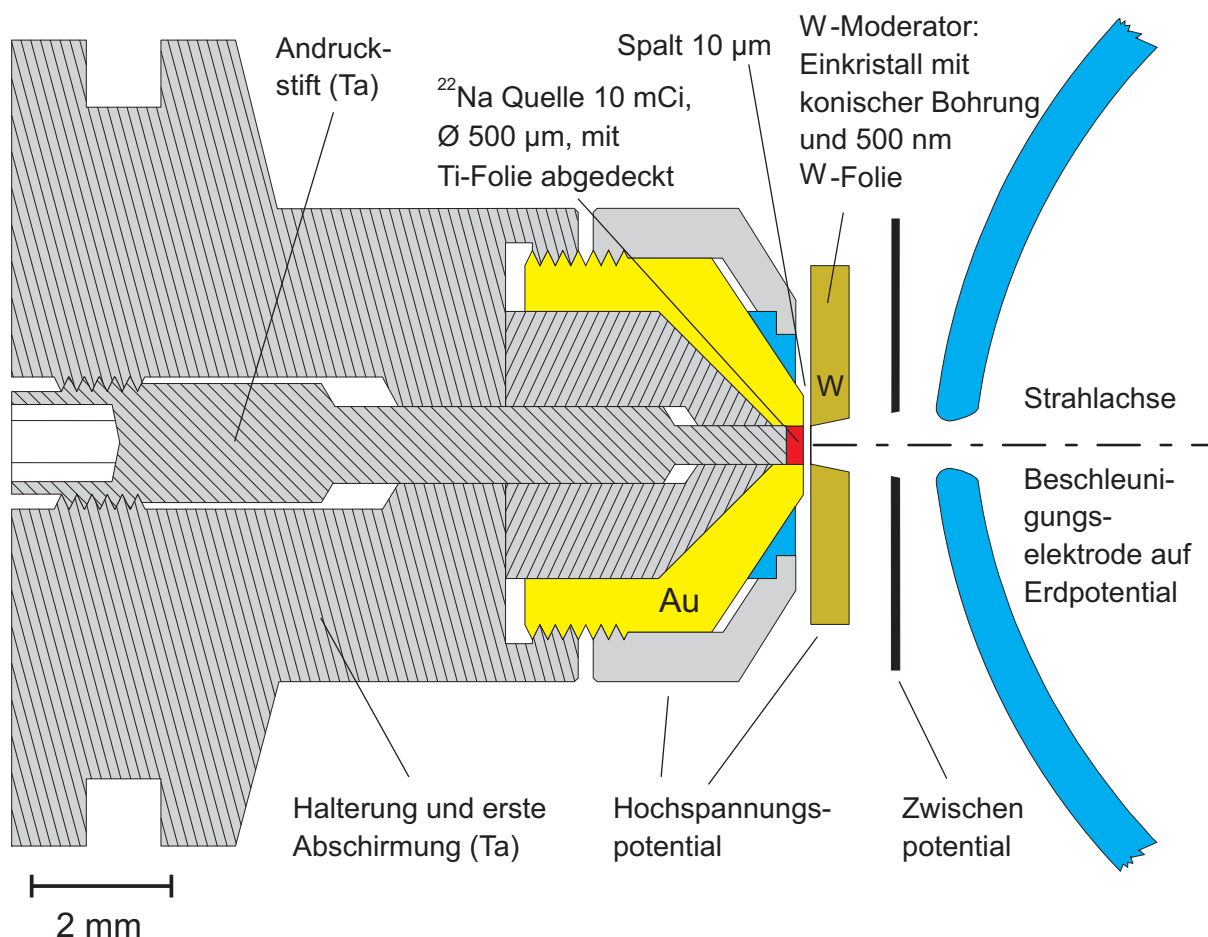
Der Motortisch auf dem sich die Probenhalterung befindet, ist über eine externe Motorsteuerung programmierbar. Mit entsprechender Software wird automatisch eine vorher definierte Liste von Koordinaten angefahren und für jeden Meßpunkt ein Spektrum gespeichert. Auf diese Weise werden die meisten Messungen automatisch erledigt, z.B. über Nacht oder übers Wochenende.

### 3.2.2 Eine miniaturisierte Positronenquelle

Quelle und Moderator der BPM sind miniaturisiert ausgeführt, um schon am Anfang des Strahlengangs einen kleinen Phasenraum zu erhalten (Siehe Abbildung 3.3). Das  ${}^{22}\text{Na}$ -Salz ist dabei in einem Goldhalter mit einer Bohrung von 500  $\mu\text{m}$  untergebracht.

Um Verluste durch Selbstabsorption in der Quelle klein zu halten, wird ein Salz mit hoher spezifischer Aktivität verwendet ( $\sim 320\text{Ci/g}$ ). Die Dicke der Salzfüllung beträgt  $\sim 200 \mu\text{m}$ , so daß auch der hintere Teil der Quelle noch Positronen zum Moderator hin abgibt (Mittlere Eindringtiefe des  $\beta$ -Spektrums von  ${}^{22}\text{Na}$  in NaCl:  $\sim 100 \mu\text{m}$ ). Für eine Quellfüllung verwendet man typischerweise eine Aktivität von 10 mCi, die aus der wäßrigen Lösung in das Quellservoir auskristallisiert wird. Nach hinten ist die Quelle mit einem Tantal-Stopfen abgeschlossen, mit dem das Salz über eine Schraube komprimiert wird. Die Halterung ist ebenfalls aus Tantal gefertigt und dient als erste Abschirmung. Zum Moderator hin ist die Quelle mit einer 3  $\mu\text{m}$  Titanfolie abgeschlossen, die über einen Spannring angedrückt wird. Titan bietet auch als dünne Folie eine vernünftige Festigkeit und absorbiert bei 3  $\mu\text{m}$  Dicke nur 5% der Positronen des  $\beta$ -Spektrums.

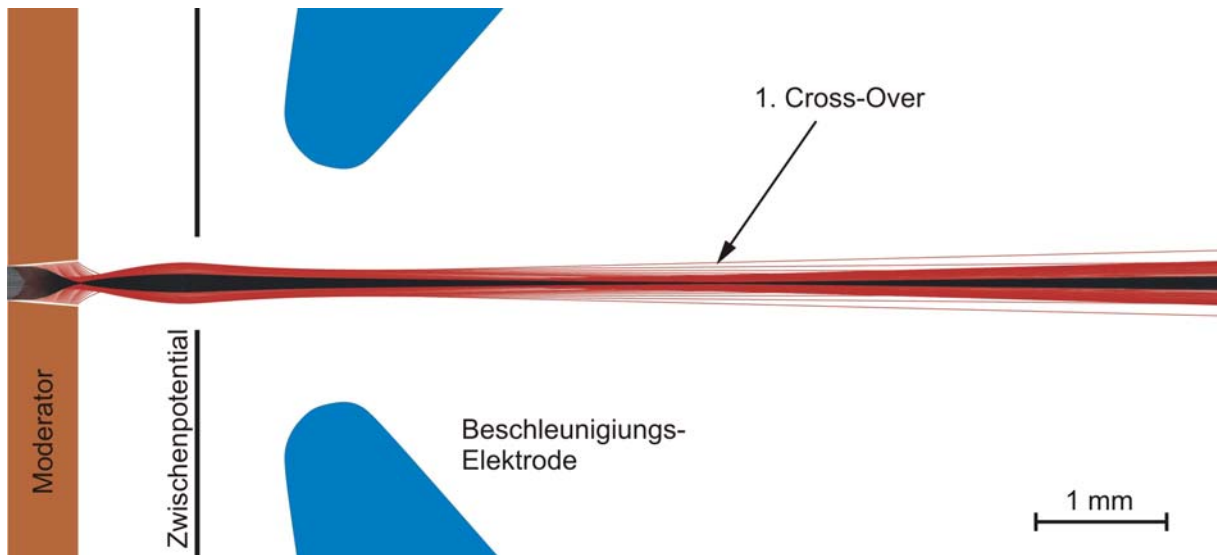
Der Moderator ist als Kombination aus Reflektions- [257] und Transmissionsgeometrie [258] aus Wolfram aufgebaut. Wolfram ist der effizienteste unter den metallischen Moderatormaterialien [259] und hat eine negative Austrittsarbeit für Positronen von  $2.6 \pm 0.075 \text{ eV}$ . Der aktive Teil des Moderators besteht aus einer konische Bohrung in einem Wolfram-Einkristall, an deren Innenwand die Reflexionsmoderation stattfindet. Die Bohrung hat eine Restrauigkeit von unter 1  $\mu\text{m}$  und einen Öffnungswinkel von  $10^\circ$ , der nach Lynn et al. eine maximale Effizienz bietet [258]. Zur Quelle hin ist auf die Öffnung eine 0.5  $\mu\text{m}$  dicke Wolframfolie aufgeschweißt, in der die Transmissionsmoderation stattfindet. Der Moderator befindet sich in 10  $\mu\text{m}$  Abstand von der Quelle, um den Raumwinkel optimal auszunutzen.



**Abbildung 3.3:** Skizze von Quelle und Moderator. Das  $^{22}\text{Na}$ -Salz befindet sich in einem Goldhalter von 500  $\mu\text{m}$  Durchmesser, der nach hinten durch einen Tantalstopfen verschlossen ist. Nach vorne, zum Moderator hin, ist die Quelle durch eine 3  $\mu\text{m}$  Titanfolie abgeschlossen, die über einen Spannring angedrückt wird. Der Moderator aus Wolfram befindet sich unmittelbar vor der Quelle in einer Halterung, die in drei Richtungen justierbar ist. Die Beschleunigung auf Arbeitsenergie findet zweistufig auf einer Strecke von 600  $\mu\text{m}$  statt.

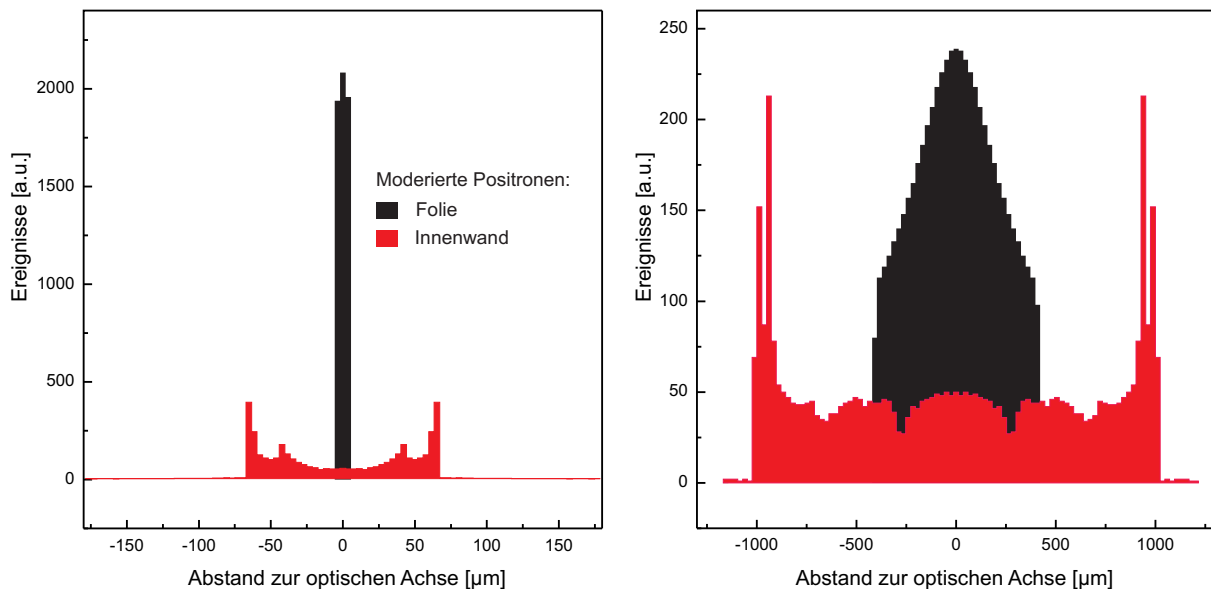
Da der Moderator oberflächenrein und frei von Fehlstellen sein muß, die als Positronenfallen wirken, ist eine aufwendige dreistufige Temperaturbehandlung nötig (Moderatorkonditionierung: 1.) Glühen bei 1500°C, 2.) Entkohlen der Oberfläche mit reinem Sauerstoff bei 1000°C, 3.) Rekristallisationsglühen und Entgasen bei 3000°C, siehe auch [260]). Diese Behandlung findet mittels Elektronenstrahlheizung in einer über ein Plattenventil mit der Quellkammer verbundenen speziellen Präparationskammer statt (siehe Abbildung 3.2). Bei einem Transport des konditionierten Moderators durch Luft würden ca. 90% der Effizienz verloren gehen. Um dies zu vermeiden, wird der Moderator mit einer Linearführung von der Präparationskammer zur Quellkammer verschoben, wobei durch eine zusätzliche Pumpe das Vakuum während des ganzen Vorgangs aufrechterhalten wird.

Die Effizienz des Moderators kann aus der Aktivität der Quelle und den am Probenort erreichten Positronenzählraten zu  $1.7 \times 10^{-3}$  abgeschätzt werden, wobei Verluste im Strahlengang von 60% angenommen werden. Bei einem Vakuum von  $1 \times 10^{-7}$  mBar in der Quellkammer erreicht der Moderator eine Standzeit von einem halben Jahr.



**Abbildung 3.4:** Strahlengang der moderierten Positronen im Bereich der Beschleunigungselektroden, gerechnet mit Simion7. Die Bahnen der beschleunigten Positronen von den Innenwänden der Moderatorbohrung sind in Rot dargestellt, die von der Transmissionsfolie in Schwarz. Der erste Cross-Over wird von der BPM auf die Probe abgebildet.

Quelle und Moderator liegen auf dem elektrischen Potential der Beschleunigungsspannung und sind miteinander über einen Goldkontakt leitend verbunden, damit sich kein statisches Potential aufbaut, das bei einem Überschlag zur Zerstörung beider Bauteile führen würde. Die Beschleunigung der Positronen auf ihre Arbeitsenergie von typischerweise 30 keV erfolgt zweistufig auf einer Strecke von 1.5 mm.



**Abbildung 3.5:** Mit Simion 7 bestimmte Strahlprofile für die in Abbildung 3.4 gezeigten Einstellungen. Links: Am ersten Cross-Over hinter der Beschleunigungselektrode. Rechts: In der Eingangsebene des Kondensators. (■) Von der Folie des Moderators emittierte Positronen; (■) Positronen von der Innenwand der Moderatorbohrung.

Über ein Zwischenpotential wird ein Feldgradient in der Moderatorbohrung erzeugt, der die Positronen absaugt. Über die Potentialdifferenz zur auf Masse liegenden Beschleunigungselektrode werden die Positronen weiter beschleunigt (siehe Abbildung 3.3). In dieser Geome-



trie hat der Positronenstrahl seinen ersten Fokus (Cross-Over) direkt hinter der Beschleunigungselektrode. Der Wert des Zwischenpotentials ist dabei von entscheidender Bedeutung und beeinflusst sowohl die Effizienz der Beschleunigungsstufe als auch die Lage des ersten Cross-Overs im Strahlengang und damit die optischen Abbildungseigenschaften des Gesamtsystems. Abbildung 3.4 zeigt eine Simulationsrechnung des Strahlengangs der Positronen mit Simion7 [261] für ein Zwischenpotential von 1.4 keV und eine Arbeitsenergie von 30 keV. Die von der Innenwand der Moderatorbohrung emittierten Positronen (rot) haben auch nach der Beschleunigungselektrode einen etwas anderen Strahlengang als die moderierten Positronen von der Transmissionsfolie (schwarz).

Dies führt zu einem inhomogenen Strahlprofil, dessen simulierter Querschnitt in Abbildung 3.5 dargestellt ist, und zwar links am Ort des 1. Cross-Overs und rechts in der Eingangsebene der Kondensorlinse. Die von der Moderatorinnenwand emittierten Positronen haben in der Eingangsebene des Kondensors ein ca. doppelt so breites Strahlprofil als die von der Folie stammenden. Die Randbereiche des Strahls werden jedoch im weiteren Verlauf des Strahlengangs durch Blenden hinter dem Prisma und im Kondensor-Zoom der SEM-Säule abgeschnitten, wobei ca. 60% der Positronen verloren gehen. Am Probenort resultiert daraus ein annähernd Gauß-förmiges Profil, das von einem Halo umgeben ist, wobei die maximale Intensität im Halo 2% des Intensitätsmaximums nicht überschreitet.

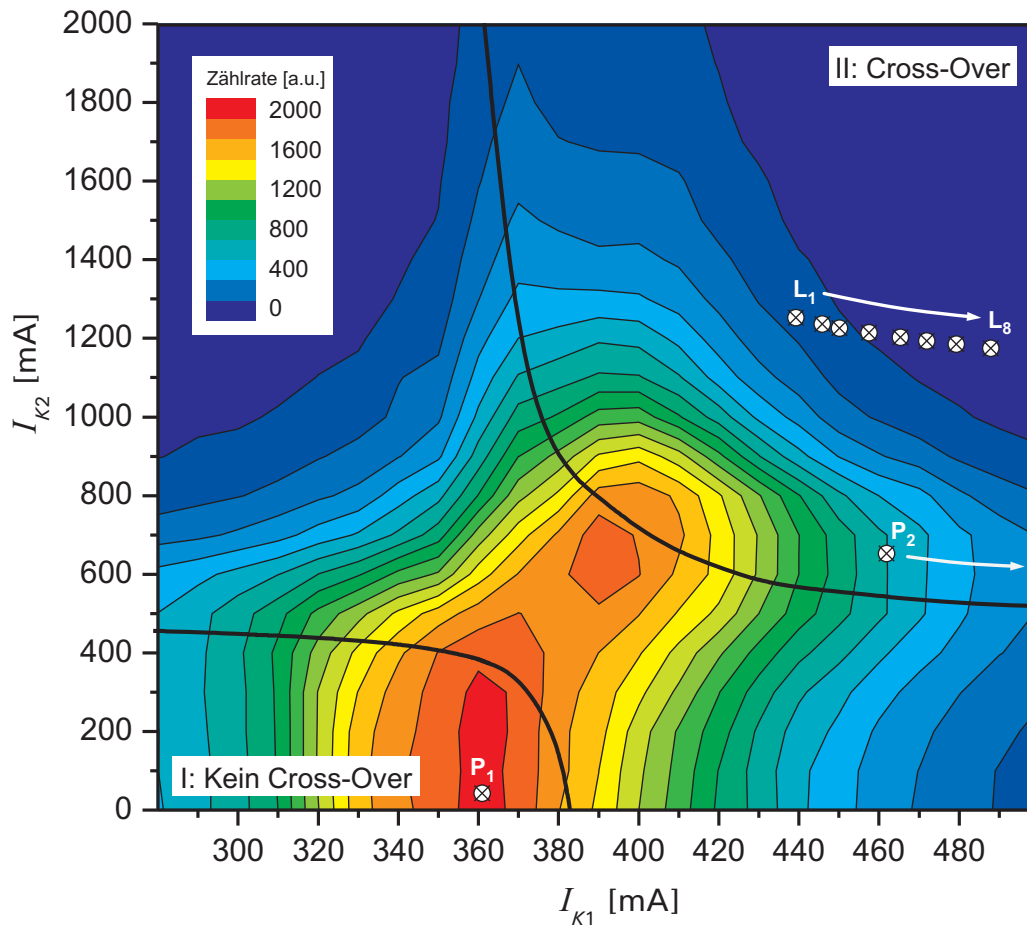
### 3.2.3 Strahljustage und optische Strahlverkleinerung

Typische Strahlströme beim Rasterelektronenmikroskop der BPM liegen bei einem bis einigen zehn Mikroampere, was  $10^{13} - 10^{14}$  Elektronen pro Sekunde entspricht. Die Strahlverkleinerung kann hier nicht nur optisch, sondern auch durch Ausblenden des größten Teils des Strahlquerschnitts erreicht werden. Der Positronenstrom ist hingegen kleiner als  $10^5/s$ , was eine sehr akkurate Strahljustage unter Vermeidung von Verlusten nötig macht. Ähnlich wie im SEM-Teil der BPM befinden sich drei Strahljustiersysteme (SJS) im Strahlengang, die einen Parallelversatz des Strahls und eine Korrektur des Strahlwinkels ermöglichen. Ihre Positionen sind in Abbildung 3.1 skizziert. Die SJS sind aus ein oder zwei Luftspulenpaaren aufgebaut, die über jeweils zwei unabhängige Parameter für die beiden Raumrichtungen senkrecht zur Strahlachse eingestellt werden. Zusätzlich wird die Lage des ersten und zweiten Cross-Overs in Strahlrichtung über das Zwischenpotential in der Beschleunigungselektrode und den Kondensorstrom eingestellt. Die Lage des dritten Cross-Overs unterhalb des Prismas wird dann über dessen Abbildungseigenschaften durch die des zweiten Cross-Overs bestimmt.

Innerhalb der SEM-Säule sind zwei verschiedene Strahlengänge mit sehr unterschiedlichen Eigenschaften möglich. In einem Fall wird eine der Linsen des Kondensorzooms abgeschaltet oder mit minimalen Strömen betrieben, was einen Strahlengang ohne Cross-Over in der Säule ergibt. Mit diesem Strahlengang ist zwar nur eine gesamte Strahlverkleinerung von bis zu 1:20 möglich, er hat aber den Vorteil sehr geringer Positronenverluste in der Säule. Im anderen Fall wird das Kondensorzoom so betrieben, dass ein Cross-Over in der Säule existiert. Bei dieser Einstellung läßt sich eine Strahlverkleinerung bis 1:500 erreichen, man verliert aber auf Grund großer Aperturwinkel in der Säule bis zu 95% der Positronen (siehe auch [256,262]).

Abbildung 3.6 verdeutlicht die beiden Arbeitsbereiche anhand einer Darstellung der mit dem Detektor  $Q_1$  am Probenort gemessenen Zählrate in Abhängigkeit von den Strömen  $I_{K1}$  und  $I_{K2}$  in den beiden Spulen des Kondensorzooms. Bei Werten aus dem oberen rechten Bereich ver-

läuft der Positronenstrahl durch einen Cross-Over im Kondensorzoo. Die für den Elektronenbetrieb der BPM voreingestellten Werte sind durch weiße Kreise bezeichnet, wobei die Strahlverkleinerung von  $L_1$  nach  $L_8$  hin zunimmt. Im unteren linken Bereich verläuft der Positronenstrahl ohne Cross-Over in der Säule. Hier liegt auch der Arbeitspunkt ( $P_1$ ) für Positronen bei minimalem Strahlverlust und einem Strahldurchmesser von  $20\ \mu\text{m}$ . Im Bereich dazwischen, begrenzt durch zwei schwarze Kurven, ist keine Strahlfokussierung möglich, da hier die Bildweite des Kondensorzoo oberhalb der Länge des Strahlenganges liegt.

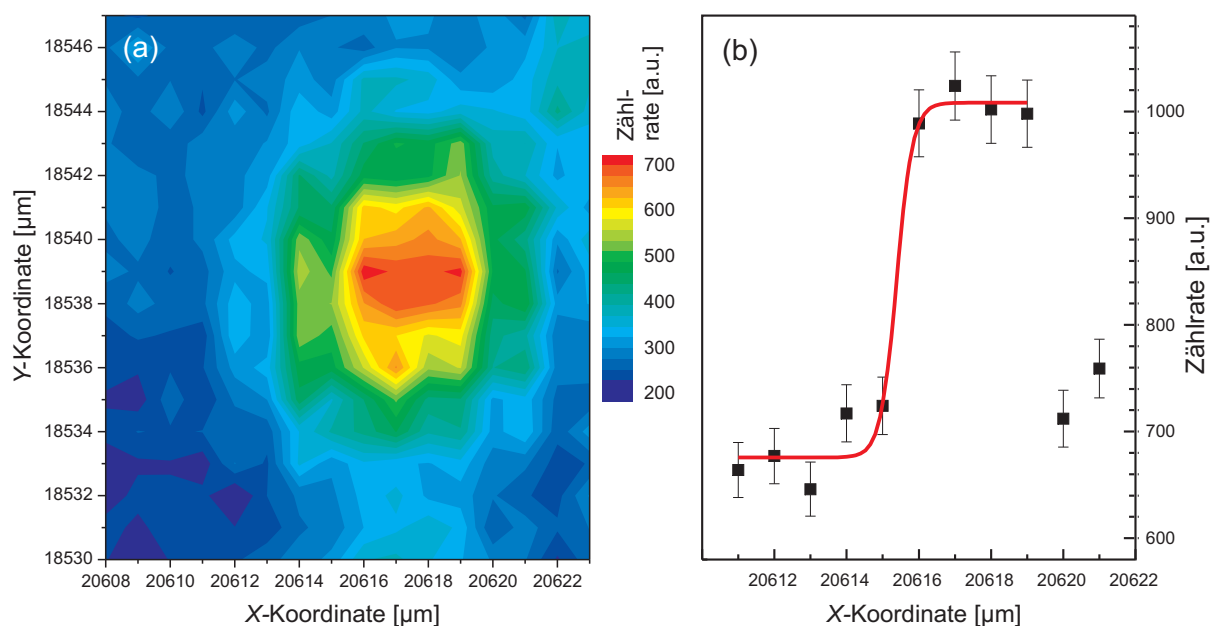


**Abbildung 3.6:** Zählrate am Detektor  $Q_1$  in Abhängigkeit von den Strömen  $I_{K1}$  und  $I_{K2}$  durch die beiden Linsen des Kondensorzoo. Die schwarzen Linien grenzen die Bereiche ein, in denen ein Cross-Over in der Säule existiert (oben rechts) oder keiner existiert (unten links). Im Bereich dazwischen ist eine Fokussierung nicht möglich, weil die Bildweite größer als die Länge des Strahlenganges ist. Die weißen Kreise zeigen die Voreinstellungen der Arbeitspunkte für den Elektronenstrahl der BPM ( $L_1$  bis  $L_8$ ).  $P_1$  bezeichnet den Arbeitspunkt für Positronen bei Strahldurchmesser von  $20\ \mu\text{m}$  und aufwärts. Die Arbeitspunkte für kleine Strahldurchmesser liegen auf der bei  $P_2$  beginnenden Linie.

Um einen Positronen-Strahldurchmesser von  $1\ \mu\text{m}$  oder darunter zu erhalten, kann die BPM wegen der hohen Strahlverluste nicht auf den Arbeitspunkten für Elektronen betrieben werden. Geringere Verluste ergeben sich auf der beim Punkt  $P_2$  in Abbildung 3.6 beginnenden Linie. Folgt man dieser nach rechts, wird ein Strahldurchmesser von  $1\ \mu\text{m}$  erreicht, wobei nur 3% der Positronen diesen Strahlengang überleben [262]. Zur Bestimmung des Strahldurchmessers wurde ein Loch von  $5\ \mu\text{m}$  Durchmesser in einer  $300\ \text{nm}$  dicken Goldfolie mit Positronen abgerastert. Abbildung 3.7 zeigt das Ergebnis (links) und einen Linienscan aus diesen Daten mit angefitzter Sigmoide (rechts), aus deren Steilheit der Strahldurchmesser bestimmt wird. Er beträgt in diesem Beispiel  $1\ \mu\text{m}$  [262].

Die BPM kann also mit geringem Strahlstrom und einer Ortsauflösung von  $1\ \mu\text{m}$  betrieben werden oder mit hohem Strahlstrom bei einer Auflösung von ca.  $20\ \mu\text{m}$ . Die Auswahl der Einstellung für eine Messung hängt von der physikalischen Fragestellung und der damit verbundenen Strukturgröße ab. In einigen Fällen ist es sogar sinnvoll, den Strahl auf mehr als  $20\ \mu\text{m}$  zu defokussieren, um über lokale Schwankungen, z.B. einzelne Kristallkörner, zu miteln.

Zum Einfädeln der Positronen in den Strahlengang stehen Szintillationsdetektoren an drei Positionen zur Verfügung (In Abbildung 3.1 mit  $Q_{-1}$ ,  $Q_0$  und  $Q_1$  bezeichnet). Mit Hilfe dieser Detektoren kann der Positronenstrahl sukzessive vom Moderator (Detektor  $Q_{-1}$ ) durch das Prisma (Detektor  $Q_0$ ) und durch die Säule (Detektor  $Q_1$ ) geführt werden. Die Empfindlichkeit der Detektoren für einzelne Positronen ist insbesondere nach einem Quell- oder Moderatorwechsel hilfreich, wenn die Parameter für die einzelnen SJS neu bestimmt werden müssen.



**Abbildung 3.7:** Scan mit einem Positronenstrahl von  $1\ \mu\text{m}$  Durchmesser über ein  $5\ \mu\text{m}$   $\emptyset$  Loch in einer dünnen Goldfolie. Die Koordinaten sind in den Absolutwerten des Motortisches gegeben. (a): Falschfarbendarstellung der Zählrate in den Absolutkoordinaten der BPM. (b): Eine ausgewählte Linie aus (a), sowie ein Sigmoidenfit über die Daten (rote Linie), der den Anstieg der Zählrate innerhalb eines  $1\ \mu\text{m}$  Schrittes des Motortisches zeigt.

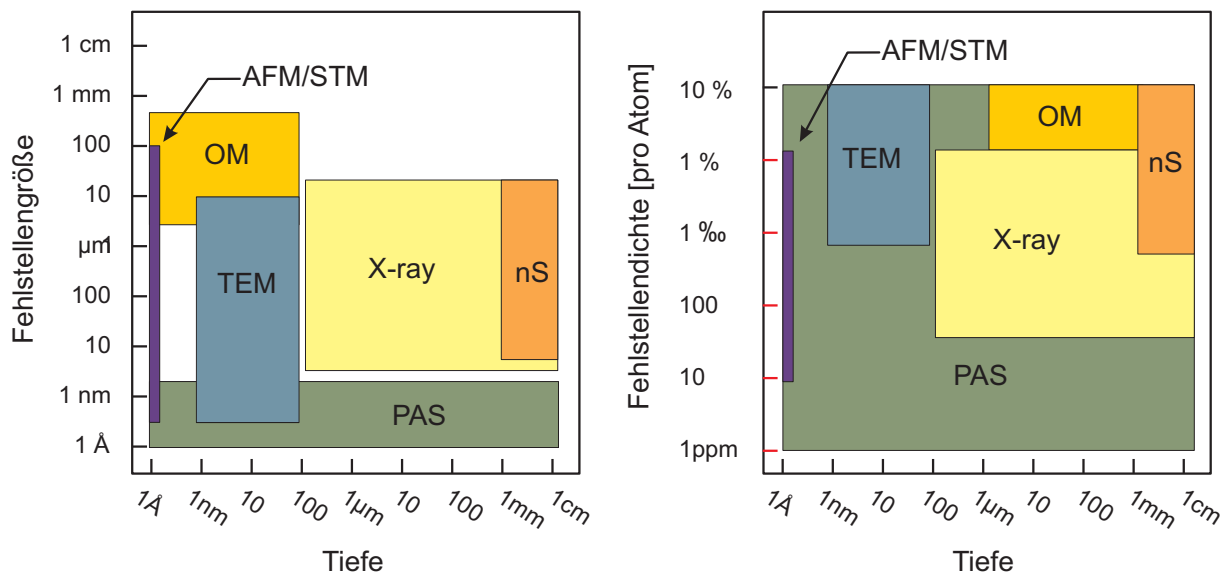
Ist einmal eine optimale Justage der BPM gefunden, sollte sie sich während einer Meßreihe nicht ändern. Mechanische Spannungen oder durch Temperaturschwankungen hervorgerufene Änderungen der Geometrie führen jedoch zu Abweichungen des Strahlengangs vom vorgesehenen Verlauf, was im schlimmsten Falle zur Folge hat, daß der Positronenstrahl den Probenort nicht mehr erreicht. Zum Ausgleich dieser Abweichungen müssen die Parameter der SJS während der Messung nachgeführt werden. Dazu wurde eine automatische Strahljustage entwickelt, die sich die Tatsache zu Nutze macht, daß alle Abweichungen von der Justage zu einer Verringerung der Positronenzählrate führen. Ein einfacher Algorithmus mißt zwischen einzelnen Meßpunkten einer Meßreihe die Änderung der Zählrate in Abhängigkeit von einer Variation einzelner Justageparameter. Sollte sich das Maximum der Zählrate nicht mehr am eingestellten Arbeitspunkt der BPM befinden, wird der Parameter entsprechend nachgestellt. Dieses Vorgehen ermöglicht auch lange Meßreihen über den Zeitraum von mehreren Tagen bis Wochen, ohne das die BPM von Hand nachjustiert werden muß [263].



# Kapitel 4

## Plastizität und Materialermüdung

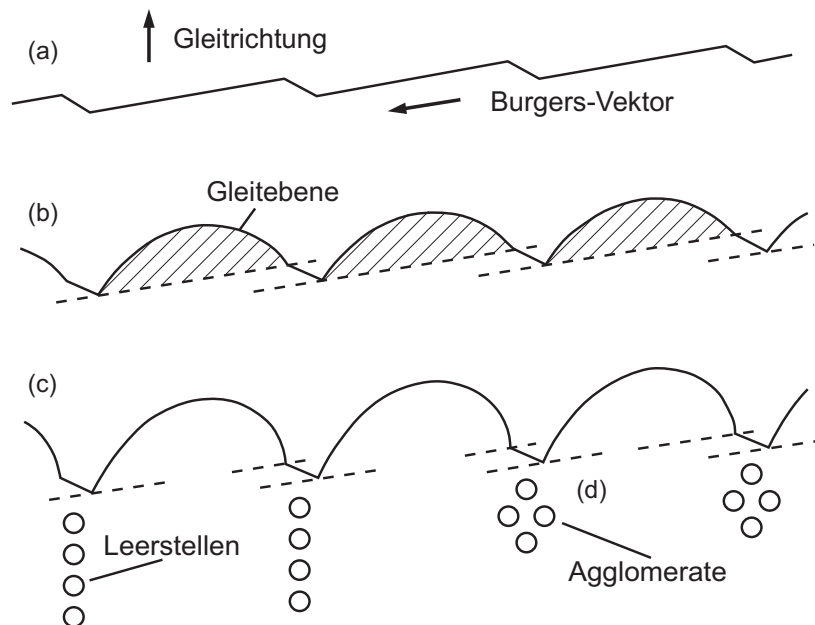
Bereits in den 1960er Jahren – in den Anfängen der Positronenphysik – stellte sich heraus, daß die große Sensitivität der Positronen für Gitterfehler die PAS zu einem geeigneten Instrument zum Nachweis von Plastizität und Ermüdung in metallischen Werkstoffen macht [4,5]. Ausgehend vom thermisch ausgeheilten Zustand in Metallen steigt die Versetzungsdichte während eines Zug- oder Ermüdungsversuchs um mehrere Größenordnungen. In beiden Fällen kommt es dabei zu einer signifikanten Änderung sowohl in der mittleren Positronen-Lebensdauer, als auch im Doppler-Spektrum. Dies kann jedoch nicht allein über den Einfang von Positronen in Versetzungen erklärt werden, da Versetzungen bei Raumtemperatur flache Positronenfallen mit einer Bindungsenergie in der Größenordnung von  $\lesssim 100$  meV darstellen [102-104].



**Abbildung 4.1:** Überblick über unterschiedliche Methoden zur Fehlstellenanalytik. PAS: Positronenspektroskopie, OM: optische Mikroskopie, TEM: Transmissionsmikroskopie, X-ray: Röntgenstreuung, nS: Neutronenstreuung. Nach [264].

Durch eine Vielzahl irreversibler Prozesse werden während der Versetzungsmultiplikation Leerstellen und Zwischengitteratome erzeugt [10, 265]. Ein effektiver Mechanismus ist das Schneiden von Versetzungen, wobei nicht-gleitfähige Sprünge (Jogs) auf der Versetzungslinie entstehen. Gleiten diese Versetzungen, so können sich die Sprünge nur durch Klettern bewegen, wobei Ketten von Zwischengitteratome und Leerstellen erzeugt werden (Jog-Dragging)

(siehe Abbildung 4.2 und z.B. [266]). Die Erzeugung von Versetzungen ist also immer an die Erzeugung von Leerstellen und leerstellenartigen Defekten gekoppelt [267, 268], die mit hoher Sensitivität mit Positronen nachweisbar sind. In diesem Sinne wird der Anstieg der Versetzungskonzentration während plastischer Verformung und Ermüdung indirekt über eine Erhöhung der Leerstellenkonzentration nachgewiesen.

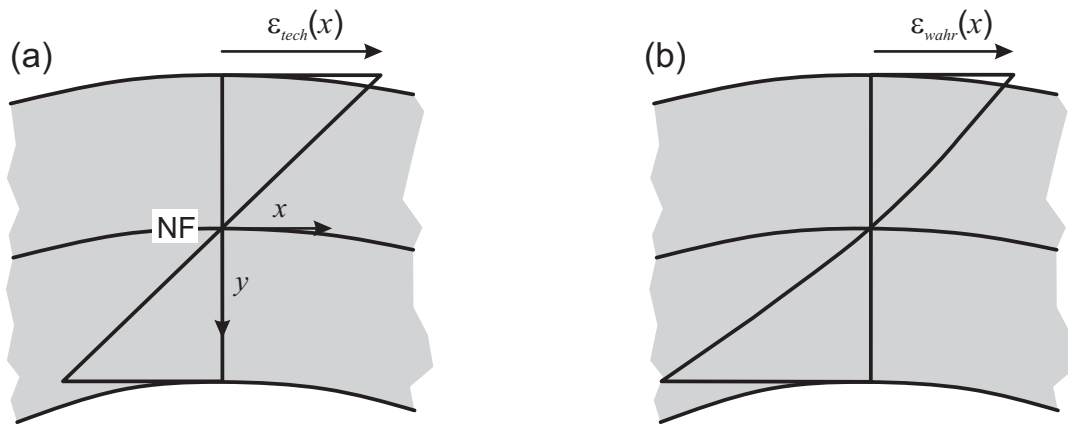


**Abbildung 4.2:** Bewegung einer Schraubenversetzung mit Jogs (Sprüngen außerhalb der Gleitebene). (a): Glatte Versetzung ohne Spannung. (b): Unter Spannung baucht sich die Versetzung in der Gleitebene aus. (c): Beim Gleiten hinterläßt sie an den Jogs Ketten von Leerstellen, die sich, wenn es energetisch günstig ist, zu Agglomeraten (d) zusammenschließen. Nach Hull [266].

Es gibt eine ganze Reihe von experimentellen Techniken zur Charakterisierung und Identifikation von Störungen der Kristallstruktur. Aber nur wenige bieten einen direkten Zugang zu atomaren Fehlstellen wie Leerstellen, Versetzungen und Leerstellenagglomeraten. Abbildung 4.1 zeigt einen Überblick über diese Methoden und ihren Sensitivitätsbereich. Die PAS besetzt darin eine Nische bei atomaren Defekten über einen sehr großen Dynamikbereich der Fehlstellenkonzentration von  $10^{-6}$  bis  $10^{-2}$  pro Atom. Die Nachweistiefe läßt sich dabei über die kinetische Energie der Positronen vom Sub-Nanometerbereich bis zur Größenordnung von Zentimetern einstellen. Im Falle einfacher Fehlstellengeometrien lassen sich die Zerstrahlungsparameter des Positrons in Metallen, Legierungen und Halbleitern mit ab-initio Methoden quantenmechanisch berechnen [93]. In einigen Fällen ist so eine Identifikation des Fehlstellentyps durch Vergleich der Rechnungen mit den experimentellen Ergebnissen möglich.

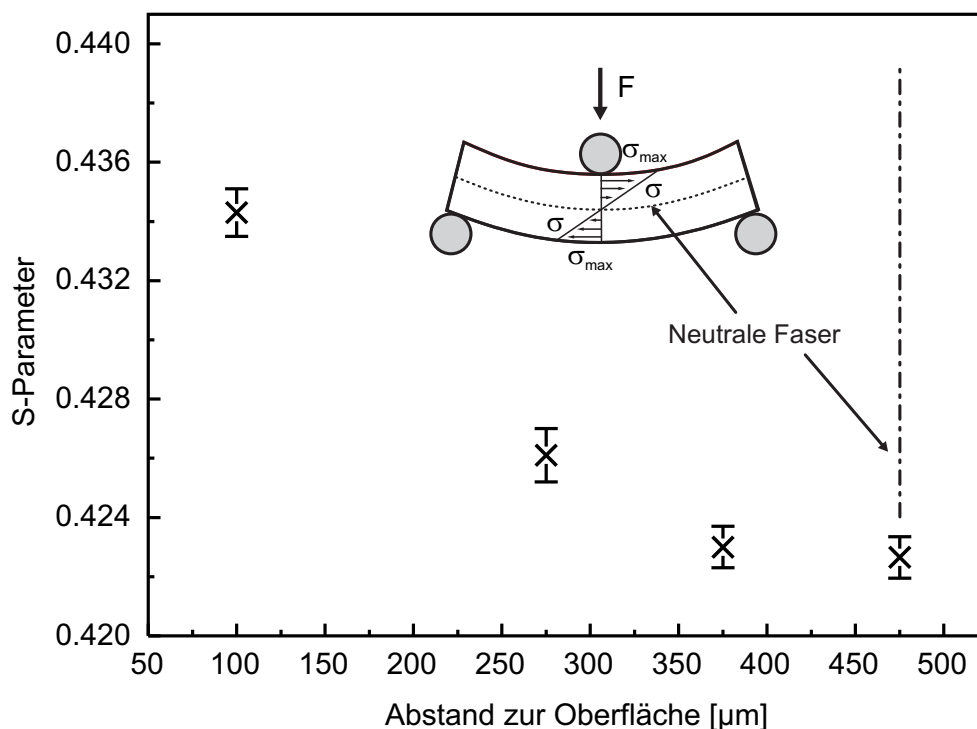
## 4.1 Nachweis der Plastizität mit Positronen

Bei den meisten plastisch verformten oder ermüdeten Proben weist die Fehlstellenkonzentration eine stark inhomogene Verteilung über das Probenvolumen auf. Die Längenskala der Konzentrationsänderung reicht dabei, abhängig von Versuchsaufbau und Probengeometrie, von einigen Mikrometern bis zu Millimetern. Ortsauflösungen unter einem Millimeter sind mit konventionellen Positronenquellen nur schwer zu erschließen und werden erst durch Untersuchungen mit einem Feinfokus-Strahl möglich.



**Abbildung 4.3:** Lokale Dehnung  $\epsilon(x)$  über den Probenquerschnitt einer Drei-Punkt-Biegeprobe (NF: neutrale Faser). (a) Technische Dehnung. (b) Wahre Dehnung.

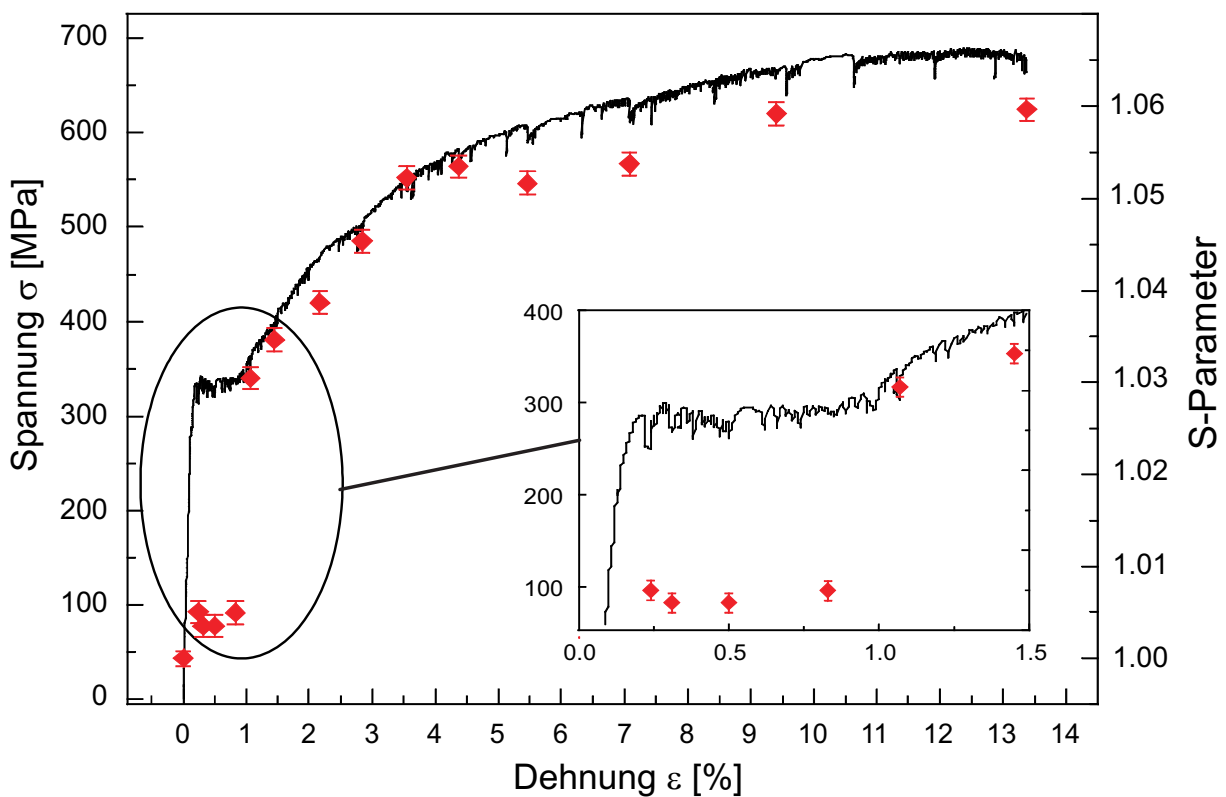
1997 wurde, als erste Testmessung der Bonner Positronen-Mikrosonde (BPM), das Fehlstellenprofil über ein Plättchen technischen OFC-Kupfers gemessen, das in einem Drei-Punkt-Biegeversuch über  $3 \times 10^4$  Zyklen ermüdet wurde [251,252]. Die maximale Dehnungsamplitude betrug  $\epsilon = 4 \times 10^{-3}$  an der Probenoberfläche. Eine Besonderheit der Drei-Punkt-Biegegeometrie ist die neutrale Faser in der Probenmitte, an der praktisch keine Kräfte und damit auch keine Dehnungen auftreten (siehe Abbildung 4.3). Die Dehnungs- und Spannungsamplituden nehmen ihr Maximum an den Probenoberfläche an und variieren für kleine Amplituden näherungsweise linear über der Probenquerschnitt [269]. Danach ist zu erwarten, daß auch die Fehlstellenkonzentration an der Probenoberfläche maximal wird und an der neutralen Faser keine Änderung zeigt.



**Abbildung 4.4:** Erste Messung mit der Bonner Positronen-Mikrosonde: Verlauf des S-Parameters über den Querschnitt eines Kupferplättchens nach Ermüdung im Drei-Punkt-Biegeversuch. Die neutrale Faser liegt 475  $\mu\text{m}$  unter der Oberfläche.

Vor der Ermüdung wurde ein fehlerstellenarmer Ausgangszustand über eine Wärmebehandlung bei 900 °C im Hochvakuum eingestellt. Dadurch wird sichergestellt, daß die Meßergebnisse nicht durch die Vorgeschichte (z.B. Kaltwalzen) des Werkstücks überlagert werden. Beim damaligen Zustand der BPM war die Messung mit einem Strahldurchmesser von 30 µm nur mit einer Zählrate von ~30 cps möglich, so daß lediglich vier Meßpunkte aufgenommen wurden, um den Verlauf des Fehlerstellenprofils zu zeigen.

Abbildung 4.4 zeigt die Ergebnisse. Der S-Parameter nimmt von der neutralen Faser zur Oberfläche hin zu. In der Umgebung der neutralen Faser (bei 375 bzw. 475 µm) sind die Werte des S-Parameters im Rahmen der Fehler identisch und entsprechen dem Wert für ausgeheiltes Kupfer. Im Abstand von 100 µm von der Probenmitte ist die lokale Dehnung  $\epsilon(x) < 8 \times 10^{-4}$ . Diese Amplitude reicht nicht aus, um die Versetzungsdichte innerhalb von  $3 \times 10^4$  Verformungszyklen über die Ansprechschwelle für Positronen hinaus zu erhöhen. Diese wurde von Wider et al. für Kupfer zu  $\rho_{disl} = 3(1) \times 10^{12} \text{ m}^{-2}$  bestimmt [99].



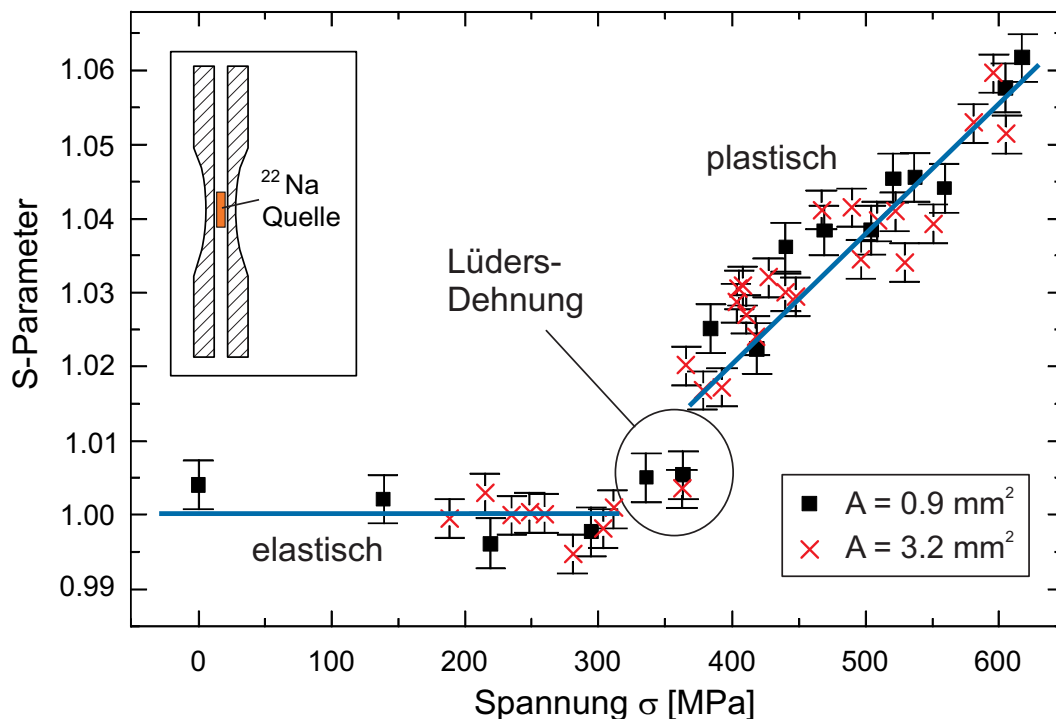
**Abbildung 4.5:** Spannungs-Dehnungs-Diagramm des ferritischen Stahls C45E. Verlauf der Zugspannung  $\sigma$  (—) und des S-Parameters (◆) bei steigender Dehnung im Zugversuch. Der Bereich der ausgeprägten Streckgrenze (Lüders-Dehnung) ist herausvergrößert.

Um den Zusammenhang des S-Parameters mit der Versetzungsdichte genauer zu untersuchen wurden eine Reihe von Zugversuchen an reinen Metallen (Al und Cu: [110]) und technisch relevanten Legierungen durchgeführt (austenitischer Stahl AISI 321 und ferritischer Stahl C45E [21,270], Titan und Titanlegierung TiAl6V4 [271]). Die Abbildungen 4.5 und 4.6 zeigen die Ergebnisse für den ferritischen Stahl C45E aus drei unabhängigen Zugversuchen. Wie im vorangegangenen Experiment wurde ein reproduzierbarer Ausgangszustand über eine Wärmebehandlung eingestellt (3h bei 680°C im Hochvakuum). Abbildung 4.5 zeigt die Zugspannung und den S-Parameter abhängig von der Dehnung für C45E. Bis zur Fließgrenze bei  $\sigma_{0.2} = 340 \text{ MPa}$  verhält sich die Legierung elastisch. Im Bereich der ausgeprägten Streckgrenze



ze ( $\epsilon_{02} < \epsilon < \sim 1\%$ ) ist die plastische Verformung durch das Losreißen der Versetzungen von interstitiell gelösten Kohlenstoffatomen (Cottrell-Wolken [272]) bestimmt (Lüders-Dehnung [273]). Da es hier nur zu einem geringen Anstieg der Versetzungsdichte kommt, steigt der S-Parameter nur um einen kleinen Betrag auf 1.004(2). Im weiteren Verlauf des Zugversuchs jenseits der Streckgrenze steigt die Versetzungsdichte an, was durch eine stetige Zunahme des S-Parameters bis hin zum Bruch bei  $\epsilon_B = 13.5\%$  wiedergegeben wird.

Eine genauere Einsicht in den elastischen Anteil der Zugverformung zeigt Abbildung 4.6 in einer Auftragung des S-Parameters gegen die Zugspannung. Die Daten stammen von zwei unabhängigen Messungen an röhrenförmigen Proben, in deren Inneren sich eine Positronenquelle ( $^{22}\text{Na}$ ) befindet. In elastischen Bereich unterhalb der Fließgrenze bei  $\sigma_{02} = 330 \text{ MPa}$  ist kein Anstieg des S-Parameters zu beobachten. Jenseits der Lüders-Dehnung bei  $\sigma \approx 380 \text{ MPa}$  verläuft der S-Parameter bis zum Bruch bei  $\sigma_B \approx 610 \text{ MPa}$  näherungsweise linear mit der Zugspannung [270].



**Abbildung 4.6:** In-situ Messung des S-Parameters während eines Zugversuchs an C45E in zwei unabhängigen Versuchen mit röhrenförmiger Probengeometrie (Querschnittsflächen:  $0.9 \text{ mm}^2$  ■,  $3.2 \text{ mm}^2$  ×). Die Positronenquelle befindet sich im Inneren des Röhrchens.

Definiert man die Verfestigung  $\Delta R_V$  als Zunahme der Fließgrenze nach jedem Zugschritt, findet man empirisch eine Proportionalität zwischen der Änderung im S-Parameter  $\Delta S = S - 1$  und der Verfestigung  $\Delta R_V$ . Unter der Annahme einer homogenen Versetzungsdichte ist die Verfestigung im feinkörnigen Polykristall proportional zur Wurzel aus der Versetzungsdichte  $\rho_{\text{dist}}$  [274]. Es lässt sich also die folgende einfache Beziehung für polykristalline Metalle ableiten:

$$\rho_{\text{dist}} \sim \Delta S^2 \quad (4.1)$$

Mit Hilfe numerischer Anpassung eines Trapping-Modells an Positronen-Lebensdauermessungen kann der Empfindlichkeitsbereich für den Fehlstellennachweis mit Positronen in verformten Metallen nach Staab et al. eingegrenzt werden [100]:

$$1.5 \times 10^8 \text{ cm}^{-2} \leq \rho_{\text{disl}} \leq 5.4 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2} \quad (4.2)$$

$$1.2 \times 10^{-6} \leq C_{\text{vac}} \leq 4.3 \times 10^{-4} \quad (4.3)$$

$$1.4 \times 10^{-7} \leq C_{\text{clust}} \leq 3.3 \times 10^{-4} \quad (4.4)$$

$\rho_{\text{disl}}$  ist die Versetzungskonzentration,  $C_{\text{vac}}$  die Leerstellenkonzentration und  $C_{\text{clust}}$  die Konzentration von Leerstellenagglomeraten von ca. 5 – 10 Leerstellen. Bei plastisch verformten Metallen ist  $C_{\text{vac}}$  allerdings mit  $C_{\text{disl}}$  korreliert.

Auch wenn die in (4.2) - (4.4) angegebenen unteren Schwellen recht zuverlässig sind, kann die obere Schwelle nur als grobe Abschätzung gesehen werden, da die Voraussetzung einer mikroskopisch homogenen Versetzungsverteilung für stärkere Verformungsgrade nicht gegeben ist. Im Allgemeinen bilden sich im fortgeschrittenen Stadium stark inhomogene Versetzungsstrukturen wie z.B. persistente Gleitbänder aus (z.B.: [275]).

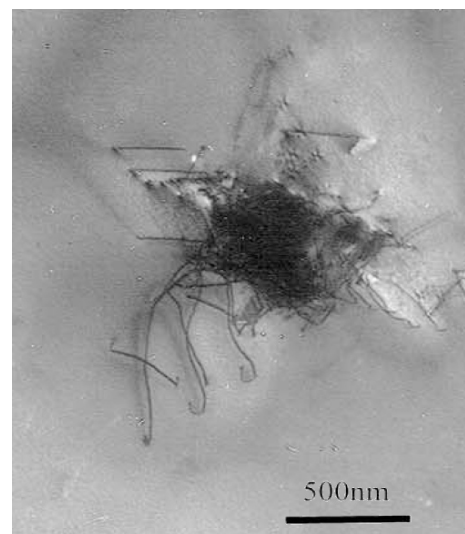
## 4.2 Abbildung von Deformationszonen – Ein Überblick

Bei der Untersuchung von Plastizität und Ermüdung in Metallen ist die Ausdehnung und Form plastisch deformierter Bereiche oft von besonderem Interesse. So kann z.B. von der Größe einer plastischen Zone vor einem Ermüdungsriß auf den weiteren Rißfortschritt geschlossen werden [276]. Es gibt nun eine ganze Anzahl von Methoden zum ortsaufgelösten Nachweis plastisch deformierter Bereiche. Diese können in zwei Klassen unterteilt werden: in zerstörende und zerstörungsfreie Methoden. Einen kurze Übersicht gibt ein Artikel von Uğuz [277].

### 4.2.1 Zerstörende Methoden

#### Transmissions-Elektronenmikroskopie

Einen direkten Nachweis von Versetzungen und Versetzungsstrukturen ermöglicht die Transmissions-Elektronenmikroskopie (TEM). Die TEM gehört definitiv zu den zerstörenden Methoden, da ein dünnes Plättchen (Dicke ~30 nm), das für Elektronen einer Energie von 200 – 400 keV durchlässig ist, aus der zu untersuchenden Region herauspräpariert werden muß. Die TEM kann atomare Auflösung erreichen, wobei der Bildkontrast durch Streuung der Elektronen an den Atomrümpfen erzeugt wird. Durch ihr mechanisches Verzerrungsfeld geben Versetzungen ebenfalls einen Bildkontrast im TEM. Ein sehr schönes Beispiel für die Abbildung einzelner Versetzungen zeigt Abbildung 4.7 (aus [278]). Aufgrund der hohen Auflösung ist der untersuchbare Bereich auf die Größe

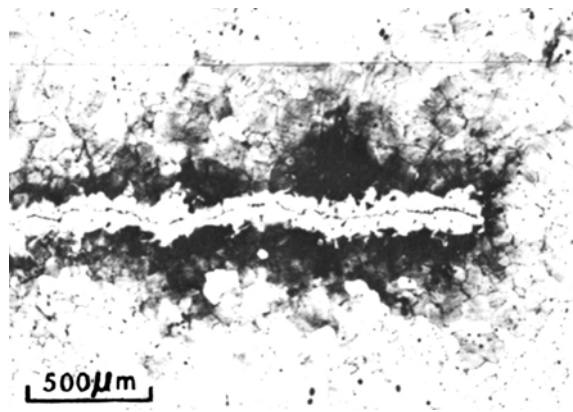


**Abbildung 4.7:** TEM-Aufnahme von Versetzungen in  $\text{Ni}_3\text{Al}$  erzeugt durch eine Indentereindruck mit 800  $\mu\text{N}$  Andruckkraft.

von einigen  $\mu\text{m}^2$  beschränkt. So ist mittels TEM zwar die Abbildung einzelner Versetzungen sowie von Versetzungsstrukturen möglich, bei der Untersuchung ausgedehnter deformierter Bereiche kann die Versetzungsdichte jedoch nur stichprobenhaft an einigen Orten der Probe bestimmt werden.

## Oberflächenätzung

Eine weitere Methode zum direkten Nachweis von Versetzungen ist die Ätztechnik, die sich sowohl zum Nachweis einzelner Versetzungen als auch von Unterschieden in der Versetzungskonzentration eignet. Dabei wird ausgenutzt, daß ein materialspezifisches Ätzmittel die Probenoberfläche abhängig von der Konzentration von Versetzungen unterschiedlich angreift. Gleitlinien auf der Oberfläche sowie die Durchstoßpunkte von Versetzungen bilden dabei Angriffspunkte für die Ätzung. Die versetzungsreichen Bereiche erscheinen dann in der mikroskopischen Aufnahme dunkler [279]. Abbildung 4.8 zeigt eine solche Aufnahme von der plastischen Zone um einen Ermüdungsriß in siliziumhaltigem Stahl Fe-3Si (aus [279]).



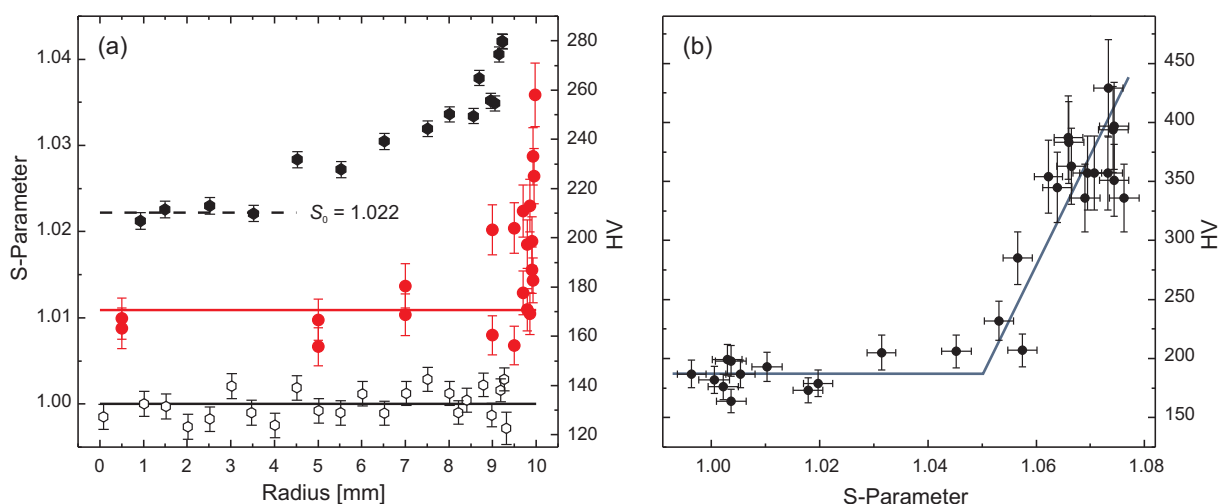
**Abbildung 4.8** Abbildung von Versetzungen an der Oberfläche an einem Ermüdungsriß in siliziumhaltigem Stahl (Fe-3Si) durch Ätzen (aus [279]).

## Härtemessung

Die lokale Erhöhung der Versetzungsdichte führt zu einem Anstieg in der Oberflächenhärte. Die Härte an sich ist keine wohldefinierte physikalische Größe. Sie hängt außer vom Verformungszustand von einer Vielzahl von Einflüssen ab. In ausscheidungsgehärteten Legierungen, d.h. in den meisten Stählen und technisch relevanten Al-Legierungen wird die Härte maßgeblich von Form, Größe und Anzahl der Ausscheidungen bestimmt. Dennoch kann die Härteänderung während eines Verformungs- oder Ermüdungsversuchs als Maß für Änderung der Versetzungsdichte interpretiert werden, wenn sich die anderen Materialparameter nur geringfügig ändern. Für viele Materialklassen läßt sich die Härte unter Berücksichtigung des Probenzustands in mechanische Größen, wie z.B. die Zugfestigkeit empirisch umwerten. Diese Umrechnungen sind tabelliert und innerhalb der EU normiert [280]. Die gängigste Methode zur Härtebestimmung ist dabei die Vickers-Härteprüfung, bei der eine Diamantpyramide mit definierter Andruckkraft in die Oberfläche eingedrückt wird, und die Vickers-Härte HV entweder aus der Diagonalen des Eindrucks nach Entlastung oder seiner Tiefe berechnet wird [281,282]. Bei Anwendung kleiner Kräfte von 0.1 N oder geringer ergeben sich Eindrücke mit einer Diagonalen in der Größenordnung einiger Mikrometer oder darunter, so daß die

Härte ortsaufgelöst gemessen werden kann (Mikro- bzw. Nanohärte-Prüfung). In Materialforschung und Industrie ist die HV-Prüfung weitverbreitet, was vor allem in ihrer einfachen Durchführung begründet ist. Auch in der Grundlagenforschung wird die HV zum Vermessen plastischer Bereiche eingesetzt. So wurden die Ausdehnungen monotoner und zyklischer plastischer Zonen vor Rissen in Stählen von mehreren Autoren mittels HV-Messung bestimmt. Im Zuge der technischen Entwicklung nimmt dabei die Größe der Vickers-Eindrücke von einigen 10  $\mu\text{m}$  bis in den Sub-Mikrometerbereich hin ab [283 - 286].

Im Vergleich zur Untersuchung mit Positronen hat die Härtemessung eine geringere Sensitivität für kleine Änderungen in der Versetzungsdichte. Abbildung 4.9 zeigt dies anhand von zwei Beispielen für Stähle ((a): austenitischer Stahl AISI 316L [131] ; (b) ferritischer Stahl C45E [270]). Bei der Messung über die Querschnittsfläche eines Drehteils aus AISI 316L ist ein Anstieg in der Versetzungsdichte noch bis zu 5 mm unterhalb der Oberfläche mit Positronen nachweisbar, während ein signifikanter Anstieg der Härte nur bis  $\sim 0.5$  mm unterhalb der Oberfläche meßbar ist. Die höhere Sensitivität der Positronen kommt noch deutlicher zum Vorschein, wenn man an einer inhomogen verformten Metallprobe erst ortsaufgelöst mit Positronen mißt und danach an denselben Orten die HV bestimmt. Abbildung 4.9 (b) zeigt einen solchen Vergleich für C45E. In Bereichen, in denen sich der S-Parameter bereits um 5 % ändert, ist kein Anstieg in der Härte meßbar. Erst für höhere Versetzungsdichten korreliert der Abstieg des S-Parameters mit einem Anstieg der Härte.



**Abbildung 4.9:** Vergleich der Empfindlichkeiten von PAS und Vickers-Härtemessung. (a) Messung über den Querschnitt eines Drehteils aus austenitischem Stahl AISI 316L [131]: (●) S-Parameter nach dem Drehen des Werkstücks im Lieferzustand. Der Wert im Inneren entspricht der Versetzungskonzentration des Lieferzustands. (●) Vickers-Härte nach dem Abdrehen. (○) Referenzwert des S-Parameters nach Temperaturbehandlung. (b) Eine Vielzahl von Messungen von HV und S an identischen Orten in einer inhomogen verformten Probe des Karbonstahls C45E [270]. Die blaue Linie ist als eye-guide zu verstehen.

Allen oben genannten (zerstörenden) Methoden ist gemeinsam, daß sie die Probe soweit verändern, daß eine Fortführung des Versuchs oder eine Messung mit einer anderen Methode am selben Zustand unmöglich ist. Darüber hinaus ist es ebenfalls nicht möglich, Änderungen in der Versetzungsdichte während des Versuchs (in-situ) zu messen.

## 4.2.2 Zerstörungsfreie Methoden

### Optische Mikroskopie

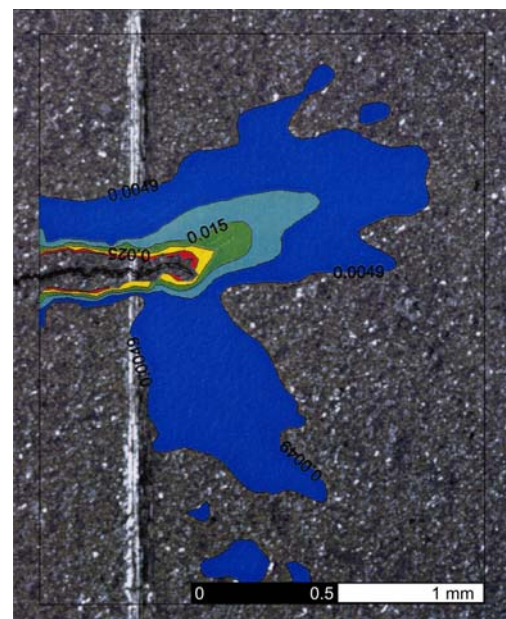
Die plastische Deformation eines Metalls hinterläßt sichtbare Spuren auf der Oberfläche. Durch die Abgleitung im Inneren der Kristallkörner bilden sich auf der Oberfläche Gleitlinien aus. Im optischen oder Elektronenmikroskop kann die Form einer plastischen Zone über die Gleitlinien abgeschätzt werden, wobei heutzutage Software zur Bildaufbereitung und Mustererkennung zum Einsatz kommt [287]. Diese Methode ist vergleichsweise unsensitiv, da sichtbare Gleitlinien erst bei stärkerer Verformung auftreten (siehe auch Abbildung 4.17).

Bei der Abgleitung kommt es zu Änderungen in der Höhe der Probenoberfläche. Diese topographischen Veränderungen lassen sich durch optische Interferenzmethoden sichtbar machen, wenn die Probe vor dem Versuch auf optische Qualität poliert wurde [288,289]. Dabei gilt allerdings eine ähnliche Einschränkung wie für Gleitlinienmethoden, da geringe Änderungen der Versetzungsdichte nicht unbedingt eine Änderung der Proben topographie hervorrufen.

### Displacement Mapping

Eine weitere Möglichkeit, plastische Zonen in Ermüdungsversuchen nachzuweisen, besteht im Displacement Mapping. Hierbei wird die Probenoberfläche vor dem Ermüdungsversuch von einer Bilderkennungssoftware anhand von charakteristischen Oberflächenmerkmalen kartiert, z.B. über die Korn Grenzen nach vorherigem Anätzen. Nach der Ermüdung wird eine zweite Kartierung vorgenommen und es werden die Verschiebungsvektoren der Oberflächenmerkmale berechnet. Abbildung 4.10 zeigt die farbkodierte Darstellung der Verschiebung um einen Ermüdungsriß in der Aluminiumlegierung AA 2024 [290]. In der Nähe des Risses versagt die Methode, da dort die Veränderungen der Oberfläche zu stark sind und die Bilderkennungssoftware die ursprünglichen Merkmale nach der Rißbildung nicht mehr wiederfindet. Im Bereich geringer Deformation, in dem die Verschiebung nur wenige Pixel beträgt, bekommt die Software ebenfalls Schwierigkeiten, so daß die äußere Grenze der plastischen Zone nur als Abschätzung interpretiert werden darf.

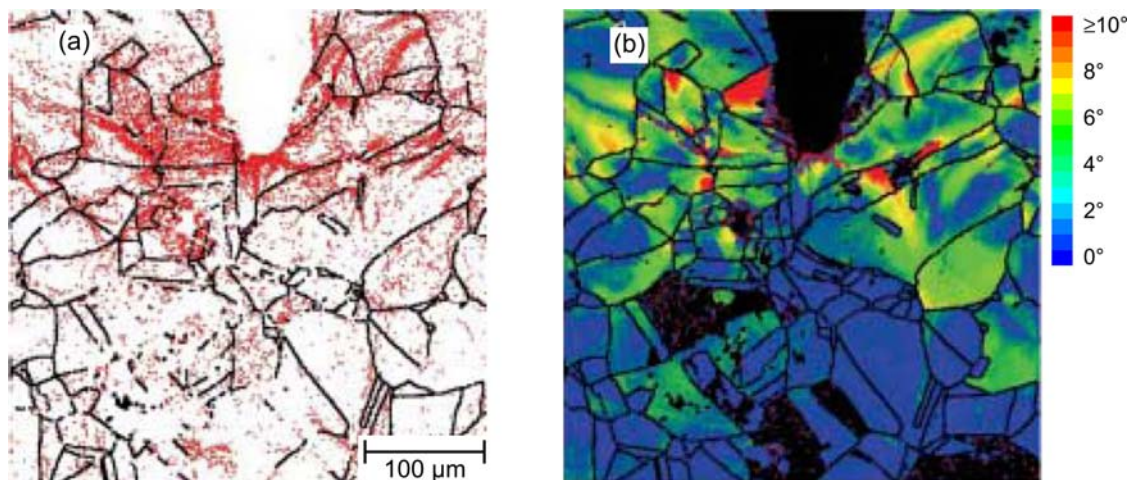
Bei der Entwicklung von Bilderkennungssoftware sind inzwischen gewaltige Fortschritte erzielt worden. So gelingt es mit aktuellen Algorithmen auch das Dehnungsfeld in den sehr stark verformten Bereichen in der Nähe einer Rißspitze mit Displacement Mapping abzubilden [291].



**Abbildung 4.10:** Abbildung der plastischen Zone vor einem Ermüdungsriß in der Aluminiumlegierung AA 2024 über eine Displacement Map. Die Verschiebung markanter Punkte auf der Oberfläche nach der Rißbildung ist farbkodiert dargestellt und über ein SEM-Bild gelegt.

## Messung der Kornorientierung

Die Oberflächenveränderungen gehen auf Veränderungen im Inneren oberflächennaher Kristallkörner zurück, die ebenfalls der Messung zugänglich sind. So bilden sich in stark deformierten Körnern Subkorn Grenzen und es kommt zu einer Änderung der Kornorientierung, die im Raster-Elektronenmikroskop über die Beugung rückgestreuter Elektronen bestimmt werden kann (Electron backscatter diffraction EBDS) [292]. Die EBDS basiert auf der Analyse der Winkelabhängigkeit der rückgestreuten Elektronen, die als Folge der Beugung an den kristallographischen Ebenen entsteht. Im winkelabhängigen Bild, das im SEM bei einem großen Verkippungswinkel der Probe gegenüber dem Strahl von ca.  $70^\circ$  aufgenommen wird [293], finden sich sogenannte Kikuchi-Bänder [294,295], deren Kreuzungspunkte mit den beugenden Ebenen identifiziert werden. Auch wenn dieser Beugungseffekt noch nicht im letzten Detail geklärt ist [296], ist es möglich aus den Kikuchi-Bändern auf alle Orientierungswinkel eines Kornes mit einer Genauigkeit von  $\sim 1^\circ$  zurückzuschließen. Heutzutage werden die Beugungsmuster mit einem Kamera-Chip digital aufgezeichnet und mit einem Bilderkennungsalgorithmus automatisch analysiert (Hough-Transformation) [297,298]. Wird die Oberfläche einer Probe mittels EBDS abgerastert, ergibt sich als Resultat eine Landkarte der Kornorientierungen, die Orientation Gradient Map (OGM) [299]. Durch einen Vergleich zwischen der OGM nach einem Ermüdungsversuch und einer Referenz-OGM erhält man eine Karte der Winkeländerungen. Abbildung 4.11 zeigt die Ergebnisse einer solchen Untersuchung an der Spitze eines Ermüdungsrisses im austenitischen Stahl AISI 304 (nach [300]).



**Abbildung 4.11:** EBDS/OGM vom Bereich um die Spitze eines Ermüdungsrisses in AISI 304. (a): Korngrenzen; Kleinwinkel-Korngrenzen ( $2^\circ < \theta < 10^\circ$ ) sind rot dargestellt, Großwinkel-Korngrenzen ( $\theta > 10^\circ$ ) schwarz. (b): Winkeländerungen im Vergleich zur Referenzmessung (aus [300]). Die Reißspitze befindet sich in der Mitte des oberen Bildmittels.

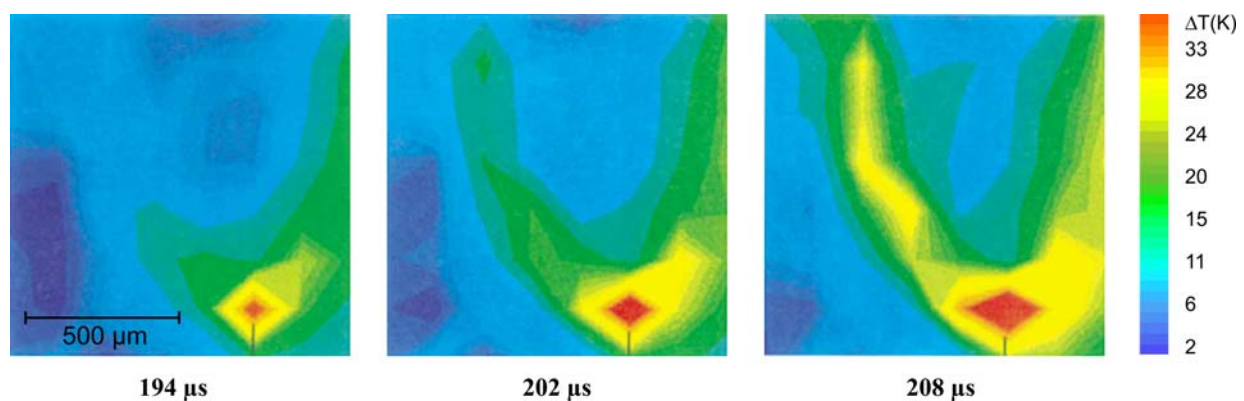
Eine alternative Möglichkeit zur Bestimmung der Kornorientierungen besteht in der Analyse von Mustern in der Intensität der Rückstreu- oder Sekundärelektronen in Abhängigkeit vom Eintrittswinkel des Elektronenstrahls im SEM [301]. Diese Muster werden durch Channeling der Elektronen in den kristallographischen Ebenen hervorgerufen (electron channelling contrast imaging ECCI) [302 - 304]. Bei der Variation beider Winkel entsteht ein Bild mit Bandstrukturen, die in ihrer Form den durch EBDS erhaltenen Kikuchi-Bändern ähneln. Dies liegt an der Tatsache, daß die EBDS eine Abbildung des reziproken Gitters darstellt, während die ECCI das Ortsraum-Gitter wiedergibt. Die ECCI-Technik eignet sich zum Sichtbarmachen

von Versetzungsstrukturen [305,306], die über feine Streifen in den ECCI-Bändern nachgewiesen werden [307].

Während mittels EBDS/OGM Plastizität über die Änderung der Kornorientierung nachweisbar ist, kann die Versetzungsdichte mit ECCI qualitativ über die Unschärfe der Channeling-Linien orts aufgelöst abgebildet werden [308]. Als Grenzkriterium einer plastischen Zone wird dann z.B. das Verschwinden einer ausgewählte Linie im ECC-Bild angegeben [309]. Einen Vergleich beider Techniken – EBDS/OGM und ECCI – bei der Messung plastischer Zonen am Beispiel von Indentereindrücken liefert ein Artikel von Welsch et al. [310].

## Infrarot-Kalorimetrie

Der größte Anteil der bei der plastischen Verformung geleisteten Arbeit wird in Wärme umgewandelt. Nur ca. 10% der Arbeit wird in Form von Versetzungen und anderen Gitterfehlern im Material gespeichert [311,312]. Ist die Umformgeschwindigkeit  $\dot{\epsilon}$  hoch genug, führt die Umformwärme in einer plastischen Zone zu einem lokalen Anstieg der Temperatur [313]. Die für eine meßbare Temperaturänderung  $\Delta T$  auf der Oberfläche nötige Umformgeschwindigkeit hängt dabei von den Materialeigenschaften, insbesondere von der Wärmeleitfähigkeit ab.



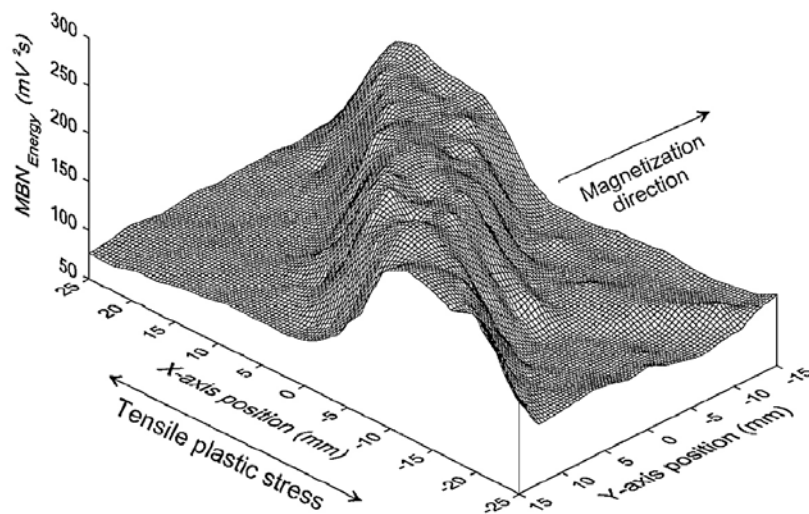
**Abbildung 4.12:** Ortsaufgelöste Schnappschüsse der Temperaturänderung  $\Delta T$  auf der Probenoberfläche während der Entstehung einer plastischen Zone vor einem schnell propagierenden Riß im martensitischen Stahl C300 (Drei-Punkt-Biegeversuch, aus [318]).

Liegt die Temperaturänderung bei mindestens einigen Kelvin, kann  $\Delta T$  über die abgestrahlte Energie im Infraroten (IR) mit Halbleiterdetektoren lokal gemessen werden (Infrarot-Kalorimetrie [314]). So wurde z.B. während Zugversuchen an Karbonstählen bei Umformgeschwindigkeiten  $\dot{\epsilon}$  im Bereich einiger  $1000 \text{ s}^{-1}$  Temperaturänderungen bis zu einigen 100 K gemessen [315]. Eine gekühlte Optik ermöglicht die Fokussierung des IR von einem Bereich der Größenordnung von  $100 \times 100 \mu\text{m}^2$  auf einen ebenfalls gekühlten Detektor. Dies ermöglicht die Messung der Temperatur und damit die Abbildung einer plastischen Zone vor einem Ermüdungsriß während ihrer Entstehung (in-situ) [316,317]. Durch den Einsatz von Hochgeschwindigkeits-Infrarotkameras hat sich die Technik dahin weiterentwickelt, Schnappschußaufnahmen der Temperaturverteilung in plastischen Zonen auch bei schnell propagierenden Rissen zu machen. Abbildung 4.12 zeigt eine Serie solcher Aufnahmen, die im Abstand von 8  $\mu\text{s}$  von einer plastischen Zone im martensitischen Stahl C300 gemacht wurden. Der Riß wurde in Drei-Punkt-Biege-Geometrie mit einer äußeren Umformgeschwindigkeit von 3 m/s durch ein herabfallendes Gewicht von 250 kg erzeugt [318].

Die IR-Kalorimetrie eignet sich allerdings nur für die Abbildung plastischer Zonen in-situ, falls die Umformgeschwindigkeit hoch genug ist, um eine signifikante Temperaturerhöhung auf der Oberfläche zu erzeugen. Für eine nachträgliche Messung der Schädigung durch Materialermüdung (post-mortem), z.B. zur Begutachtung von Ermüdungsbrüchen, ist sie ungeeignet.

## Barkhausen-Rauschen

Eine weitere – allerdings auf magnetische Materialien eingeschränkte – Möglichkeit zum zerstörungsfreien Nachweis der Verformung besteht über den Barkhausen-Effekt [319]. Materialien mit ferromagnetischer oder ferrimagnetischer Struktur enthalten komplett magnetisierte Domänen, die Weiss'schen Bezirke. Beim Anlegen eines äußeren magnetischen Feldes kommt es zu einer ruckartigen irreversiblen Bewegung der Bloch-Wände, die diese Domänen trennen. Diese induziert nach dem Induktionsgesetz eine Spannung  $U \sim \partial B / \partial t$  [320]. Da die Bewegung der Bloch-Wände sehr schnell erfolgt [321] (z.B. 250 m/s in Ni-Fe-Legierungen [322]), kann ein einziger Sprung einer Domänenwand einen meßbaren Spannungspuls erzeugen. Die große Zahl von Domänenwandsprüngen während der Magnetisierung ergibt ein stochastisches Rauschen, das Barkhausen-Rauschen, das induktiv von der Probe abgegriffen werden kann. Die Magnetostriktion bewirkt zudem eine Volumenänderung, die in einer mechanischen Vibration resultiert (akustisches Barkhausen-Rauschen) [320].



**Abbildung 4.13:** Abbildung eines einzelnen Lüders-Bands 45° zur Zugrichtung in einer Zugprobe aus niedriglegiertem Stahl mittels Barkhausen-Rauschens. Angegeben ist die Energie des Rauschens als root mean square (aus [330]).

Durch Versetzungen und andere Störungen im Gefüge wird die Bewegung der Bloch-Wände behindert [323,324], was zu einem Anstieg der Gesamtenergie des Rauschsignals führt. Praktisch wird in der Probe ein magnetisches Wechselfeld induziert und aus dem Barkhausen-Rauschen ein integraler Parameter bestimmt (weitverbreitet: root mean square rms). Die Tiefe, aus der das Meßsignal stammt, hängt über die Skintiefe von der Frequenz des Wechselfeldes ab und liegt im Bereich von 20 – 600  $\mu\text{m}$  [325]. Die Sensitivität des Barkhausens-Rauschens für Versetzungen liegt etwas unter der der Härteprüfung [326], hat aber ihr gegenüber den Vorteil, zerstörungsfrei zu sein. Großräumige Effekte von Plastizität und Ermüdung sowie deren zeitliche Entwicklung können über das Barkhausen-Rauschen relativ einfach ge-



messen werden (siehe z.B. [327 - 329]). Die orts aufgelöste Messung ist hingegen sehr aufwendig und es werden nur Ortsauflösungen in der Größenordnung von Millimetern erreicht. Abbildung 4.13 zeigt eine der wenigen veröffentlichten orts aufgelösten Messungen des Barkhausen-Rauschens. Dargestellt ist die lokale Erhöhung der Rauschenergie über ein einzelnes Lüders-Band in niedriglegiertem Stahl. Durch die Verwendung eines SQUID-Sensors wurde eine Ortsauflösung um 1 mm erreicht [330].

## Röntgenbeugung

Die Röntgenbeugung ist als zerstörungsfreie Methode bei der Untersuchung von Gitterfehlern und auch größeren Inhomogenitäten, wie z.B. Ausscheidungen, weit verbreitet. Treten monochromatische Röntgenstrahlen in ein kristallines Medium, werden sie an den Netzebenen des Gitters gebeugt. Ist dabei die Bragg-Bedingung  $2d_{hkl} \sin(\theta) = n\lambda$  zwischen Beugungswinkel  $2\theta$ , Wellenlänge  $\lambda$  und Abstand  $d_{hkl}$  der Netzebenenschar erfüllt, kommt es zu konstruktiver Interferenz ( $n$  ist dabei eine natürliche Zahl) [331]. Dieser von Bragg 1913 entdeckte Zusammenhang ist die Grundlage aller Beugungsmethoden zur Bestimmung von Gitterkonstanten, Kristallstrukturen und Kristallorientierungen mit Röntgen- und Gammastrahlen, bzw. Elektronen und Neutronen.

Versetzungen und andere Fehler im durchstrahlten Volumen stören die Beugung, sofern sie eine Verzerrung des Netzebenenabstands bewirken, die eine Komponente senkrecht zur Ebene der beugenden Schar besitzt. Dies kann, je nach Lage und Typ der Versetzung zum Auftreten zusätzlicher oder dem Verschwinden vorhandener Reflexe führen [332]. Ausserdem ändert sich das Profil des Reflexes, d.h. die Intensitätsverteilung des gebeugten Röntgenlichts innerhalb eines Reflexes, bezüglich des Beugungswinkels  $2\theta$  und des Azimutwinkels  $\phi$  [333]. Bei den meisten Untersuchungen wird das Reflexprofil nur in Abhängigkeit von einem Winkel betrachtet. Es wird dann als Rocking-Kurve bezeichnet.

Versetzungen innerhalb eines Kornes führen im Wesentlichen über drei Effekte zu einer Verbreiterung der Rocking-Kurve, die im Allgemeinen über die Halbwertsbreite (FWHM) parametrisiert wird: Durch eine von Versetzungen hervorgerufene Drehung des Gitters, über das elastische Spannungsfeld um die Versetzung, in dessen Einflußbereich der Bragg-Winkel keinen festen Wert sondern eine Verteilung aufweist, sowie über die Bildung von gekippten Bereichen (Sub-Körnern) innerhalb eines Kornes bei stärkerer Umformung [334].

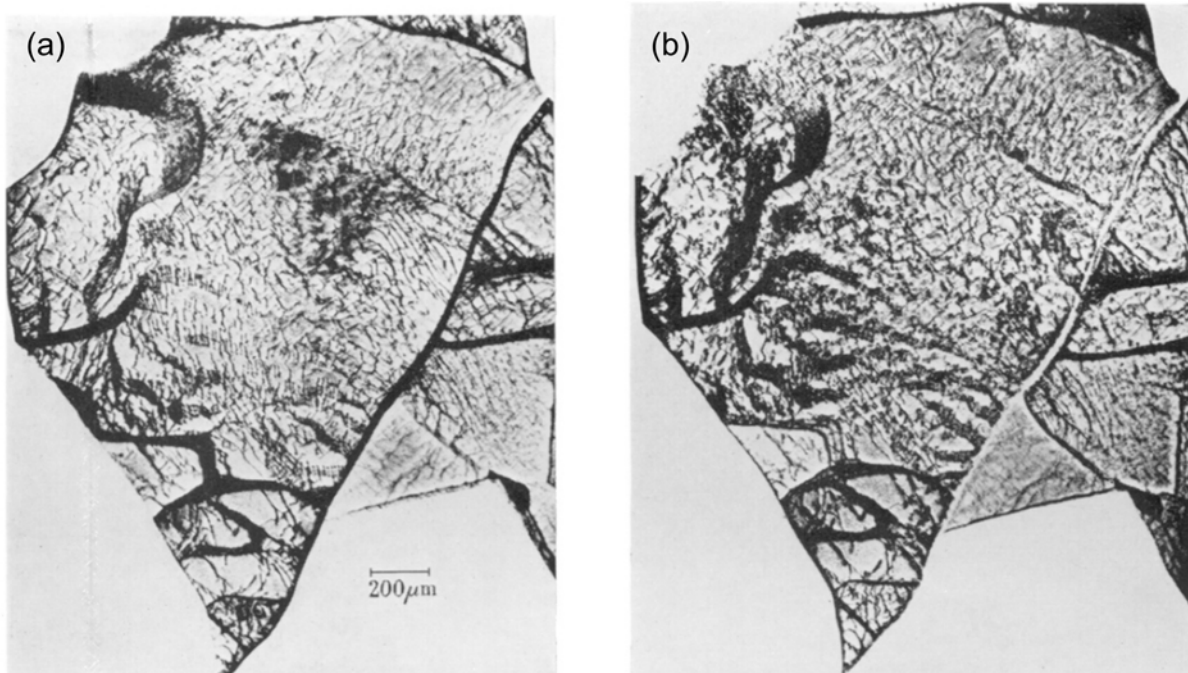
Ein Überschuß von Versetzungen eines Vorzeichens führt dabei zu einer weichen Verbreiterung des Reflexes, während es durch die Anwesenheit von Subkörnern zu einer Aufspaltung in mehrere Teilreflexe kommt [335]. Ist die Reflektion an einer Ebenenschar in mindestens zwei Ordnungen im Beugungsbild vorhanden, kann aus der Verbreiterung der Beugungsreflexe relativ zum ungestörten Korn die Versetzungsdichte berechnet werden [336].

Die Messung von Rocking-Kurven einzelner Reflexe ist hauptsächlich an Einkristallen oder einzelnen Körnern sinnvoll, wobei die minimale Größe vermeßbarer Körner vom Durchmesser des eingehenden Röntgenstrahls abhängt. Der Hauptanwendungsbereich liegt daher bei der Untersuchung von Halbleiter-Einkristallen [337]. Eine Erweiterung auf polykristalline Materialien ist jedoch möglich, sofern nur so wenige Körner im bestrahlten Volumen liegen, daß sich deren Reflexe nicht überlagern. In diesem Falle kommt es mit zunehmender Versetzungsdichte zu einer Verschmierung der Reflexe in azimuthaler Richtung, wobei sich bei sehr hohen Versetzungsdichten die anfänglich separaten Reflexe zu diffusen Ringsegmenten aufweiten [338 - 340].

Zur Untersuchung feinkörniger polykristalliner Metalle und Legierungen eignet sich das Debye-Scherrer-Verfahren, das über viele Körner mit unterschiedlicher Orientierung mittelt. Im Gegensatz zum Azimutwinkel  $\varphi$  ist der Beugungswinkel  $2\theta$  unabhängig von der Orientierung, so daß sich die Reflexe einer Ebenenschar der Kristallite zu Debye-Ringen überlagern. Ebenso wie bei der Pulver-Diffraktometrie lassen sich diese Ringe nur dann gut auswerten, wenn sich genügend Kristallite ( $\sim 10^4$ ) im durchstrahlten Volumen befinden. Da sich diese Bedingung nur in Transmission realisieren läßt, sind für Debye-Scherrer Versuche sehr intensive und hochenergetische monochromatische Röntgenquellen unerlässlich, wie sie nur von Undulatoren oder Wiggler an Großforschungsanlagen zur Verfügung gestellt werden.

Die Form der Debye-Ringe hängt sowohl vom elastischen als auch vom plastischen Zustand der untersuchten Probe ab: Die Dehnung bzw. Stauchung führt über die Querkontraktion bzw. Querelongation zu einer elliptischen Verformung der Debye-Ringe [341]. Versetzungen erhöhen die Linienbreite der einzelnen Reflexe und führen dadurch im statistischen Mittel über alle Körner zu einer Verbreiterung der Ringe in radialer Richtung [263,342] (siehe auch Kapitel 4.4). Diese wird in vielen Fällen über die Halbwertsbreite angegeben, obwohl physikalisch motivierte Modelle existieren, welche die von den Versetzungen verursachte Linienbreite von der apparativen Breite separieren [343 - 345].

Die Ortsauflösung der hier genannten Methoden ist durch die Breite des einfallenden Röntgenstrahls, sowie bei Transmissionsgeometrien durch die Aufweitung des einfallenden und reflektierten Lichts innerhalb der Probe bestimmt. Mit Röntgenröhren, bei denen der Strahl durch einen Kollimator begrenzt ist, werden typischerweise Auflösungen im Bereich einiger 100  $\mu\text{m}$  erreicht. Eine weitere Kollimation ist meist nicht möglich, da dadurch die Intensität zu sehr abnimmt. Mit Monochromatoren ausgekoppeltes Synchrotronlicht hat eine genügende Intensität (siehe z.B. [346]), um den Strahl auf einige 10  $\mu\text{m}$  zu kollimieren, steht aber nur an Großforschungseinrichtungen zur Verfügung.



**Abbildung 4.14:** Röntgen-Topographie eines verformten Kornes in  $\text{Fe}_{3.5}\text{Si}$ , aufgenommen mit  $\text{AgK}\alpha$ -Strahlung. (a) Intensität der  $[002]$  Reflexe. (b) Intensität der  $[00\bar{2}]$  Reflexe (aus [353]).

Eine andere Möglichkeit zum Nachweis von Versetzungen mit Röntgenstrahlung bietet die Röntgen-Topographie, mit der Versetzungen in einem einkristallinen Bereich direkt über eine Änderung in der Intensität einzelner Reflexe abgebildet werden können. Eine röntgentopographische Abbildung wird in Transmission aufgenommen, wobei im Gegensatz zur TEM Probendicken bis zu einigen Millimetern möglich sind.

Dabei werden ein oder zwei Schlitzblenden auf einen Reflex justiert und damit alle anderen Reflexe sowie der transmittierte Primärstrahl ausgeblendet. Durch Bewegen der Probe relativ zur feststehenden Anordnung von Strahl und Blenden, wird die Probe in einer Tiefenschicht ortsaufgelöst vermessen [347,348]. Über eine zusätzliche Variation der Position der Blenden zum Primärstrahl ist ein tiefenabhängiges Abrastern von Versetzungen und anderen Fehlern möglich.

Unter Verwendung eines eingehenden Röntgenstrahls mit einem Durchmesser im Mikrometerbereich, sowie hochauflösender CCD-Kameras zum Nachweis der Beugungsreflexe, wird eine Ortsauflösung im Bereich einiger Mikrometer in allen drei Dimensionen erreicht [349]. Mit dieser Methode gelang es unter anderem, das Spannungsfeld einzelner Versetzungen in Halbleiter-Bauelementen hochgenau abzubilden [350]. Auch wenn in einem Großteil der Arbeiten in Transmission gemessen wird, ist die Röntgen-Topographie grundsätzlich auch in Reflektion möglich [351], was z.B. bei der Untersuchung von großen strukturierten Halbleiter-Wafern Vorteile bietet [352].

Als eindrucksvolles Beispiel zeigt Abbildung 4.14 Versetzungen in einem Korn in einer verformten Fe<sub>3</sub>.5Si Legierung, wobei die Änderung der Intensität der [002] (a) und der [00 $\bar{2}$ ](b) Reflexe aufgenommen wurde [353]. Mit der verwendeten AgK $\alpha$ -Strahlung ließen sich noch Versetzungen mit einem minimalen Abstand von 5  $\mu\text{m}$  voneinander trennen. Der Vergleich der Abbildungen (a) und (b) zeigt deutlich, daß die Lage der Versetzungen relativ zu den beugenden Ebenenscharen zu einem unterschiedlichen Kontrast führt.

### 4.2.3 Ein kurzer Vergleich der Methoden

Der oben gegebene Überblick der gängigsten Methoden zeigt deutliche Unterschiede in Bezug auf die Empfindlichkeit für Plastizität und Ermüdung und in der praktischen Anwendbarkeit. So ist es nicht sehr einfach, diese Methoden auf einer linearen Skala zu bewerten, da einige Methoden Besonderheiten aufweisen, die sie signifikant von den anderen unterscheiden. Tabelle VII ist als Versuch zu verstehen, die hier diskutierten Methoden nach unterschiedlichen, in der praktischen Anwendung relevanten, Parametern aufgeschlüsselt zu bewerten.

So ist z.B. die TEM als "traditionelle" Methode zum Nachweis von Versetzungen auf sehr kleine Bereiche (einige  $\mu\text{m}^2$ ) eingeschränkt, bietet jedoch die Möglichkeit zum Nachweis einzelner Versetzungen. Zudem ist sie mit erheblichem Präparationsaufwand verbunden und alles andere als zerstörungsfrei. Im Gegensatz zur PAS können Versetzungsdichten durch Auszählen direkt quantitativ bestimmt werden, wobei diese jedoch in sehr stark deformierten Metallen unterbewertet werden.

Die Röntgen-Topographie, die ebenfalls eine quantitative Bestimmung von Versetzungen im Submikrometerbereich bei wesentlich geringerem Präparationsaufwand ermöglicht, ist auf größere Körner und Einkristalle eingeschränkt. Sie ist jedoch im Gegensatz zur TEM zerstörungsfrei und ermöglicht damit die Beobachtung der Entwicklung von Versetzungen und Versetzungsstrukturen während der Verformung oder in verschiedenen Stadien der Ermüdung an ein und derselben Probe.

**Tabelle VII:** Überblick über einige Methoden zur Abbildung plastischer Zonen. In-situ steht für die Messung während der Verformung, Post-mortem für die Messung danach. (O): Oberfläche oder oberflächennahe Schicht; (B) aus dem Materialvolumen; (DS) eine herauspräparierte dünne Schicht einiger 10 nm Dicke. <sup>(1)</sup> Nur bei genauer Kenntnis der Probenoberfläche vor dem Versuch. <sup>(2)</sup> Abbildung des Umformvorgangs. <sup>(3)</sup> Über die Skin-Tiefe abhängig von der Meßfrequenz (20 –600 µm). <sup>(4)</sup> In Spezialfällen, z.B. Lüders-Bänder. <sup>(5)</sup> Abhängig vom Durchmesser des eingehenden Röntgenstrahls. <sup>(6)</sup> Nur bei Einkristallen oder großen Körnern. <sup>(7)</sup> Es müssen genügend Körner im durchstrahlten Volumen sein (Pulverbedingung).

Methode	zerstörungsfrei in-situ	post-mortem	Ursprung des Meßsignals	Bildgebung v. plastischen Zonen	Quantitative Versetzungsdichte	Zeit- aufwand	Orts- auflösung	messbare Gesamt- fläche	Empfindlichkeit	
TEM	-	-	+	DS	-	+	sehr aufwendig	<1 nm	sehr klein: µm <sup>2</sup>	hoch: Einzelversetzungen, höhere Versetzungsdichten werden unterbewertet
Ätztechnik	-	-	+	O	+	+	schnell	einige 10 µm	mm <sup>2</sup> - cm <sup>2</sup>	
HV	-	-	+	O	+	-	mittel	einige µm	mm <sup>2</sup> - cm <sup>2</sup>	
OM	+	+	+	O	-	-	schnell	einige µm	mm <sup>2</sup> - cm <sup>2</sup>	gering
Displacement Mapping	+	-	(1)	O	+	-	schnell	einige µm	mm <sup>2</sup> - cm <sup>2</sup>	schlecht für kleine und große Verformung, gut im mittleren Bereich
EBDS/ OGM	+	-	+	O	+	-	aufwendig	50 nm	µm <sup>2</sup> - mm <sup>2</sup>	mittel
ECCI	+	-	+	O	+	-	schnell	~ 1 µm	µm <sup>2</sup> - mm <sup>2</sup>	mittel
IR-Kalorimetrie	+	+	-	O/B	(2)	-	sehr schnell	~100 µm	einige mm <sup>2</sup>	gut bei hohen Umformgeschwindigkeiten
Barkhausen	+	+	+	O (3)	(4)	-	mittel	≥ 1 mm	mm <sup>2</sup> - cm <sup>2</sup>	gering
X-Ray:										
Rocking- Kurven	+	+	+	B	-	+	mittel	µm - mm (5)	mm <sup>2</sup> - cm <sup>2</sup>	hoch, große Dynamik (6)
Debye- Scherrer	+	+	+	B	(5)	-	langsam	50 µm - mm	mm <sup>2</sup> - cm <sup>2</sup>	gut, nur in speziellen Geometrien möglich (7)
Röntgen- Topo- graphie	+	-	+	O/B	+	+	aufwendig	~ 1 µm	mm <sup>2</sup> - cm <sup>2</sup>	hohe Empfindlichkeit, hohe Dynamik (6)
PAS (SPM)	+	+	+	O	+	-	langsam	≥ einige µm	mm <sup>2</sup> - cm <sup>2</sup>	sehr empfindlich, höchste Dynamik

Die PAS liefert hingegen nur relative Änderungen der Versetzungsdichte – diese jedoch über einen hohen Dynamikbereich: vom ausgeheilten Zustand bis zu höchsten Dichten, wie sie direkt vor Reißspitzen in Ermüdungsrissen gemessen werden. Der Präparationsaufwand ist minimal und die PAS eignet sich sowohl für Messungen während der Verformung (in-situ) als auch zur Beurteilung bereits eingetretener Schäden (post-mortem). Ebenso ist die PAS in ei-

nem weiten Bereich von Submikrometerkörnern bis zu ausgedehnten Einkristallen unterschiedlichster Materialien einsetzbar und somit eine universelle Methode zur Messung von Plastizität und Materialermüdung.

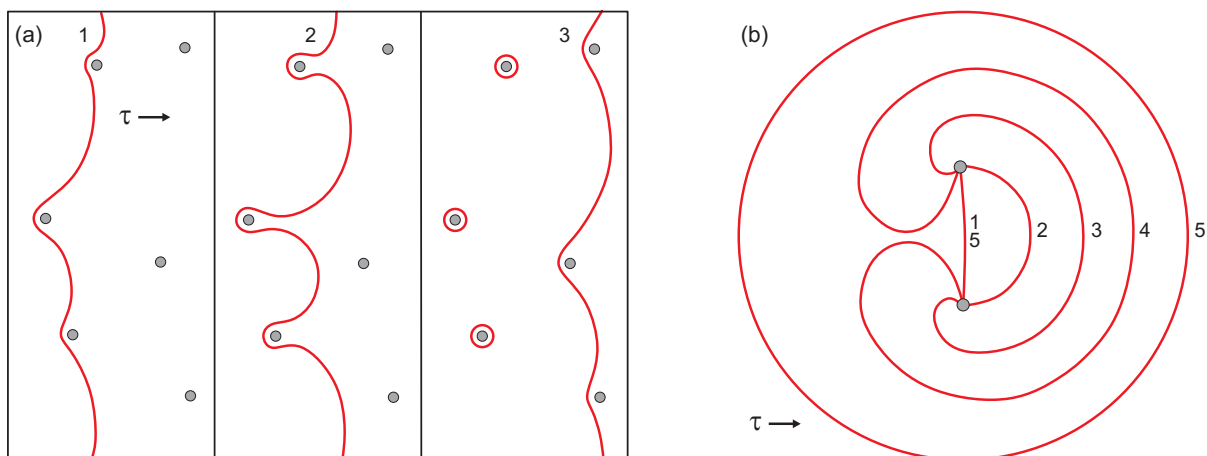
## 4.3 Abbildung von Deformationszonen mit Positronen

### 4.3.1 Die plastische Zone vor einer Rißspitze

Wird ein Bauteil aus einer Metallegierung wechselnder Belastung ausgesetzt, kommt es zu bleibenden Veränderungen in der Mikrostruktur, auch wenn die Lastamplitude signifikant unterhalb der Fließspannung bleibt. Ist die Ursache der Belastung auf äußere mechanische Einwirkungen beschränkt, spricht man von mechanischer Materialermüdung. Ausgehend von einem fehlerfreien Werkstück, kann die Ermüdung in fünf Phasen eingeteilt werden [354]:

- (1): Bleibende Veränderungen in der Mikrostruktur, die mit zyklischer Verfestigung oder Entfestigung einhergehen.
- (2): Die Entstehung mikroskopischer Materialfehler (z.B. Intrusionen, Rißkeime, Mikrorisse), besonders an der Bauteiloberfläche.
- (3): Die Entstehung eines makroskopischen Risses.
- (4): Unterkritisches Rißwachstum: noch kein Versagen des Bauteils.
- (5): Materialversagen durch Ermüdungsbruch.

Untersuchungen u.a. mit Transmissions-Elektronenmikroskopie (TEM) haben gezeigt, daß die Verfestigung in Phase 1 auf einem Anstieg der Konzentration von Versetzungen, und damit auch anderer Gitterfehler (Leerstellen, Zwischengitteratome, Leerstellenagglomerate), basiert [355 - 357]. Die beiden bedeutendsten Mechanismen zur Versetzungsmultiplikation sind dabei der Frank-Read-Mechanismus [358] und der Orowan-Prozeß [359,360] (siehe auch Abbildung 4.15).



**Abbildung 4.15:** (a) Orowan-Prozeß: Eine Versetzung, die auf unbewegliche Hindernisse stößt, baucht sich zwischen ihnen aus (1), bis sich Teile von der Versetzung hinter dem Hindernis soweit annähern, daß sie sich vereinigen (2). Die Versetzung wandert weiter und hinterläßt einen Versetzungsring um das Hindernis (3). (b) Frank-Read-Quelle: Ein Versetzungsstück, das zwischen zwei Hindernissen festgehalten wird (1) baucht sich aus (2,3), bis sich die Teile berühren (4) und sich die Versetzung in einen nach außen weglaufenden Ring und ein Verbindungsstück teilt (5). Der Prozeß wiederholt sich so lange, bis die Schubspannung  $\tau$  abgebaut ist.

Daraus wird klar, daß sich bereits im Frühstadium während der ersten wenigen Verformungszyklen der mechanischen Ermüdung signifikante Änderungen in den Zerstrahlungsparametern des Positrons ergeben (siehe auch Kapitel 5). In Phase 2 baut sich mindestens ein Bereich lokal stark erhöhter Versetzungsdichte auf, in dem ein Rißkeim entsteht, aus dem sich in Phase 3 ein makroskopischer Riß ausbildet. Während des Rißwachstums in Phase 4 bewegt sich dieser Bereich, die zyklische plastische Zone, vor der Rißspitze durch das Material [354].

Größe und Form der plastischen Zone können für einige einfache Szenarien mittels linear elastischer Bruchmechanik berechnet werden. Eines dieser Szenarien ist ein Riß der Länge  $2a$  in einer als unendlich angenommenen Platte mit verschwindender Dicke [361] an der eine äußere Zugspannung  $\sigma$  anliegt (monotone plastische Zone). Die lokalen Spannungskomponenten  $\sigma_{ij}$  um die Rißspitze berechnen sich dann zu

$$\sigma_{ij}(r, \theta) = \frac{K}{\sqrt{2\pi r}} f_{ij}(\theta), \quad ij \in \{1,2\}, \quad K = \sigma\sqrt{\pi a}, \quad (4.5)$$

wobei  $r$  und  $\theta$  Polarkoordinaten bezüglich der Rißspitze sind. Der Spannungsintensitätsfaktor  $K$  ist ein Maß für die Spannung in der Nähe der Rißspitze. In dieser idealisierten Geometrie hängt  $K$  nur von der äußeren Spannung  $\sigma$  und der Rißlänge  $a$  ab. Die Ausdehnung  $r_p^*$  der plastischen Zone liegt dann dort, wo die lokale Spannung die Fließspannung  $\sigma_{yield}$  überschreitet (gestrichelte Linien in Abbildung 4.16 (b)):

$$r_p^* = \alpha \left( \frac{K}{\sigma_{yield}} \right)^2 \quad (4.6)$$

$\alpha$  ist hierbei ein empirischer Faktor. Diese einfache Beschreibung der plastischen Zone wurde bereits 1921 von Griffith [362] eingeführt und ist heute als Griffith-Kriterium bekannt. Berücksichtigt man auch den plastischen Anteil an der lokalen Spannung, resultiert eine etwas größere Ausdehnung  $r_p$  der plastischen Zone (durchgezogene Linien in Abbildung 4.16 (b)). Der winkelabhängig Term  $f_{ij}(\theta)$

$$f_{ij}(\theta) = \cos \frac{\theta}{2} \left[ 1 \mp \sin \frac{\theta}{2} \sin \frac{3\theta}{2} \right] \quad (4.7)$$

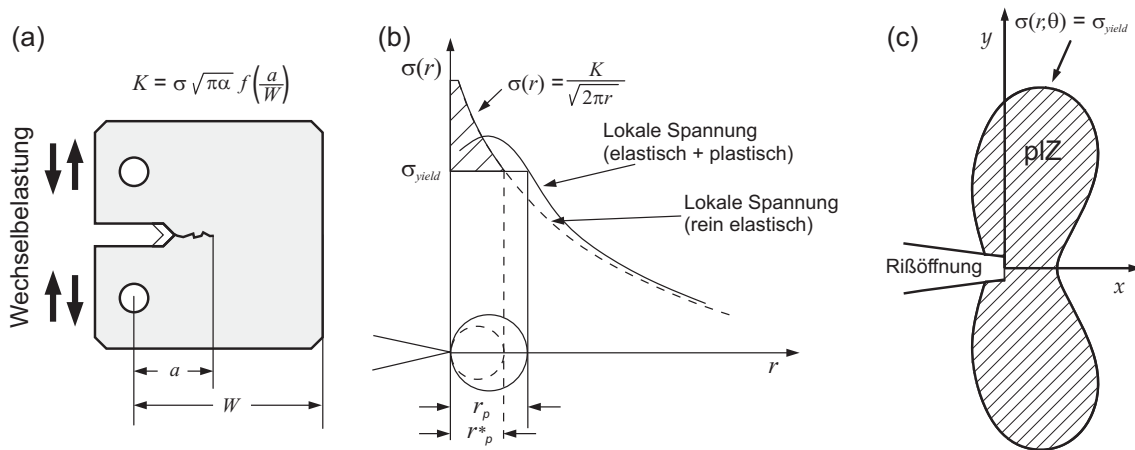
kann ebenfalls berechnet werden, und resultiert in einer schmetterlingsartigen Form der plastischen Zone, wie in Abbildung 4.16 (c) skizziert. Es ist zu bemerken, daß die wirkliche Form der plastischen Zone in einer realen Geometrie stark von diesen idealisierten Vorstellungen abweichen kann.

Für reale Geometrien hängt der Spannungsintensitätsfaktor  $K$  zusätzlich von den Abmaßen der Probe und ihrer Dicke ab und ist nur für einige Fälle mittels numerischer Approximationen abschätzbar:

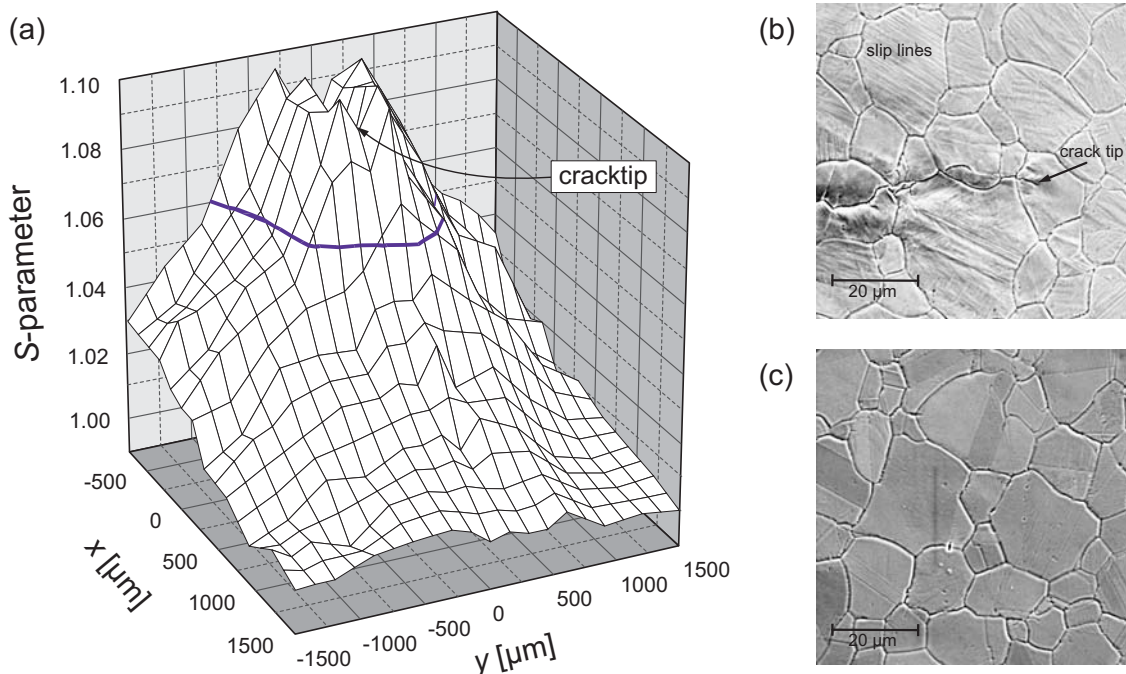
$$K = \sigma\sqrt{\pi a} \cdot f\left(\frac{a}{W}\right) \quad (4.8)$$

Die Funktion  $f(a/W)$  beschreibt die Geometrie und wird im Allgemeinen durch ein Polynom höherer Ordnung ausgedrückt. Eine der berechenbaren Geometrien ist die Compact-Tension-

Geometrie (CT), eine Standard-Geometrie zur Untersuchung des seitlichen Einrisses in eine Platte (siehe Abbildung 4.16 (a)) [363]. Die oben genannten Überlegungen gelten für die Rißbildung im Zugversuch. Bei einem Ermüdungsversuch, d.h. unter alternierender Last, tritt der Spannungsintensitätsbereich  $\Delta K = K_{\max} - K_{\min}$  anstelle des Spannungsintensitätsfaktors  $K$ . Die Größe der zyklischen plastischen Zone entspricht in etwa einem Viertel der monotonen plastischen Zone bei ansonsten identischer Geometrie und gleichem Material [283].



**Abbildung 4.16:** Die plastische Zone vor der Spitze eines Ermüdungsrisse. (a) Compact-Tension (CT) Geometrie: Standardgeometrie zur Erzeugung von Ermüdungsrisse in Platten. (b): Lokale Spannungsverhältnisse vor der Rißspitze: Überschreitet der Radialteil der Spannung lokal die Fließspannung  $\sigma_{yield}$ , bildet sich eine plastische Zone aus. (c) Typische Form einer plastischen Zone in der  $xy$ -Ebene.

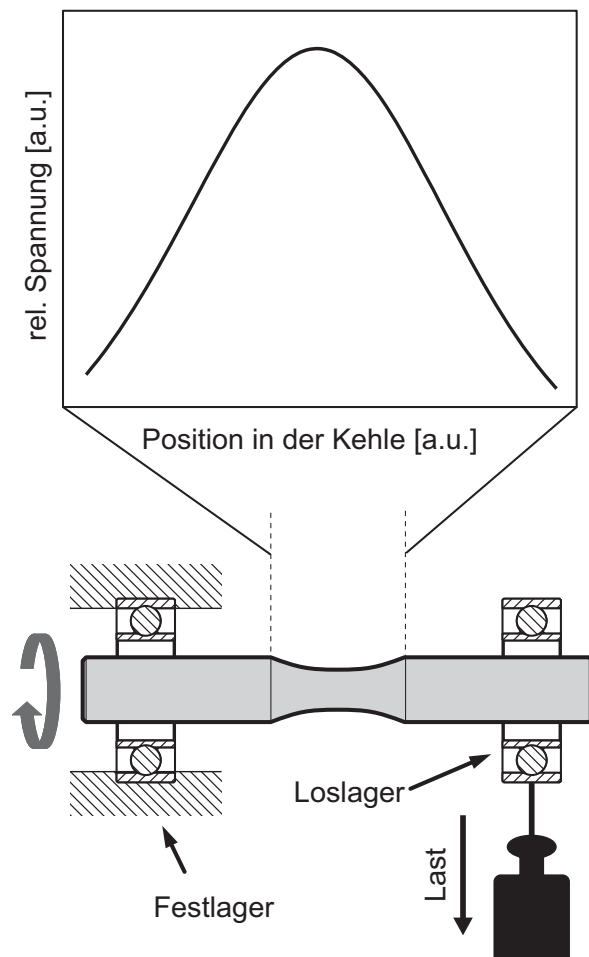


**Abbildung 4.17:** (a) Änderung des S-Parameters gegenüber dem ausgeheilten Zustand in der plastischen Zone vor einem Ermüdungsriß im austenitischen Stahl AISI 321. Die Rißspitze befindet sich im Ursprung des Koordinatensystems.  $x$  ist die Richtung des Rißfortschritts. (b,c) SEM-Aufnahmen der Probenoberfläche. (b) Veränderungen an der Probenoberfläche (Gleitlinien) direkt an der Rißspitze. (c) In 1 mm Entfernung sind keine Veränderungen sichtbar. Der S-Parameter zeigt jedoch ein deutliches Signal erhöhter Versetzungsdichte ( $S = 1.04$ ). Die blaue Linie in (a) grenzt den Bereich um die Rißspitze ein, in dem Gleitlinien im REM sichtbar sind.

Im Folgenden werden einige Anwendungsbeispiele zur Abbildung der plastischen Zone mit der BPM gezeigt. Als die erste "bildgebende", d.h. zweidimensionale Messung mit Positronen wurde 1998 die plastische Zone vor einem Ermüdungsriß im austenitischen Stahl ASI 321 vermessen [364]. Der Riß wurde in einer miniaturisierten CT-Geometrie mit Abmaßen von  $17 \times 18 \text{ mm}^2$  und einer Dicke von 1.8 mm erzeugt.

Es wurde eine sinusförmige symmetrische Steueramplitude von  $\pm 50 \mu\text{m}$  ( $R = 1: \varepsilon_{\text{Zug}}^{\text{max}} = \varepsilon_{\text{Druck}}^{\text{max}}$ ) unter Dehnungskontrolle bei einer Frequenz von 1 Hz verwendet. Da die herkömmliche hydraulische Wechselverformungsmaschinen derartig kleine Hübe im Allgemeinen nicht fahren können, kam eine piezogetriebene Wechselverformungsmaschine [99] zum Einsatz. Der Spannungsintensitätsbereich kann aus der Geometrie und dem Hub auf  $\Delta K = 50 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$  abgeschätzt werden. Vor der Ermüdung wurde die Probe thermisch ausgeheilt (3h bei  $1000^\circ\text{C}$  im Hochvakuum) und nach der Rißerzeugung keiner weiteren Behandlung unterzogen, um eine Oberflächenschädigung durch Schleifen zu vermeiden. Abbildung 4.17 zeigt die Verteilung des S-Parameters in einer Höhenprofil-Darstellung vor der Rißspitze. Der Strahldurchmesser wurde auf  $20 \mu\text{m}$  bei einem Bildrastrer von  $150 \mu\text{m} \times 150 \mu\text{m}$  eingestellt. Jedem Bildpunkt entspricht eine Anzahl von  $\sim 3 \times 10^5$  Ereignissen im Annihilationspeak. Direkt an der Rißspitze und an den Rändern des Risses ist ein Anstieg des S-Parameters um knapp 10 % zu beobachten, der mit zunehmender Entfernung zur Rißspitze kontinuierlich zum Wert des ausgeheilten Stahls hin abnimmt. Unter dem Elektronenmikroskop erscheint die plastische Zone deutlich kleiner. Durch die Ermüdung bedingte Veränderungen (z.B. Gleitlinien) sind nur in der Nähe der Rißspitze sichtbar. Die Grenze, innerhalb derer diese Veränderungen noch im SEM-Bild zu erkennen sind, liegt bei einem S-Parameter oberhalb von  $\sim 1.06$  (siehe blaue Linie in Abbildung 4.17 (a)). Diese erste Messung mit der BPM belegt die enorme Empfindlichkeit der ortsaufgelösten Positronenspektroskopie für die Abbildung plastischer Zonen bei der Untersuchung der Materialermüdung.

Als weiteres Beispiel zeigt Abbildung 4.19 die plastische Zone in der Titan-Legierung TiAl6V4, erzeugt im Umlauf-Biege-Versuch. Der relative S-Parameter ist farbkodiert dargestellt [256]. Bei einem Umlauf-Biege-Versuch (siehe Abbildung 4.18) wird eine rotationssymmetrische Probe auf der einen Seite in einem Lager fest eingespannt und auf der anderen Seite an einem Loslager

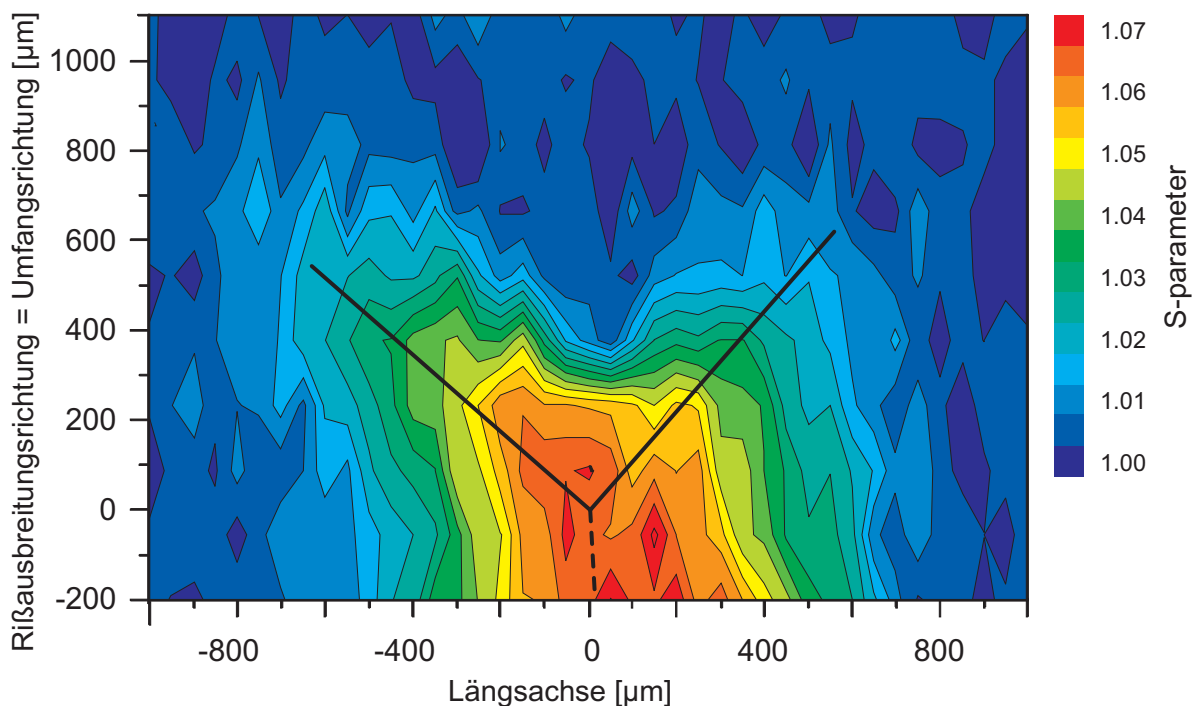


**Abbildung 4.18:** Skizze zum Umlaufbiegeversuch: Eine rotationssymmetrische, in der Mitte ausgekehlte Probe wird einseitig in einem Festlager eingespannt und auf der anderen Seite an einem Loslager belastet. Die Kurve oben zeigt den relativen Verlauf der Spannung (Zug und Druck) an der Probeoberfläche in der Auskehlung.



mit einer Last beaufschlagt. Ein solcher Versuch bildet realistische Lastbedingungen nach, wie sie zum Beispiel an den Radachsen von Fahrzeugen oder Eisenbahnwaggons auftreten. Umlaufbiegeproben werden in der Mitte ausgekehlt, um einen definierten Ort maximaler Spannung einzustellen. Dadurch ergibt sich ein Spannungsverlauf an der Probenoberfläche, wie er in Abbildung 4.18 (oben) dargestellt ist.

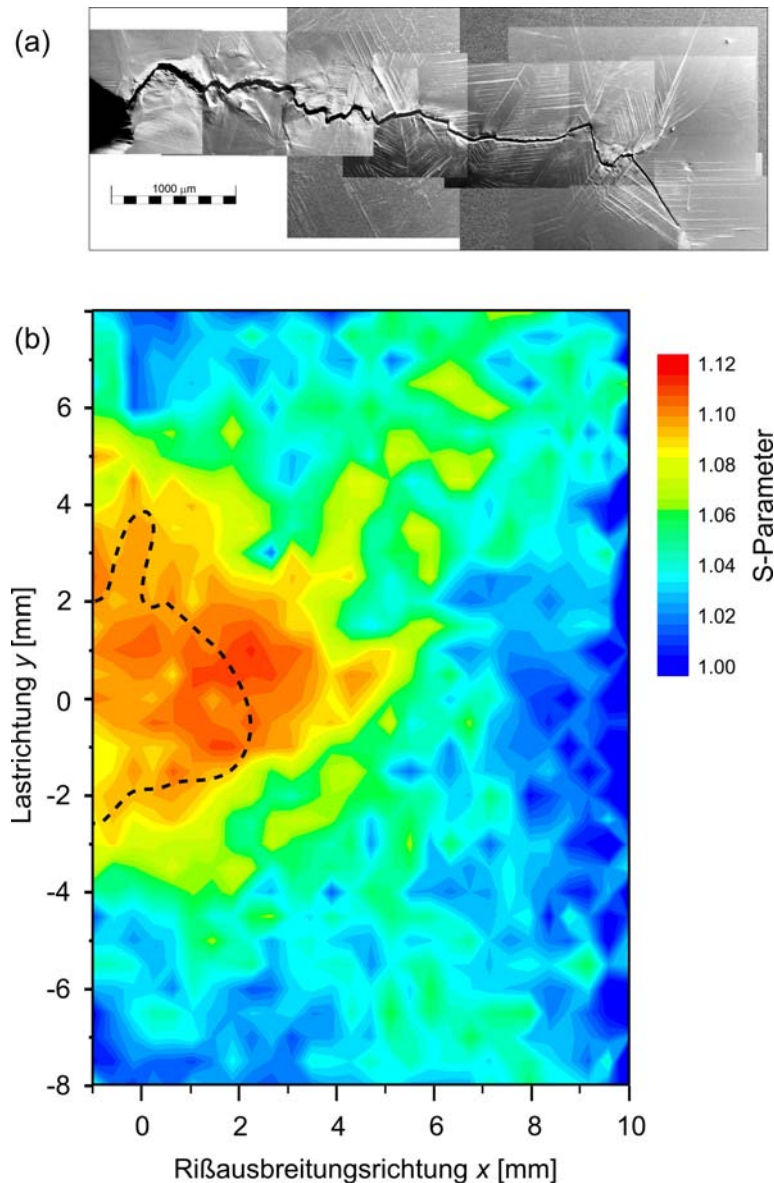
Bei der hier gezeigten Messung wurde die Probe bei einer Umlauffrequenz von 100 Hz und einer maximalen Spannung an der Oberfläche von 655 MPa solange ermüdet, bis ein makroskopischer Anriß sichtbar wurde (Lastwechselzahl  $N = 4.7 \times 10^4$ ). Dieser erstreckte sich über ca.  $\frac{1}{3}$  des Probenumfangs. Vor dem Versuch wurde die Probe einer Temperaturbehandlung unterzogen (1h Rekristallisationsglühen bei 900°C, Wasserabschrecken, 2h Auslagern bei 590°C, Ausheilen 1h bei 700°C im HV). Der S-Parameter wurde über die Mantelfläche in der Auskehlung mit einem Raster von  $50 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$  gemessen. Die Titanlegierung zeigt eine kleine plastische Zone mit einem Durchmesser von  $\sim 1.5 \text{ mm}$  quer zur Riausbreitungsrichtung. Vor der Rispitze befindet sich ein Bereich, in dem die Defektdichte schnell auf den Wert der ausgeheilten Legierung abfllt. Seitlich davon hat sich eine schmetterlingsartige Form ausgebildet, wobei die beiden Flgel auf den Richtungen maximaler Scherspannung von  $45^\circ$  liegen (schwarze Linie in Abbildung 4.19).



**Abbildung 4.19:** Plastische Zone vor einem Ermdungsri im der Titanlegierung TiAl6V4, erzeugt im Umlaufbiegeversuch. Der S-Parameter ist in Falschfarben dargestellt. Die Rispitze befindet sich im Ursprung des Koordinatensystems, wobei der Riverlauf durch eine gestrichelte Linie angedeutet ist. Die durchgehenden schwarzen Linien zeigen die Richtungen maximaler Scherspannung an.

Abbildung 4.20 zeigt als weiteres Beispiel eine plastische Zone in technischem Kupfer. Dieses besitzt eine Reinheit von 99.9 % und liegt nach dem Glhen (3h bei 1000°C im Hochvakuum) in einem hochduktilen und grobkristallinen Zustand vor (Korngre ca. 2-3 mm). Der Ermdungsri wurde dehnungskontrolliert mit  $1.1 \times 10^5$  Verformungszyklen in miniaturisierter CT-Geometrie ( $27.5 \times 27.3 \times 1.4 \text{ mm}^3$ ) bei einem  $\Delta K$  von  $40 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$  im symmetrischen Zug-Druck-Versuch erzeugt ( $R = 1$ ).

Wie bei dieser hochduktilen Legierung zu erwarten, hat sich vor der Rißspitze eine ausgedehnte plastische Zone ausgebildet. Diese kann in zwei Bereiche unterteilt werden: Einen Bereich höchster Fehlstellendichte ( $S \geq 1.09$ ), der sich über  $\sim 8$  mm quer zur und  $\sim 5$  mm in Rißausbreitungsrichtung erstreckt. Veränderungen auf der Probenoberfläche (Gleitlinien) sind jedoch nur in einem kleineren Bereich (ca.  $4 \times 2$  mm<sup>2</sup>) im SEM zu erkennen.



**Abbildung 4.20:** Plastische Zone vor einem Ermüdungsriß in technischem Kupfer (CT-Geometrie): (a) Elektronenmikroskopische Abbildung (b) Positronenabbildung der plastischen Zone (S-Parameter). Die Rißspitze befindet sich im Ursprung des Koordinatensystems. Die gestrichelte Linie grenzt den Bereich ein, in dem im SEM Oberflächenveränderungen sichtbar sind.

Der Bereich mittlerer bis geringer Schädigung ( $S = 1.02 - 1.07$ ) zeigt schmetterlingsförmige Ausläufer in Richtung der maximalen Scherspannung und ist bis an den Rand der Probe zu beobachten (in Abbildung 4.20 nicht dargestellt). In Rißausbreitungsrichtung ist ab ca. 9 mm Entfernung von der Rißspitze keine Erhöhung des S-Parameters mehr festzustellen.

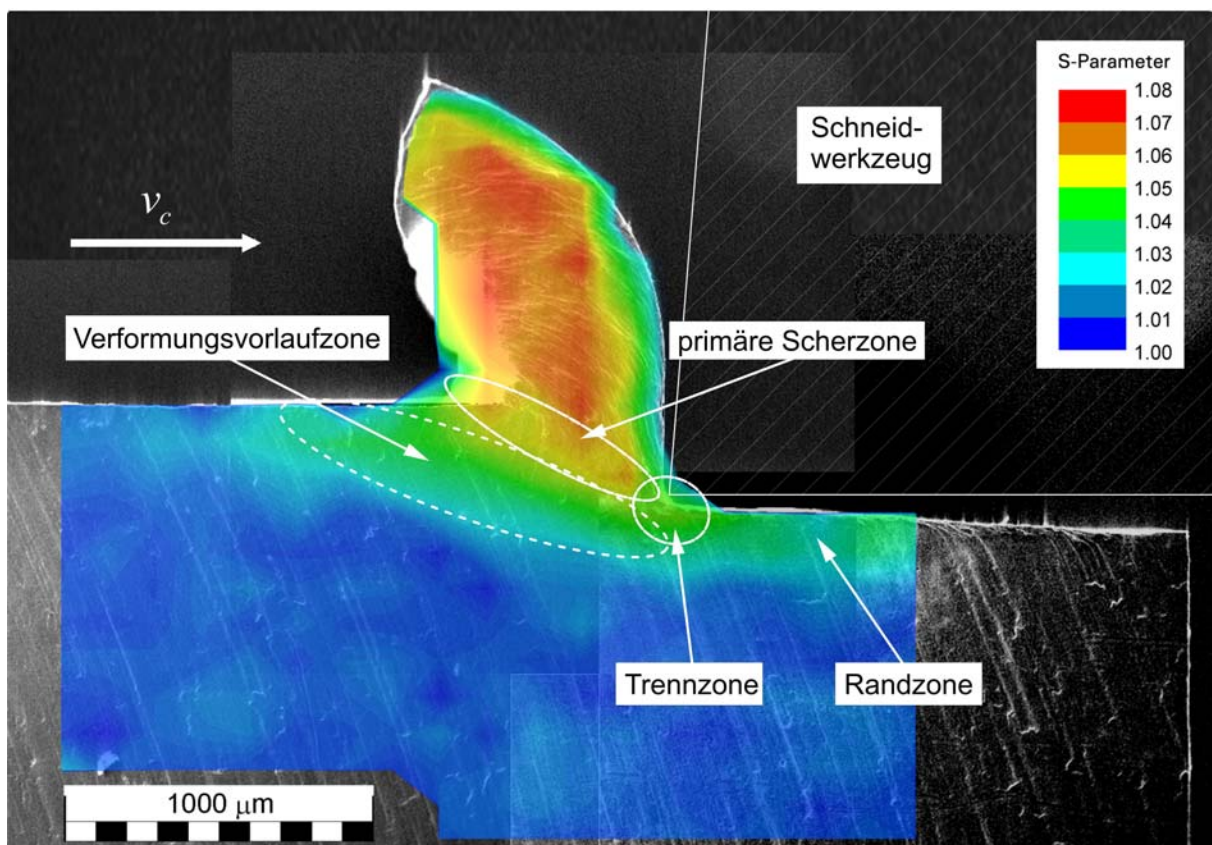
Dieses Resultat steht im deutlichen Gegensatz zu den Ergebnissen von Egger et al., die mit ortsaufgelöster Lebensdauer-Spektroskopie eine wesentlich kleinere plastische Zone in einer ähnlichen Probe aus technischem Kupfer [365] fanden. Die Ergebnisse sind allerdings in so-

fern nicht direkt zu vergleichen, da die Ermüdung bei ca. der Hälfte des  $\Delta K$  Wertes der hier vorgestellten Messung durchgeführt wurde und auch nur ein Bereich von  $0.2 \times 0.4 \text{ mm}^2$  direkt auf dem Riß mit Positronen abgerastert wurde. Des Weiteren haben die Autoren die Probe nach der Rißerzeugung einer mechanischen Politur unterzogen. Dies birgt das Risiko von Meßartefakten durch Schleifrückstände in Mikrorissen auf der Probenoberfläche, und kann eine die Messung verfälschende Oberflächenschädigung verursachen.

### 4.3.2 Deformationszonen bei der Hochgeschwindigkeitszerspanung

Die Abbildung von Deformationszonen ist auch in anderen Bereichen der Materialforschung von Bedeutung. So stellt sich bei der spanenden Bearbeitung von Werkstücken mit sehr hohen Geschwindigkeiten (Hochgeschwindigkeits-Drehen oder Fräsen) die Frage nach der Schädigung der neuen Oberfläche nach dem Zerspanvorgang.

Der Idee, geringere Fertigungskosten und gleichzeitig höhere Oberflächengüte durch eine drastische Erhöhung der Schnittgeschwindigkeit zu erzielen, läßt sich bis Anfang des 20. Jahrhunderts zurückverfolgen. Erste, allerdings ballistische, Untersuchungen zur Zerspanung mit hohen Geschwindigkeiten wurden bereits 1924 bis 1931 durchgeführt [366]. Seit den 1980er Jahren ist die Hochgeschwindigkeitszerspanung (HSC) wiederholt Gegenstand weiterer Untersuchungen gewesen [367].



**Abbildung 4.21:** Span und Spanwurzel nach der abrupten Unterbrechung der Zerspanung bei 1200 m/min. Der Positronenscan ist halbtransparent über eine elektronenmikroskopische Aufnahme gelegt. Der relative S-Parameter wird hier als Maß für die Schädigung durch Umformarbeit interpretiert. Rot steht dabei für eine starke Schädigung, während Blau dem ausgeheilten Zustand entspricht.

Hierbei stehen einerseits fertigungstechnische Aspekte im Vordergrund [368], als auch die Erhöhung von Maßhaltigkeit und Oberflächengüte [369]. Es zeigt sich, daß eine höhere Oberflächengüte im Allgemeinen durch eine Verringerung des Vorschubs erreicht wird. Dies ist zudem notwendig, da HSC-Spindeln bei hohen Drehzahlen ein geringes Drehmoment aufweisen. Bei der HSC wird aus diesen Gründen in der Regel mit geringen Vorschüben gearbeitet [370].

Die Grenze zwischen herkömmlicher Zerspanung und der HSC kann am Übergang zwischen gleichmäßiger Deformation bei niedrigen Geschwindigkeiten und der stark inhomogenen Verformung bei der HSC gezogen werden. So fließt bei der HSC der Span nicht mehr gleichmäßig ab, sondern es kommt häufig zur Bildung von Scherspänen oder Segmentspänen. Dabei werden im Span Zonen extrem hoher Umformung beobachtet, die direkt an fast unverformte Bereiche angrenzen [367].

Ein Großteil der mechanischen Arbeit während der Verformung wird durch innere Reibung im Werkstück und äußere Reibung mit dem Werkzeug in Wärme umgewandelt. Die Wärmeentwicklung in der Spanwurzel kann bei hohen Schnittgeschwindigkeiten so stark werden, daß die entstehende Wärmemenge nicht schnell genug über den Span abtransportiert wird [371,372,373]. Dies kann soweit gehen, daß das Metall lokal aufschmilzt. In der Verformungsvorlaufzone und in den Scherzonen kommt es durch die lokale Aufheizung zu einer Entfestigung, die zu einer Abnahme der für die Umformung nötigen Kräfte führt. Dringt das Werkzeug im weiteren Verlauf des Schneidprozesses in einen noch kalten Bereich des Werkstücks ein, wiederholt sich der Vorgang.

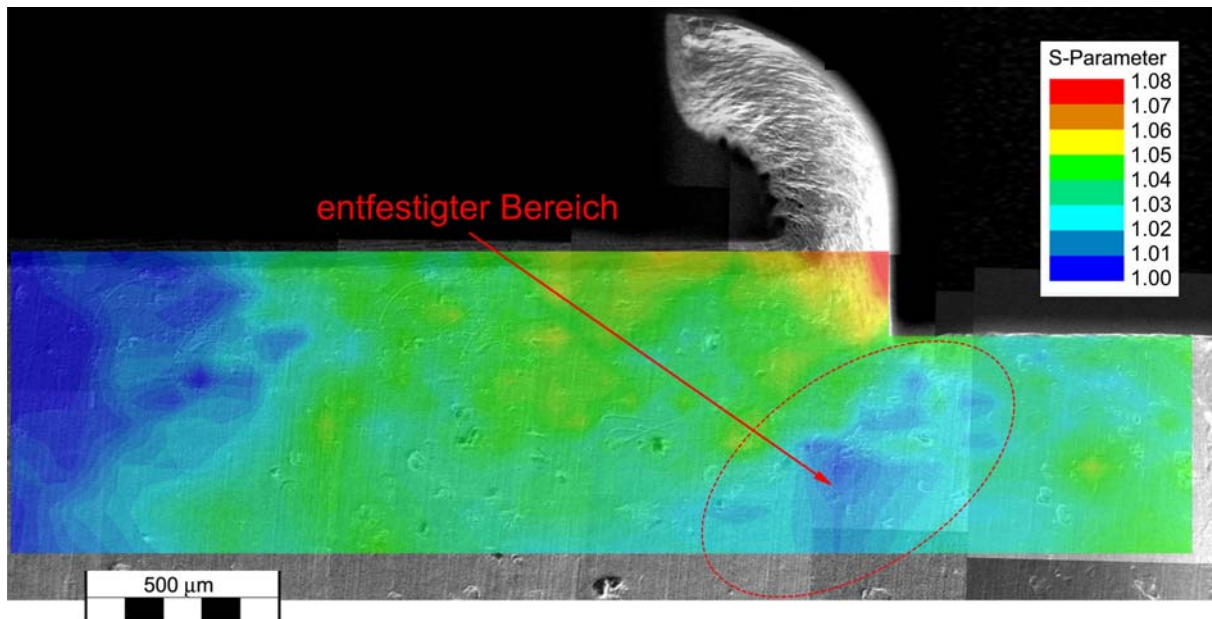
Die Schädigung in der Randzone nach dem Schneidvorgang ist ein wesentliches Kriterium zur Beurteilung der Bearbeitungsqualität. Die Auswirkung der Parameter Schnitttiefe und Schnittgeschwindigkeit auf die Schädigung in der Randzone wurden mit Positronen untersucht. Dazu war es zuerst notwendig, Spanwurzeln so zu präparieren, daß der Schnitt bei definierter Geschwindigkeit abrupt unterbrochen wird und somit eine Momentaufnahme der Schädigung bei gegebenen Parametern entsteht. Dazu wurde eine dem Luftgewehr ähnliche Schußapparatur verwendet, mit der eine Probe mit definierter Geschwindigkeit auf ein feststehendes Schneidwerkzeug geschossen wurde. Kurz nach dem Eindringen in die Probe wird der Schnitt durch einen Prellblock aus Hartmetall unterbrochen. Um eine Schädigung der Probenoberfläche beim Durchflug im Schußkanal zu vermeiden, wurde die Probe längsgeteilt ausgeführt. Beide Teile wurden vor dem Schuß verschraubt und verstiftet, nachher wieder getrennt und auf der Innenseite gemessen [22,256]. Die so erhaltene Meßfläche ergibt einen Längsschnitt durch Span und Spanwurzel.

Abbildung 4.21 zeigt eine typische Positronenabbildung von Span und Spanwurzel im Karbonstahl C45E. Der Schnitt wurde hier bei einer Geschwindigkeit von 1200 m/min unterbrochen. Die stärkste Verformung findet sich im Span und in der primären Scherzone (rot). Eine dem Schnitt vorauslaufende plastische Zone, die sog. Verformungsvorlaufzone, zeigt sich durch eine mittlere Schädigung (grün). Auf der rechten Seite des Spans läßt sich ein thermisches Ausheilen von Defekten durch Reibung mit dem Werkzeug beobachten.

Aus einer solchen Abbildung kann die verbleibende Schädigung in der Randzone entnommen und mit den Schnittparametern korreliert werden. In einer Reihenuntersuchung zeigte sich dabei ein stärkerer Einfluß der Schnitttiefe als der Schnittgeschwindigkeit [22].

Ein Nachweis der Entfestigung durch Wärmeentwicklung im Werkstück ist mit Positronen ebenfalls möglich. Abbildung 4.22 zeigt die Fehlstellenverteilung in einer Spanwurzel nach einem Schnitt bei 2400 m/min. Ein thermisch entfestigter Bereich vor und unter der Trennzone ist deutlich sichtbar. Im Gegensatz zur normalen Zerspanung (siehe Abbildung 4.21) reicht

die Schädigung weit tiefer unter die neue Oberfläche und weist Festigkeitsinhomogenitäten auf. Eine solche Oberfläche kann sich für die technischen Eigenschaften eines Werkstücks als ungünstig erweisen.



**Abbildung 4.22:** Entfestigter Bereich in einer Spanwurzel nach dem Zerspanen bei 2400 m/min. Die Verformungsvorlaufzone (grüner Bereich links vom Span) ist stark ausgeprägt und reicht weit vor die primäre Scherzone.

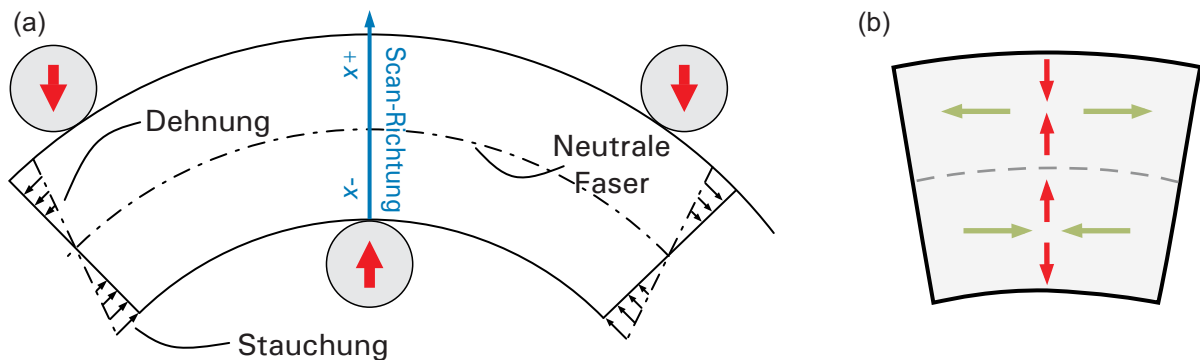
Diese Beispiele zeigen, daß man mit Positronen eine Meßmethode zur direkten Untersuchung der Materialeigenschaften nach Zerspanvorgängen erhält, wobei sich Aufwand und Probenpräparation in Grenzen halten. Einfache Reihenuntersuchungen ermöglichen eine Bewertung der Fertigungsparameter in Bezug auf mikroskopische Eigenschaften der Bauteiloberfläche und somit ein effektives Auswahlkriterium zur Optimierung von Fertigungsprozessen.

#### 4.4 Vergleich von PAS und Röntgenbeugung

Versetzungsdichten sind für Positronen indirekt über die assoziierten Gitterfehler mit offenem Volumen (Leerstellen, Jogs, etc.) zugänglich. In der Umgebung einer Versetzung kommt es aber auch zu einer elastischen Gitterverzerrung, die im Röntgenbeugungs-Experiment zu einer geringfügigen Verschiebung der Bragg-Reflexe führt. Gemittelt über eine hinreichend große Zahl von Kristallkörnern, und somit auch Kristallorientierungen, bewirken diese Verschiebungen eine statistische Verteilung der Gitterkonstanten um ihre Mittelwerte und somit eine Verbreiterung der Beugungsreflexe.

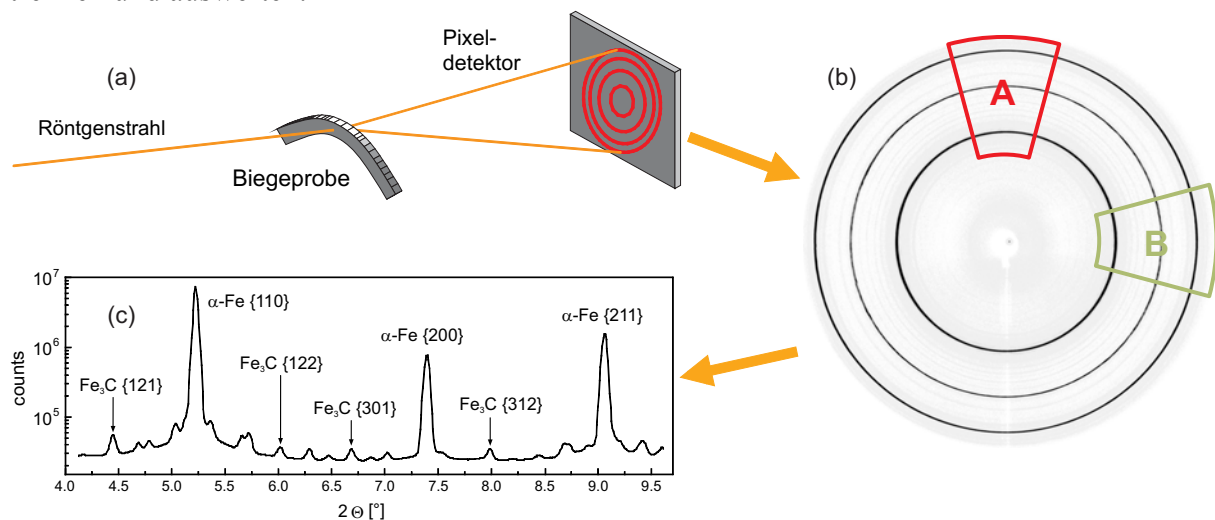
Abweichungen von den Gitterkonstanten des idealen Kristalls sowie die Verbreiterung der Beugungsreflexe lassen sich im Debye-Scherrer Versuch mit hoher Genauigkeit messen. Soweit sie in hinreichender Anzahl vorhanden sind, entsprechen die Kristallkörner im durchstrahlten Volumen dabei dem Pulver im klassischen Debye-Scherrer Aufbau. Im Gegensatz zum Pulver sind die Körner im Metall miteinander verbunden, so daß großräumige Verteilungen, wie die Textur oder der Dehnungszustand eine Rolle spielen. Ist die lokale Dehnung im bestrahlten Volumen einigermaßen konstant, lassen sich die Verschiebung der Reflexe und

deren Verbreiterung sinnvoll von einander trennen [374] und man erhält zwei unabhängige Observablen für die lokale Dehnung und die lokale Versetzungsdichte.



**Abbildung 4.23:** (a): Skizze eines Drei-Punkt-Biegeversuchs. Die Richtung der ortsaufgelösten Messungen mit Positronen und Röntgenbeugung ist blau markiert. (b): Vereinfachte schematische Darstellung der Fließrichtungen auf beiden Seiten der neutralen Faser (Rot: in Biegerichtung, grün: senkrecht dazu). Oberhalb der neutralen Faser entsteht in Biegerichtung eine Druckspannung, während senkrecht dazu eine Zugspannung wirkt. Unterhalb der neutralen Faser verhält es sich umgekehrt.

Ein Debye-Scherrer Versuch in Transmission ist nur mit monochromatischem Röntgenlicht von hoher Energie möglich, wie es an einem Speicherring zu Verfügung steht. Im Gegensatz zur Beugungsversuchen mit charakteristischer Röntgenstrahlung wird die Information aus dem gesamten durchstrahlten Volumen gewonnen [375,376]. Man erhält auf diese Weise ähnliche Bedingungen wie mit Neutronenbeugung [377]. Des weiteren ermöglicht die Verwendung monochromatischer Röntgenstrahlung die gleichzeitige Aufzeichnung mehrerer Bragg-Reflexe unterschiedlicher Phasen des untersuchten Materials [378]. Bei dem hier untersuchten Karbonstahl C45E ließen sich die Reflexe des  $\alpha$ -Eisens und des Zementits klar von einander trennen und auswerten.



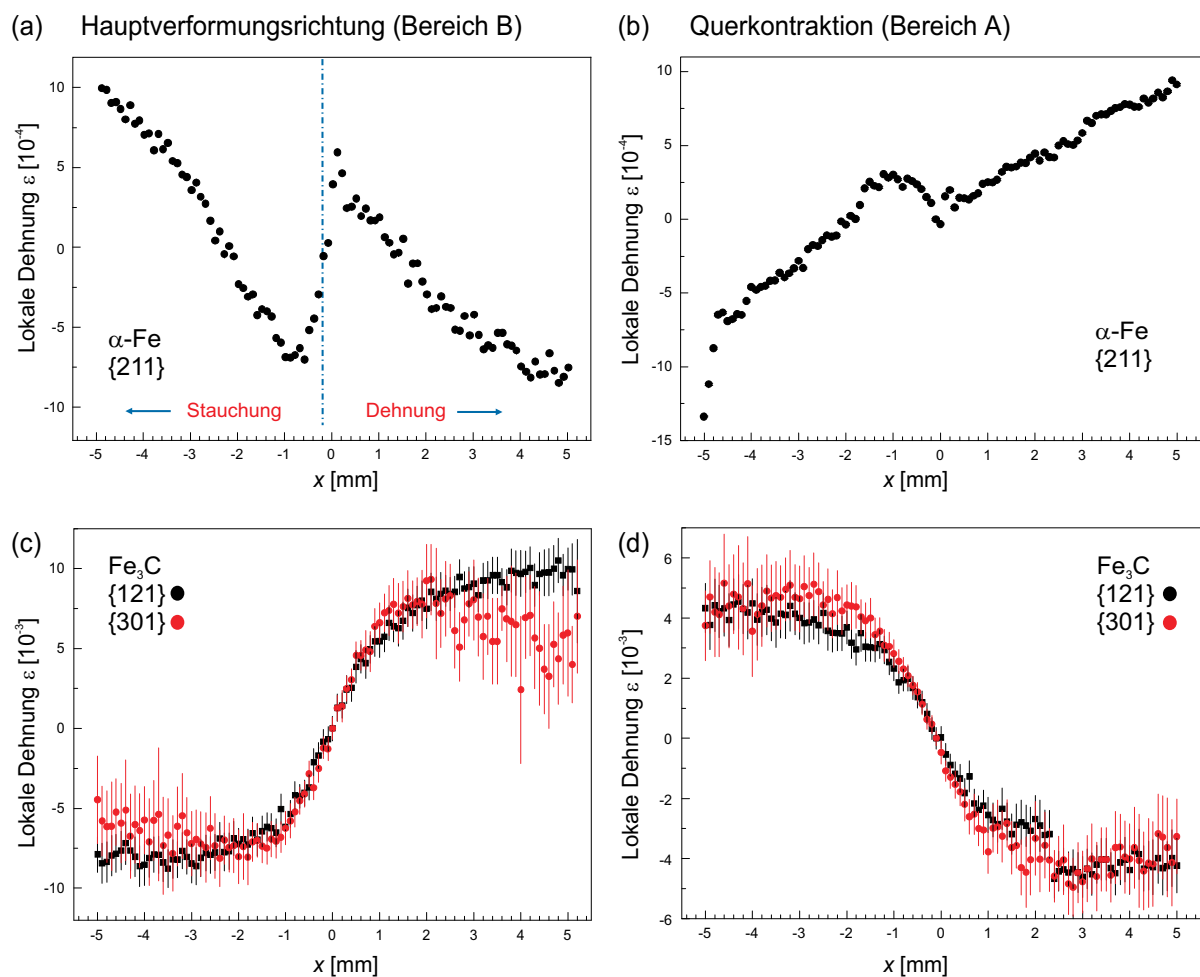
**Abbildung 4.24:** (a): Prinzip des Debye-Scherrer Versuchs am polykristallinen Karbonstahl C45E. Nach Durchstrahlung der Probe werden die Beugungsringe mit einem Pixeldetektor aufgezeichnet. (b): Die azimutale Integration der digitalisierten 2d-Daten erfolgt in zwei Bereichen: A (rot): In Richtung des Biegeradius, B (grün): senkrecht dazu. (c): Resultierendes 1d-Spektrum mit indizierten Linien des  $\alpha$ -Fe und  $\text{Fe}_3\text{C}$ .

Als ein einfaches Beispiel für elastisch-plastische Verformung wurde eine Flachprobe (Durchmesser:  $3 \times 10 \text{ mm}^2$ ) aus C45E im Drei-Punkt-Biegeversuch mit einem Biegeradius von 55 mm verformt. Der Stahl wurde vor der Verformung optisch spiegelnd poliert und ther-

misch ausgeheilt (3h bei 680°C im HV). Zwei hervorstechende Eigenschaften des Drei-Punkt-Biegeversuchs sind die neutrale Faser in der Probenmitte, an der keinerlei Verformung stattfindet sowie ein linearer Gradient der technischen Spannung in Biegerichtung (siehe Abbildung 4.23 a).

An einer solchen Probe wurde sowohl mit Positronen als auch mit Debye-Scherrer mit einer Schrittweite von 100µm in Biegerichtung über die Probe gemessen. Der Strahl der Mikrosonde wurde dazu auf einen Durchmesser von 100µm defokussiert. Die Debye-Scherrer Messungen wurden an der Hard X-ray beam-line am Speicherring PETRA II am DESY/HASYLAB [379] in einen ähnlichen Aufbau wie in [380] bei einer Strahlenergie von 67.2 keV durchgeführt. Der Strahl wurde dabei ebenfalls auf 0.1mm in Biegerichtung kollimiert.

Um hinreichende Pulverbedingungen zu erhalten, wurde das Strahlprofil senkrecht zur Biegerichtung auf 1.5mm vergrößert, so daß sich für jeden Meßpunkt ein durchstrahltes Volumen von  $0.1 \times 1.5 \times 3.0 \text{ mm}^3$  ergibt, das ca.  $4 \times 10^4$  Kristallkörner enthält [381].



**Abbildung 4.25:** Lokale Dehnung für  $\alpha$ -Fe (oben) und  $\text{Fe}_3\text{C}$  (unten) für die Hauptverformungsrichtung (links) und die Querkontraktion (rechts) für ausgewählte Reflexe. Die Abszisse gibt den Abstand zur Probenmitte an. Zum Vorzeichen siehe Abbildung 4.23.

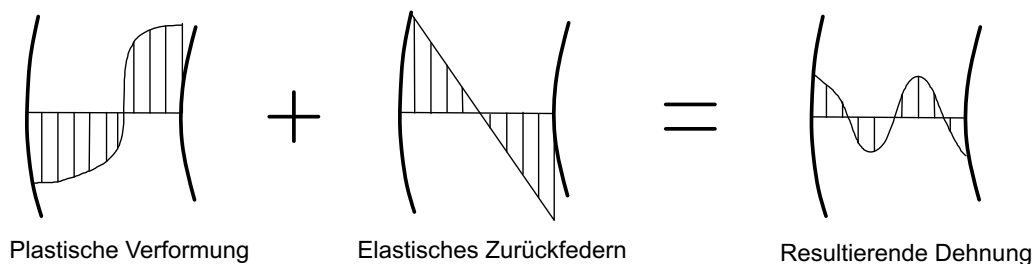
Die Debye-Scherrer Ringe wurden mit einem Pixel-Detektor aufgezeichnet und zwei Bereiche ausgewertet, die die Reflexe in Biegerichtung (Abbildung 4.24 b, Bereich A) sowie senkrecht dazu (Abbildung 4.24 b, Bereich B) enthalten. Auf diese Weise können die lokalen Dehnungen in der Hauptverformungsrichtung (Bereich B) und die Querkontraktion (Bereich A) voneinander getrennt ausgewertet werden.

Nach einer Kalibrierung mit  $\text{LaB}_6$  wurden diese Bereiche mit der Standard-Software Fit2D [382] azimuthal aufintegriert und die resultierenden eindimensionalen Spektren (Abbildung 4.24 c) indiziert und ausgewertet. Zu weiteren Einzelheiten der Auswertung siehe [263] und [381]. In dem hier vermessenen Bereich von  $2\Theta$  ( $4 - 9.6^\circ$ ) wurden drei Reflexe des  $\alpha$ -Eisens ( $\{110\}$ ,  $\{200\}$ ,  $\{211\}$ ) sowie vier Reflexe des Zementits ( $\text{Fe}_3\text{C}$ ) ( $\{121\}$ ,  $\{122\}$ ,  $\{301\}$ ,  $\{312\}$ ) ausgewertet (siehe Abbildung 4.24 c). Die lokale Dehnung wird dabei auf einfache Weise als Relativwert zu den Reflexen des unverformten Materials bestimmt [380]:

$$\varepsilon = \frac{d_{hkl} - d_{hkl}^0}{d_{hkl}^0}, \quad (4.9)$$

$d_{hkl}$  ist dabei der gemessene lokale Netzebenenabstand mit dem Index  $hkl$  und  $d_{hkl}^0$  der entsprechende Netzebenenabstand des unverformten Materials. Abbildung 4.25 zeigt die lokale Dehnung für  $\alpha$ -Eisen (oben) und  $\text{Fe}_3\text{C}$  (unten) für die Hauptverformungsrichtung (links) und die Querkontraktion (rechts) orts aufgelöst über den Probenquerschnitt. Negative Werte auf der Abszisse weisen in Richtung der Biegewalze und entsprechen einer Stauchung in Hauptverformungsrichtung, positive einer Dehnung (siehe Abbildung 4.23).

Die neutrale Faser findet sich im Nulldurchgang der Dehnungskurven und liegt um  $\sim 0.2$  mm in Richtung der Biegewalze von der geometrischen Mitte der Probe verschoben. Eine Ausnahme bildet die Querkontraktion des  $\alpha$ -Eisens, die eine insgesamt etwas stärkere Dehnung zeigt. Die Kurven des  $\text{Fe}_3\text{C}$  zeigen den für einen Drei-Punkt-Biegeversuch zu erwartenden S-förmigen Verlauf [383]. Auch wenn die lokale Spannung während der Verformung linear über dem Querschnitt bleibt, wird jenseits der Fließgrenze elastische Energie in plastische Verformung umgewandelt, was zu einem Abflachen der Kurven führt. In der  $\alpha$ -Fe Phase wird dieser Verlauf jedoch deutlich vom elastischen Zurückfedern nach dem Ausspannen der Probe überlagert [384, 385] (siehe auch Abbildung 4.26). Beim  $\text{Fe}_3\text{C}$  ist dieser Effekt nur im Verlauf der  $\{301\}$  Reflexe andeutungsweise sichtbar.



**Abbildung 4.26:** Schematische Darstellung der resultierenden Dehnung über den Querschnitt einer Drei-Punkt-Biegeprobe nach dem Ausspannen als Überlagerung von plastischer Verformung und elastischem Zurückfedern (Nach [384]).

Wie bei einem solchen Biegeversuch zu erwarten, zeigt die Querkontraktion einen umgekehrten Verlauf zu den Dehnungen in Hauptverformungsrichtung. Eine Ausnahme bilden drei Meßpunkte im  $\alpha$ -Eisen an der Kontaktfläche zur Biegewalze an denen sich eine starke Stauchung zeigt (Abbildung 4.25 b). Da kein entgegengesetzter Effekt in Hauptverformungsrichtung nachweisbar ist (Abbildung 4.25 a), deutet dies auf ein Fließen des Materials in z-Richtung hin.

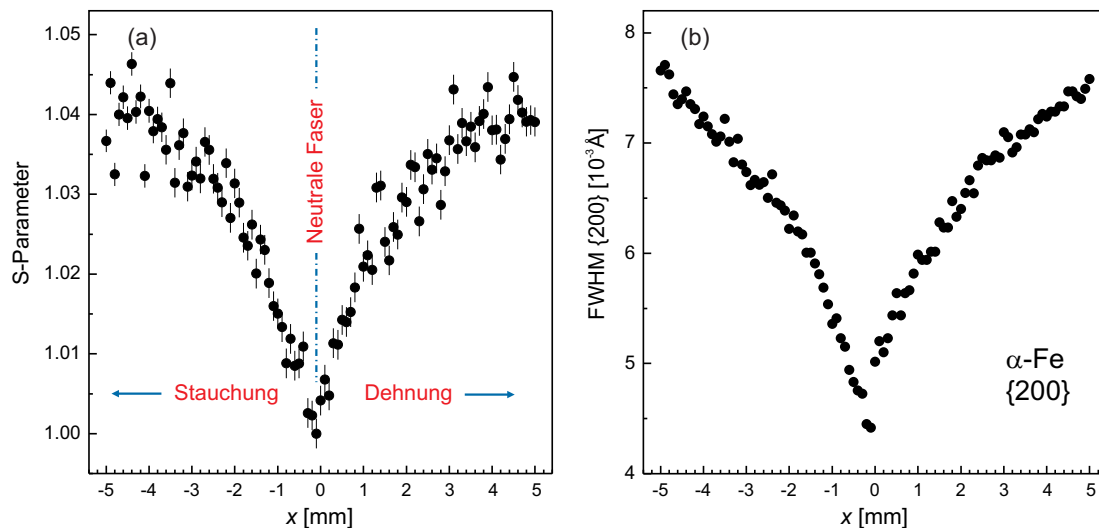
Die Anwesenheit von Versetzungen führt durch die elastische Verzerrung der Netzebenenabstände um den Versetzungskern zu einer Streuung der Gitterkonstanten um den Mittelwert.



Dies wirkt sich in einer Verbreiterung der Bragg-Reflexe aus, die mit der Versetzungskonzentration im durchstrahlten Volumen zunimmt [386,387]. Die durch die Plastizität hervorgerufene Linienverbreiterung wird von einer instrumentellen Verbreiterung überlagert, die sich aus verschiedenen Effekten zusammensetzt. Eine minimale Breite der Reflexe wird durch den Durchmesser des eingehenden Röntgenstrahls und die Pixelgröße des Flächendetektors vorgegeben. Hinzu kommt eine, durch die endliche Dicke der Probe verursachte winkelabhängige Verbreiterung, da sich im Reflexpeak die Streueignisse aus verschiedenen Eindringtiefen im Probenvolumen summieren. Eine weitere Verbreiterung durch Streueignisse an Korngrenzen kann beim C45E mit einer durchschnittlichen Korngröße von 20  $\mu\text{m}$  vernachlässigt werden, da sie um den Faktor 10 unter den gemessenen Breiten liegt [388]. Die Abhängigkeit der instrumentellen Verbreiterung von  $2\theta$  kann mit  $\text{LaB}_6$  als Referenzmaterial vermessen werden, und da sie für alle Probenpositionen identisch ist, kann die durch Deformation hervorgerufene Verbreiterung aus der Gesamtverbreiterung berechnet werden [263]:

$$\beta_{def}^2 = \beta_{total}^2 - \beta_{instr}^2 . \quad (4.10)$$

Abbildung 4.27 zeigt für die selbe Probe einen Vergleich zwischen Positronenmessung (links) und der Verbreiterung der  $\{200\}$  Reflexe des  $\alpha$ -Eisens (rechts), gemessen an derselben Probe. Die S-Parameter sind auf den Wert von ausgeheiltem C45E normiert. Da die geometrische Verbreiterung im asymmetrischen Strahlprofil in Biegerichtung am geringsten war, wurde nur Detektorbereich A zur Bestimmung der Halbwertsbreiten herangezogen. Mit einem symmetrischen Strahlprofil hätte über alle Azimutwinkel integriert werden können, da die Verbreiterung nicht richtungsabhängig ist.

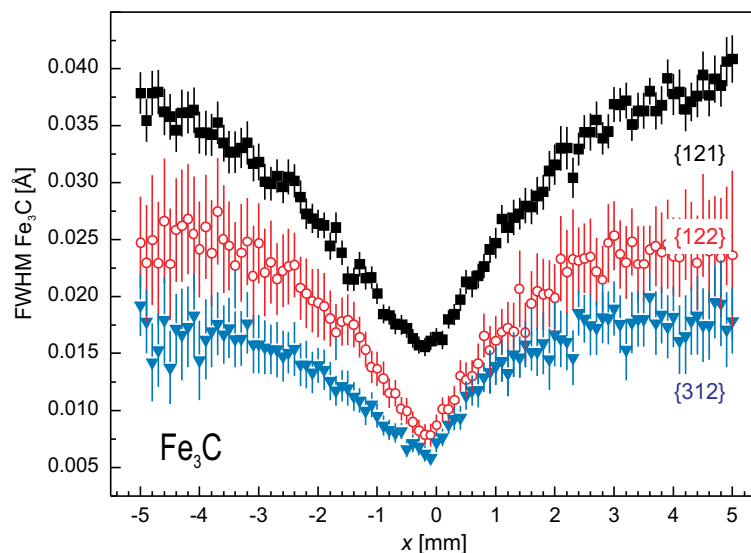


**Abbildung 4.27:** Vergleich des S-Parameters (a) und der Linienverbreiterung der  $\{200\}$  Reflexe des  $\alpha$ -Fe (b), gemessen an identischen Positionen auf ein und derselben Biegeprobe.

Sowohl der S-Parameter als auch die FWHM zeigen, konsistent zur Messung der lokalen Dehnung, die neutrale Faser ca. 0.2 mm in Richtung der Biegewalze verschoben. Da der S-Parameter in der neutralen Faser nicht signifikant vom Referenzwert für ausgeheiltes C45E abweicht, kann auf die Abwesenheit von Plastizität geschlossen werden. Der Anstieg des S-Parameters wie auch der Linienbreite direkt neben der neutralen Faser zeigen, daß die Verformung im gesamten übrigen Volumen einen plastischen Anteil hat. Diese Schlußfolgerung läßt sich allein aus den Röntgen-Daten nicht ziehen.

Der V-förmige Verlauf der Meßwerte ist bei beiden Messungen nahezu identisch. Die Werte steigen mit vergleichbarer Steilheit von der neutralen Faser aus an. Durch die wesentlich geringere Anzahl von Körnern im Meßvolumen der Positronen ( $\sim 20$ ) streut der S-Parameter jedoch im Vergleich zu den Halbwertsbreiten der  $\{200\}$  Reflexe, die über ein größeres Volumen mitteln ( $\sim 4 \times 10^4$  Körner) deutlich stärker.

Die Linienverbreiterung der Reflexe des Zementits verläuft für stärkere Verformungen ähnlich zu der des  $\alpha$ -Eisens (siehe Abbildung 4.28), zeigt jedoch in der Nähe der neutralen Faser einen weichen Verlauf und ein abgerundetes Minimum.



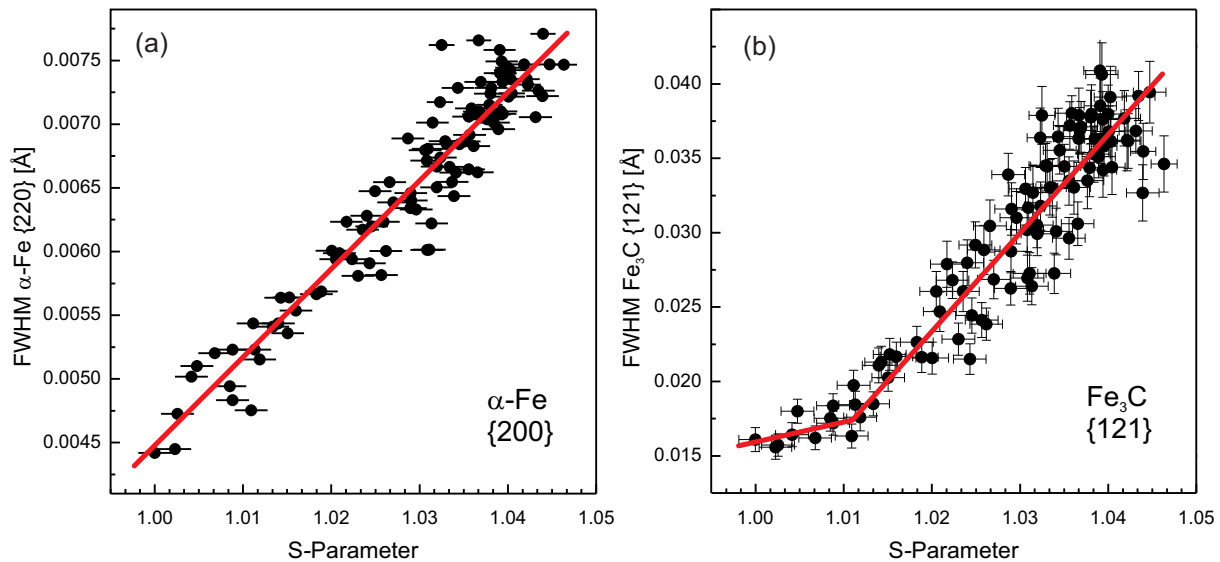
**Abbildung 4.28:** Linienverbreiterung dreier Reflexe des Zementits ( $\text{Fe}_3\text{C}$ ). Das Minimum in der Nähe der neutralen Faser ist nicht so stark ausgeprägt wie beim  $\alpha$ -Fe.

Abbildung 4.29 zeigt eine direkte Korrelation zwischen S-Parameter und der Linienverbreiterung der Beugungsreflexe. Die Halbwertsbreite des  $\alpha$ -Fe ergibt über den ganzen Bereich eine lineare Abhängigkeit vom S-Parameter. Für  $\text{Fe}_3\text{C}$  gilt dies erst ab  $S = 1.01$ . Bei geringerer Verformung verhält sich der Zementit im Gegensatz zum  $\alpha$ -Fe weitgehend elastisch.

Die beiden hier verglichenen Meßgrößen sind für zwei voneinander unabhängige indirekte Auswirkungen der Plastizität sensitiv: Der S-Parameter für die Konzentration von Defekten mit offenem Volumen, die Änderung der FWHM als statistisches Maß für die Störung der Gitterkonstanten.

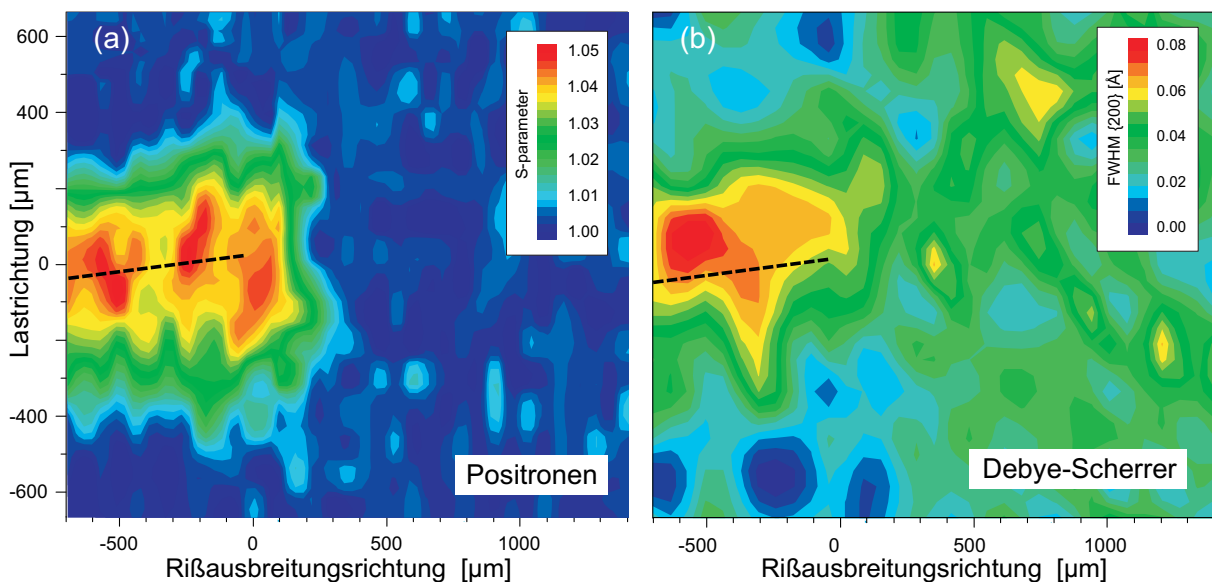
Im direkten Vergleich der FWHM der  $\alpha$ -Phase von C45E und des S-Parameters zeigt sich die selbe Abhängigkeit von der Meßposition auf der Probe. Hierbei messen die Positronen allerdings in einem viel geringeren Volumen unter der Oberfläche als die Röntgenbeugung. Da die Röntgenbeugung die wahre Dehnung im Meßvolumen wiedergibt, wird die schon in Spannungs-Dehnungs-Versuchen festgestellte lineare Korrelation des S-Parameters mit der wahren Dehnung bestätigt (siehe auch: Kapitel 4.1). Dies gilt uneingeschränkt für die ferritische Phase und für stärkere Dehnungen auch für den Perlit im C45E.

Eine Messung der Plastizität über die Linienverbreiterung der Reflexe ist nur dann möglich, wenn eine ausreichende Körnerstatistik im Meßvolumen vorhanden ist. Das hat starke Einschränkungen bezüglich der untersuchbaren Probengeometrien und der erreichbaren Ortsauflösung zur Folge.



**Abbildung 4.29:** Korrelation zwischen S-Parameter und Halbwertsbreite eines  $\alpha$ -Fe Reflexes (a) und eines Reflexes des Zementits  $\text{Fe}_3\text{C}$  (b).

Abbildung 4.30 zeigt beispielhaft einen Vergleich zwischen Positronendaten (a) und Debye-Scherrer-Daten (b) gemessen an identischen Positionen in der Umgebung der Spitze eines Ermüdungsrisses in C45E. Beiden Messungen liegt ein Raster von  $100 \times 100 \mu\text{m}^2$  zugrunde. Die S-Parameter Abbildung zeigt deutlich die verformten Rißwände sowie die schmetterlingsförmige plastische Zone vor der Rißspitze. Weit vor der Rißspitze wird keine Schädigung gemessen. In den Röntgendaten läßt sich der Rißverlauf nur erahnen und der undeformierte Bereich vor der Rißspitze zeigt ein deutliches Signal. Diese entsteht auf Grund der geringen Kornzahl in Meßvolumen ( $\sim 900$ ) durch unsaubere Trennung zwischen durch Plastizität hervorgerufener Linienverbreiterung und elastischer Linienverschiebung.



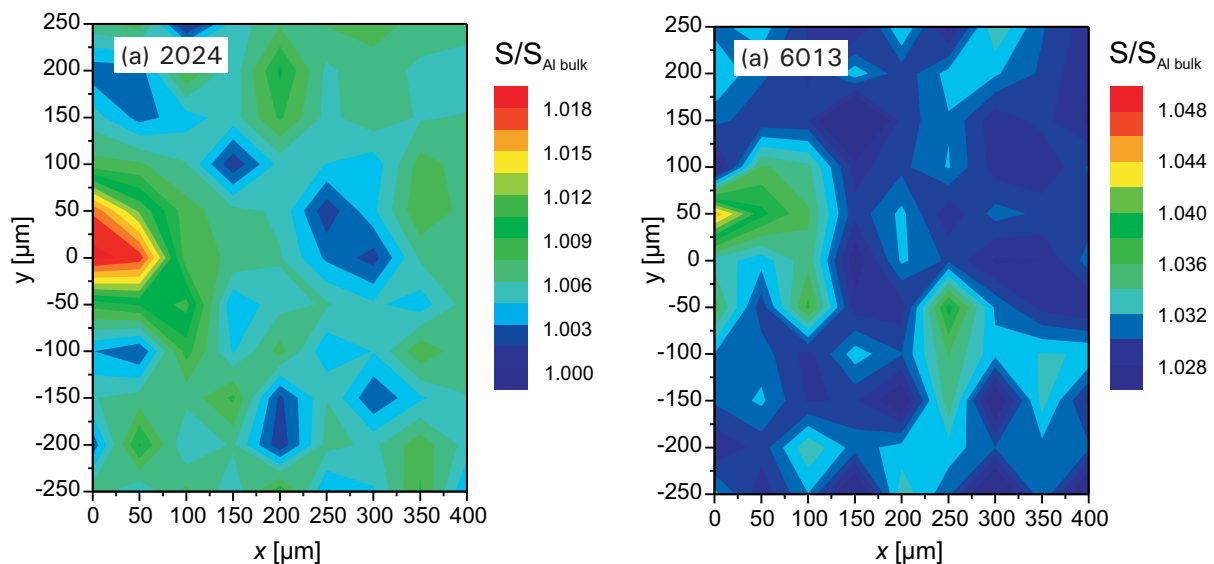
**Abbildung 4.30:** Abbildung des S-Parameters (a) und der Linienverbreiterung des  $\{200\}$  Reflexes des  $\alpha$ -Eisens (b) an identischen Positionen um eine Rißspitze in einer C45E Probe nach zyklischer Ermüdung in CT-Geometrie. Die gestrichelte schwarze Linie skizziert den Rißverlauf.

## 4.5 Wasserstoff und Ermüdung

### 4.5.1 Einfang von Wasserstoff in die plastische Zone

Bei der Ribbildung und beim Ribfortschritt in wechselbelasteten Bauteilen spielt auer den mechanischen Einflussen (Last, Spannungs-Intensitats-Faktor  $\Delta K$ , siehe auch Kap. 4.3.1) und der Lastspielzahl auch die Korrosion eine groe Rolle. Korrosive Einflusse auf der Oberflache konnen die Bildung von Ribkeimen beschleunigen sowie die Ribfortschrittsgeschwindigkeit signifikant erhohen.

Seit den Anfangen der professionellen Luftfahrt bis zur heutigen Zeit werden Flugzeugrumpfe und Tragflachen aus ausscheidungsgeharteten Aluminiumlegierungen hergestellt. Dabei wird hauptsachlich die Al-Mg-Cu Legierung AA2024 verwendet, die 1906 durch einen glucklichen Zufall von A. Wilm entdeckt wurde [198] (siehe auch Kap. 2.6.3). Da sich AA2024 nur unzureichend schweien lasst, werden die vorgefertigten Strukturelemente zum Flugzeugrumpf vernietet, was einerseits aufwendig und teuer ist und andererseits dem Gewicht des Flugzeuges die nicht unbetrachtliche Masse der Niete hinzufugt. Hinzu kommt, da fur eine Nietverbindung zwei Materiallagen notig sind. Diese zusatzliche Masse fallt bei einer Schweiverbindung weg. Seit einigen Jahren wird deshalb daran gearbeitet, Flugzeugteile durch Laserstrahlschweien zu verbinden, um Kosten und Gewicht einzusparen. Beim erstmals Ende 2007 ausgelieferten Airbus A380 sind bereits groe Teile der Auenhaut durch Schweien verbunden. Man setzt dabei auf die schweibare Al-Mg-Si-Cu Legierung AA6013, die im warmausgelagertem Zustand T6 ahnlich gunstige mechanische Eigenschaften zeigt wie AA2024 im kaltausgelagertem Zustand T3.



**Abbildung 4.31:** Plastische Zone vor einem Ermudungsri in zwei verschiedenen Aluminiumlegierungen, erzeugt an Luft: (a) AA 2024 (b) AA 6013. Die Messungen wurden direkt nach der Rierzeugung durchgefuhrt. Zum Vergleich ist der S-Parameter fur beide Legierungen relativ zu ausgeheiltem, reinem (5N) Al angegeben. Der Unterschied in den Werten fur die unverformten Legierungen liegt am Einfang in Ausscheidungen, deren chemische Umgebung den S-Parameter gegenuber reinem Al verschiebt [139] (siehe auch Kap. 2.6). Der Ursprung des Koordinatensystems liegt auf der Rispitze.

Die Dynamik der Riausbreitung zeigt hier, im Gegensatz zu reinem Aluminium, eine Abhngigkeit von der Umgebung, in welcher der Ri erzeugt wird. Wird ein Ri unter korrosiven Bedingungen erzeugt, so liegt die Rifortschrittsgeschwindigkeit ber der bei der Erzeugung in inertem Medium (Luft). Bei AA6013 tritt dieser Effekt besonders deutlich hervor: Abhngig von der Ermdungsfrequenz liegt die Rifortschrittsgeschwindigkeit bei Ermdung im korrosiven Medium (3,5% NaCl) beim bis zu Vierfachen im Vergleich zur Ermdung an Luft [389,390].

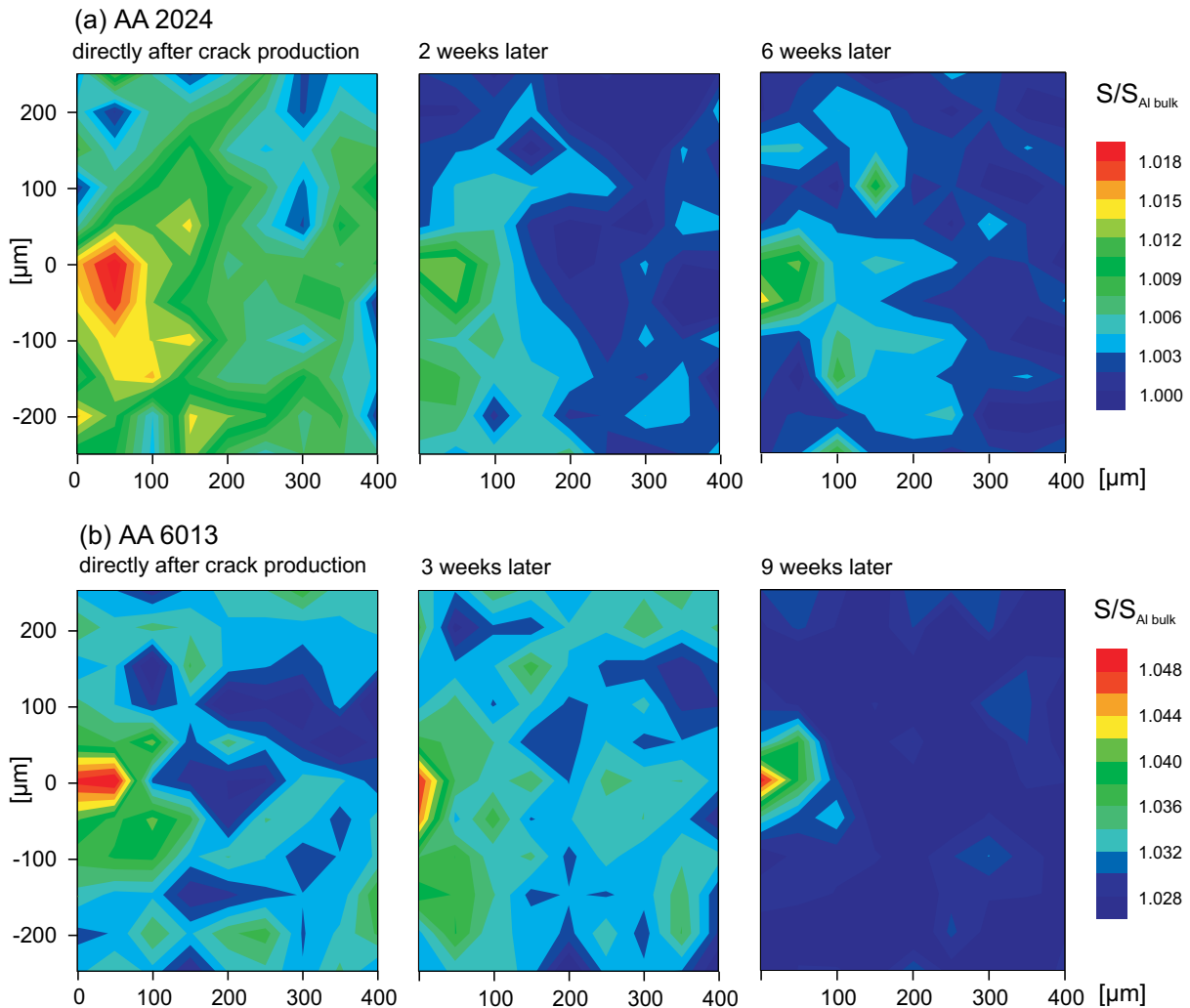
Beim Rifortschritt wird bei jedem Zyklus frische, aktive Oberflche im Ri erzeugt. Unter korrosiven Bedingungen, d.h. in Anwesenheit von Elektrolyten, knnen an dieser Oberflche Redox-Reaktionen stattfinden, bevor sie durch Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> passiviert werden [390, 391]. Dabei entstehen, je nach pH-Wert und Cl<sup>-</sup> Konzentration des Elektrolyts, Al(OH)<sub>2</sub><sup>+</sup> oder Al(OH)<sub>3</sub> in der Lsung und H<sub>3</sub>O<sup>+</sup> direkt an der Oberflche, was dann in H<sub>2</sub>O und H<sup>+</sup> dissoziiert [392]. Nun liegt die Vermutung nahe, da freie Protonen in die frische Oberflche diffundieren und sich ber das Zwischengitter ins Innere des Metalls bewegen. Bei Raumtemperatur ist Wasserstoff in Aluminium hochbeweglich und wird, ganz hnlich zum Positron, von Defekten mit offenem Volumen eingefangen. Aufgrund der geringen Bindungslnge zwischen Al und H [393] sitzt das eingefangene Proton am Rand einer Leerstelle und maskiert diese nicht fr Positronen, was insbesondere bedeutet, da moderate Wasserstoffkonzentrationen im Aluminium die Zerstrahlungsparameter des Positrons nicht ndern [394]. Die Al-H Bindungsenergie liegt bei 0.95±0.03 eV, was einer Dissoziationstemperatur von 295 ±10 K entspricht [395]. Daraus folgt eine gegenber wasserstoffarmen Aluminium erheblich verzgerte Ausheilungskinetik der Leerstellen.

Abbildung 4.31 zeigt die Leerstellenverteilung in der plastischen Zone fr die Legierungen AA2024 (links) und AA6013 (rechts). Beide Ermdungsrisse wurden an Luft erzeugt und die Messungen direkt danach durchgefhrt. Die Ausdehnung der plastischen Zonen kann aus den Abbildungen entnommen werden und betrgt ca. 125 × 175 µm<sup>2</sup> fr AA2024 bzw. 100 × 75 µm<sup>2</sup> fr AA6013. Die in den Zonen gemessenen Maximalwerte des S-Parameters liegen bei  $S_{\max}^{AA2024} = 1.017 \pm 0.003 S_{\max}$  bzw.  $S_{\max}^{AA6013} = 1.044 \pm 0.003$ . Weitere Messungen derselben Proben nach mehreren Wochen zeigten keine Vernderung in der Leerstellenkonzentration, weder in der Ausdehnung noch in den Maximalwerten.

Bei der Erzeugung von Ermdungsrisen in denselben Legierungen und unter denselben mechanischen Bedingungen, aber unter korrosivem Medium (3.5% NaCl) zeigt sich ein unterschiedliches Bild (siehe Abbildung 4.32, links). Direkt nach der Rierzeugung erscheinen die plastischen Zonen fr beide Legierungen grer und es wird auch ein hherer maximaler S-Parameter gemessen: 200 × 250 µm<sup>2</sup> fr AA2024 bzw. 150 × 200 µm<sup>2</sup> fr AA6013 und  $S_{\max}^{AA2024} = 1.018 \pm 0.003$  bzw.  $S_{\max}^{AA6013} = 1.049 \pm 0.003$ . Nach einer Lagerung der Proben bei Raumtemperatur nehmen bei beiden Legierungen sowohl die Ausdehnung als auch der Maximalwert mit der Zeit ab, was bei AA6013 noch deutlicher ausfllt als bei AA2024 (siehe Abbildung 4.32, mittig und rechts). Bei AA2024 gehen die Werte innerhalb von sechs Wochen auf die der an Luft ermdeten Probe zurck, whrend bei AA6013 die Werte auch nach neun Wochen noch ber denen des an Luft erzeugten Risses liegen [139].

Bei den hier untersuchten Legierungen findet der Positroneneinfang hauptschlich in den Ausscheidungen statt, die eine hhere Positronenaffinitt besitzen als die Al-Matrix [93]. Whrend der Ermdung werden aber sowohl in der Matrix als auch an den Ausscheidungen Leerstellen erzeugt. Im wasserstofffreien Aluminium diffundieren die Matrix Leerstellen aber aufgrund ihrer hohen Beweglichkeit (Leerstellenwanderungs-Enthalpie von 0.67 eV [396,

397]) direkt zur Oberfläche oder zu anderen Leerstellensenken und tragen somit bei der Messung nicht zum Signal bei. Bei Anwesenheit von Wasserstoff ist dieser Ausheilungsprozeß aber durch Einfang des Wasserstoffs in die Leerstellen, und damit einer Erhöhung der Wanderungs-Enthalpie des H-Vac Komplexes, verzögert, wodurch ein Signal von Al-Matrixleerstellen auch nach Auslagern über mehrere Wochen bei Raumtemperatur sichtbar bleibt.

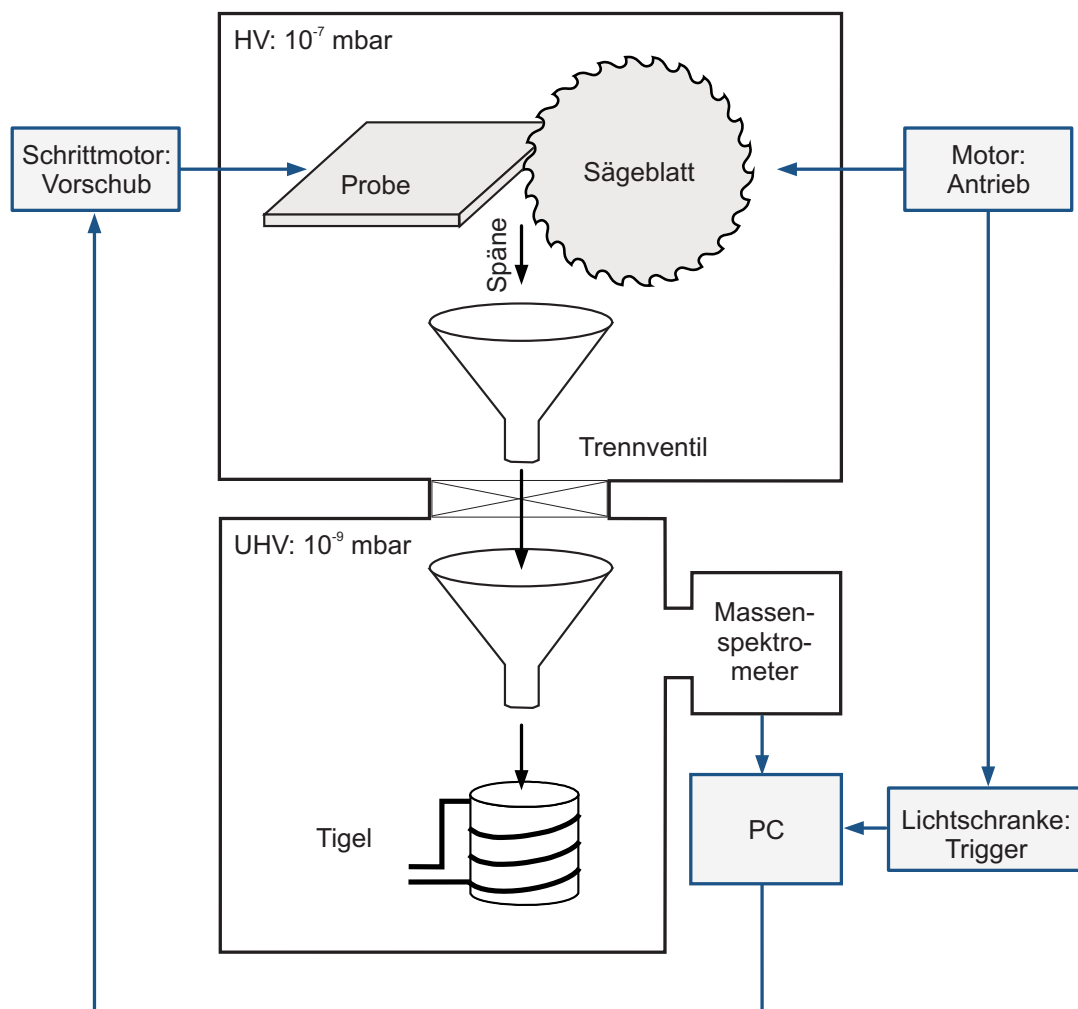


**Abbildung 4.32:** Änderung in der Leerstellenkonzentration in der plastischen Zone über den Zeitraum von Wochen nach Rißerzeugung unter korrosiven Bedingungen. (a) AA 2024 (b) AA 6013. Links: direkt nach der Rißerzeugung. Mitte und Rechts: nach der Lagerung bei Raumtemperatur.

Diese Interpretation wird von isochronen Ausheilversuchen an mit Wasserstoff beladenem Reinaluminium und Al-Legierungen gestützt: Es gibt Evidenz für eine Wasserstoff-Falle, aus welcher der Wasserstoff bei Raumtemperatur nur langsam ausdiffundiert [398]. Beim AA6013 wurde außerdem ein Einfang in Ausscheidungen gefunden, und zwar als MgH [399], und an der S-Phase ähnliche Konfigurationen [400], die bis zu einigen hundert Grad Celsius stabil bleiben.

## 4.5.2 Ortsaufgelöster Wasserstoffnachweis

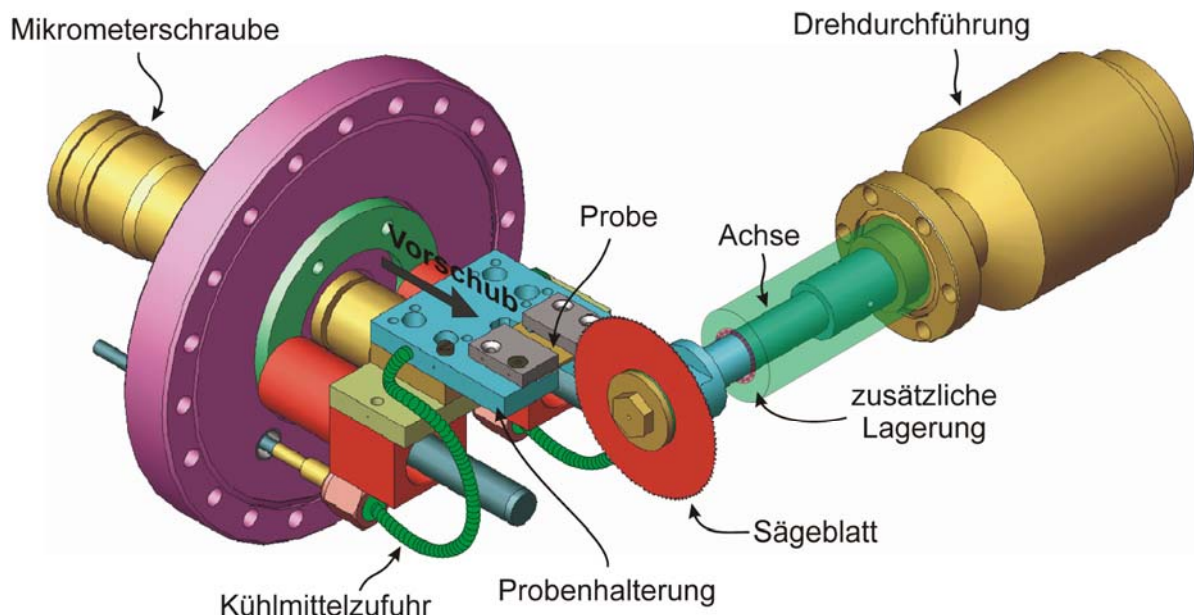
Nun wäre es wünschenswert, die Konzentration des Wasserstoffs in einer plastischen Zone direkt nachzuweisen. Aufgrund der geringen Ausdehnung solcher Zonen im Bereich von einigen  $10\ \mu\text{m}$  bis einigen Millimetern ist ein Nachweisverfahren mit hoher Ortsauflösung nötig. Mit den klassischen Methoden NRRA (Nuclear Resonant Reaction Analysis) [401] und ERDA (Elastic Recoil Detection Analysis) [402] läßt sich zwar über die Variation der Projektilenergie ein Tiefenprofil der Wasserstoffkonzentration bestimmen [403], es ist aber nur mit enormem Aufwand möglich, die geforderte Ortsauflösung zu erreichen. Die laterale Verteilung von Wasserstoff kann jedoch mittels radiographischen oder autoradiographischen Methoden bestimmt werden. Eine Möglichkeit besteht darin, den hohen Absorptionsquerschnitt von Wasserstoff für Neutronen auszunutzen um eine radiographische Abbildung der Wasserstoffkonzentration als inverse Filmschwärzung zu erhalten [404]. Unter Verwendung von Tritium als Ersatz für Wasserstoff kann dessen Verteilung auch mittels Tritium-Autoradiographie bestimmt werden [405,400].



**Abbildung 4.33:** Skizze einer Vorrichtung zum orts aufgelösten direkten Nachweis von Wasserstoff (Wasserstoffsäge - HSaw). Die gekühlte Probe wird in einem HV-Rezipienten zerspant. Die herunterfallenden Späne werden über ein Trichtersystem in einen Tiegel gelenkt und der Wasserstoff bei  $550^\circ\text{C}$  im UHV thermisch desorbiert. Der Probenvorschub und der Antrieb des Sägeblattes sind miteinander synchronisiert, so daß die Signale des Massenspektrometers der Position des Sägeblattes in der Probe genau zugeordnet werden können. Der Aufbau erreicht eine Ortsauflösung von bis zu  $10\ \mu\text{m}$  [409].

Eine weitere gängige Methode ist das Zerschneiden der Probe von Hand und die Bestimmung der Wasserstoffkonzentration entweder über die Beta-Aktivität der Tritiums [406] oder über thermische Desorption im Vakuum [407] für jeden einzelnen Abschnitt oder Span.

Die hier vorgestellte Methode ermöglicht nun einen kontinuierlichen Wasserstoffnachweis mittels thermischer Desorption. Abbildung 4.33 zeigt eine Skizze von Aufbau und Steuerung. Die Probe befindet sich dabei auf einem auf  $-20^{\circ}\text{C}$  abgekühlten Probenhalter im Hochvakuum. Die Kühlung vermindert eine Diffusion des Wasserstoffs während der Messung. Ein mit dem Probenvorschub synchronisiertes Sägeblatt aus Vollhartmetall schneidet Späne aus der Probe, die über ein Trichtersystem in einen Tiegel fallen, der sich in einem daruntergelegenen Rezipienten im UHV befindet. Im Tiegel wird der Wasserstoff bei  $550^{\circ}\text{C}$  desorbiert. Die daraus resultierende Druckerhöhung wird über ein Ionisations-Vakuummeter gemessen, während mit einem Massenspektrometer selektiv die Massen 1 bis 4 nachgewiesen werden. Durch die Synchronisation von Vorschub und Antrieb des Sägeblatts kann den Meßwerten des Massenspektrometers genau der Probenort zugeordnet werden, aus dem der Span stammt. Hierbei erreicht man insgesamt eine Ortsauflösung von bis zu  $10\mu\text{m}$  bei einer Schnittbreite von  $500\mu\text{m}$  [408,409].



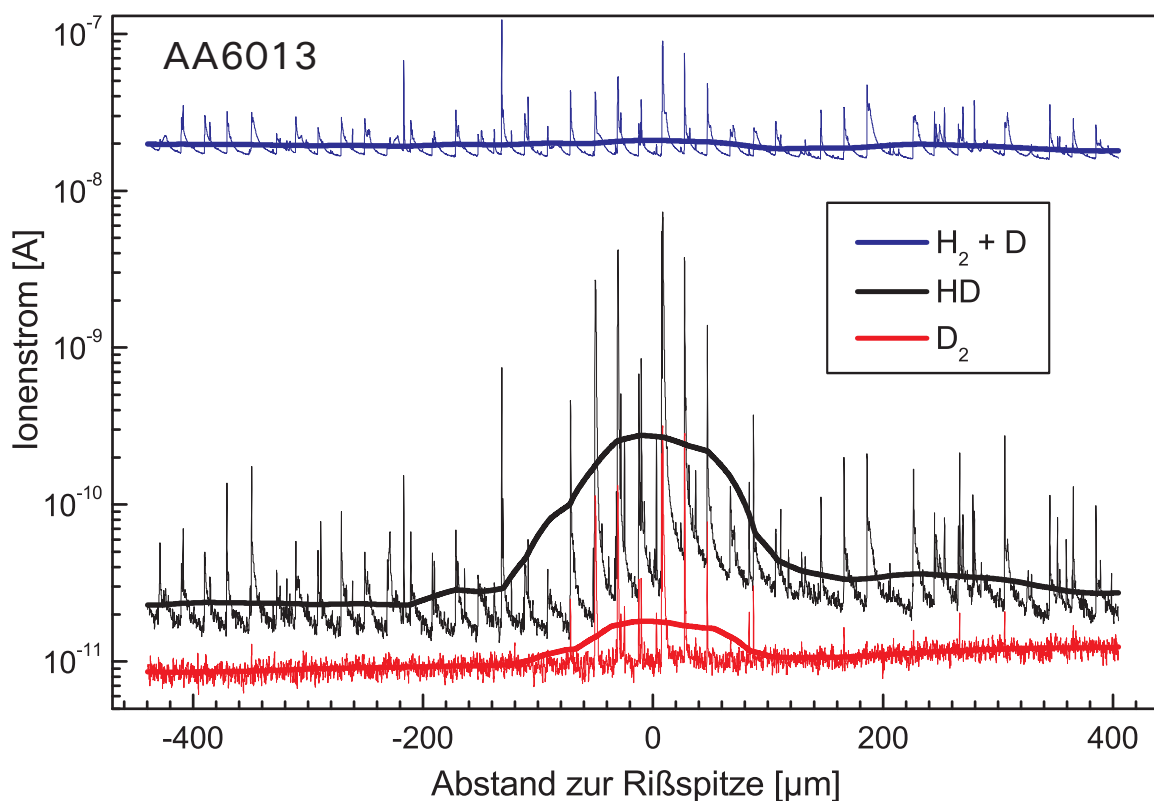
**Abbildung 4.34:** Detailansicht von Probenvorschub und Sägevorrichtung im oberen Rezipienten der Wasserstoffsäge. Der Probenhalter des Vorschubs ist auf  $-20^{\circ}\text{C}$  gekühlt um eine Diffusion des Wasserstoffs während des Sägens möglichst gering zu halten.

Bei der Messung der Wasserstoffkonzentration in einer plastischen Zone stößt man auf zwei weitere Herausforderungen: Zum Einen sind die absoluten Konzentrationen sehr gering, zum Anderen ist Wasserstoff in vergleichbarer Größenordnung in jedem technischen Material enthalten. Wird aber die plastische Zone während der Reißerzeugung in einem deuterierten korrosiven Medium (3.5% NaCl in  $\text{D}_2\text{O}$ ) gezielt mit Deuterium statt mit leichtem Wasserstoff beladen, läßt sich dieses Problem umgehen. Auf diese Weise wird der Wasserstoff, der durch die Reißspitze in die Legierung eindiffundiert (D), klar vom bereits vorhandenen Wasserstoff (H) getrennt. Jeder Span im Tiegel erzeugt im Ionenstrom des Massenspektrometers einen schnell exponentiell abfallenden Peak, dessen Fläche proportional zu seinem Gehalt an H bzw. D ist. Mit dem Massenspektrometer können die Signale der Masse 3 (HD) und Masse 4



(D<sub>2</sub>) klar vom Untergrund des leichten atomaren Wasserstoffs bei Masse 1 getrennt werden. Bei der Masse 2 wird das Signal atomaren Deuteriums von einem Untergrundsignal des molekularen Wasserstoffs überlagert, das über eine Größenordnung höher ist. Das deutlichste Verhältnis von Signal und Untergrund findet sich bei Masse 3 (HD) [409].

Abbildung 4.35 zeigt einen Scan mit der Wasserstoffsäge über die plastische Zone vor der Spitze eines Ermüdungsrisses in der Aluminiumlegierung AA6013 [409, 410]. Der Riß wurde in CT-Geometrie unter Einfluß eines deuterierten korrosiven Mediums bei Raumtemperatur erzeugt. Der Sägeschnitt verlief quer zum Riß durch die plastische Zone, wobei jedem Span eine Schnitttiefe von 20µm entspricht. Dargestellt sind die Ionenströme des Massenspektrometers für die Massen 2 (H<sub>2</sub> + D), 3 (HD) und 4 (D<sub>2</sub>). Die dünnen Linien stellen die Rohdaten dar, während die dicken Linien einen geglätteten Mittelwert (moving average) für jeden Punkt angeben.



**Abbildung 4.35:** Messung mit der Wasserstoffsäge über eine plastische Zone vor einem Ermüdungsriß in der Aluminiumlegierung AA6013. Jeder Sägeschnitt entspricht einem Vorschub von 20 µm. Der Riß wurde in CT-Geometrie in einem deuterierten korrosiven Medium erzeugt (3.5% NaCl in D<sub>2</sub>O). Es wurde quer zur Rißausbreitungsrichtung gesägt. Dargestellt sind die Ionenströme des Massenspektrometers für die Massen 2 (H<sub>2</sub> + D), 3 (HD) und 4 (D<sub>2</sub>). Die durchgezogenen Linien entsprechen einer Glättung mittels moving average. Aus dem Verlauf des Ionenstroms für HD läßt sich die Ausdehnung der plastischen Zone auf ~200µm abschätzen.

Außerhalb der Rißspitzenregion liegt das Signal der Masse 2 um drei Größenordnungen oberhalb der Signale der Massen 3 und 4, und wird ausschließlich vom molekularen Wasserstoff (H<sub>2</sub>) bestimmt. In der Region um die Rißspitze zeigt sich eine minimale Erhöhung, die vom atomaren Deuterium hervorgerufen wird. Bei den Massen 3 und 4 wird in der Rißspitzenregion eine deutliche Signalerhöhung festgestellt, aus der sich die Ausdehnung des deuteriumhaltigen Bereichs auf ~200µm abschätzen läßt. Da Metalle im Allgemeinen kein Deuterium enthalten, ist das Signal der Masse 3 zur Auswertung der lateralen Verteilung besser geeignet als

das der Masse 2, obwohl in diesem absolut gesehen um den Faktor 50 bis 100 mehr Deuterium enthalten ist. Dieser Faktor läßt sich aus dem Verhältnis der Fläche unter dem Reißspitzen-signal bei Masse 3 und der Fläche bei Masse 2 nach Abzug eines linearen H<sub>2</sub>-Untergrundes abschätzen.

Die Literaturwerte der Diffusionskonstante von Wasserstoff in Aluminium liegen zwischen  $10^{-10}$  cm<sup>2</sup>/s und  $10^{-7}$  cm<sup>2</sup>/s [411]. Da Wasserstoff in Defekten mit offenem Volumen (Leerstellen, Jogs, etc.) eingefangen wird, liegt es nahe, von einer niedrigen Diffusionskonstante in der Größenordnung von  $10^{-10}$  cm<sup>2</sup>/s in der plastischen Zone auszugehen. Der Sägeschnitt erfolgte quer zum Riß über die Reißspitze mit einer Schnittbreite von 500µm, was einer Diffusionszeit von 4 Stunden bei Raumtemperatur entspricht. Daraus läßt sich eine mittlere Diffusionslänge von ~30µm abschätzen [409]. Die Zeit in der Wasserstoffsäge bei -20°C spielt im Vergleich dazu keine Rolle.

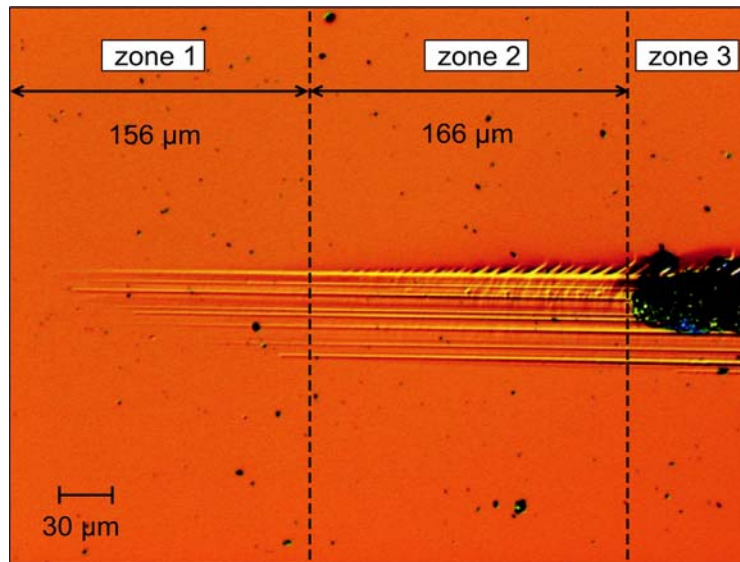
Durch diesen Versuch wird die im letzten Kapitel aus Positronenmessungen gewonnene Erkenntnis unterstützt, daß Wasserstoff unter korrosiven Bedingungen in die frische Oberfläche einer Reißspitze eindiffundieren kann. Während eine, wenn auch geringe, Konzentration von Wasserstoff bereits vor dem Versuch in der Probe vorhanden ist, kann das Deuterium nur während der Reißzeugung in die Legierung gelangt sein. Durch die Verwendung von deuterierter NaCl-Lösung wird dieser Effekt aus dem Untergrund des allgegenwärtigen leichten Wasserstoffs herauspräpariert.

## 4.6 Plastizität im "spröden" Halbleiter GaAs

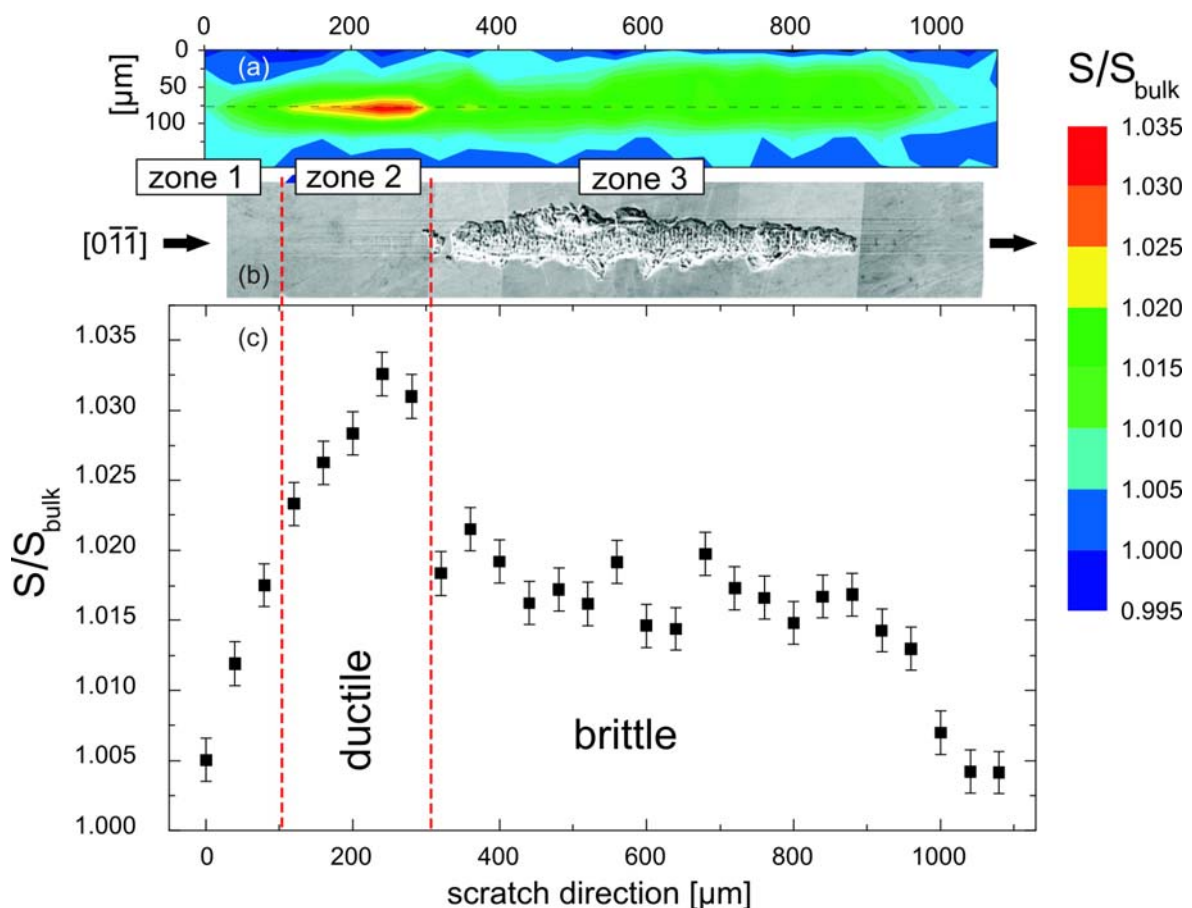
Positronen eignen sich nicht nur zur Messung der Plastizität in Metallen und Legierungen, sondern können auch bei der Untersuchung mechanischer Schädigung in Halbleitern angewandt werden. Im Gegensatz zu Metallen können Gitterfehler im Halbleiter eine lokale Ladung besitzen. Ist diese positiv, wirkt sie auf Positronen abstoßend, und der Gitterfehler ist in Positronenmessungen unsichtbar.

GaAs ist bei Raumtemperatur und Normaldruck ein äußerst sprödes Material, das außerdem sehr gut entlang der {110}-Ebenen spaltbar ist. Dieses spröde Verhalten ist den meisten Halbleitern gemeinsam und steht im Gegensatz zu Metallen und Legierungen, die bei Raumtemperatur meist duktile Eigenschaften zeigen. Unter Normaldruck verhält sich GaAs erst jenseits von 490°C duktil [412]. Unter höheren Drücken um und unter 1GPa und Temperaturen unterhalb Raumtemperatur werden jedoch ebenfalls duktile Eigenschaften gefunden [413].

Bei der Herstellung von Wafern für die Mikroelektronik aus GaAs spielen die mechanischen Eigenschaften eine große Rolle. GaAs-Einkristalle werden entweder nach dem Czochralski- oder dem Bridgeman-Verfahren gezogen [414], und dann mit einer Diamantdrahtsäge in Wafer zerteilt. Dies resultiert in einer stark geschädigten Oberfläche, die ein nachträgliches mechanisches oder chemomechanisches Polieren nötig macht [415]. Bei der Beurteilung dieser Verfahren spielt sowohl eine hohe Güte der Oberfläche, als auch ein geringer Materialverlust eine Rolle. Insbesondere darf die Oberfläche keine signifikanten Konzentrationen an Gitterdefekten aufweisen, da diese die elektronischen Eigenschaften des Halbleiters verändern. Beim zweikomponentigen GaAs existieren sechs Typen von intrinsischen Punktdefekten: Leerstellen auf den beiden Untergittern  $V_{As}$ ,  $V_{Ga}$ , die beiden Antistrukturdefekte  $As_{Ga}$  und  $Ga_{As}$  sowie Zwischengitteratome beider Atomspezies  $As_i$ ,  $Ga_i$ . Aus Abweichungen der idealen Stöchiometrie von 1:1 folgt Art und Konzentration der dominierenden Punktdefekte und damit die Lage des Fermi-Niveaus in der Bandlücke.



**Abbildung 4.36:** Lichtmikroskopische Aufnahme (Differenzkontrast) der Schleifspuren nach einem Einkorn-Ritzversuch in semiisolierendem GaAs. Das Schleifkorn bewegte sich von links nach rechts in  $[0\bar{1}\bar{1}]$ -Richtung. Zone 1: rein duktile Verformung, Zone 2: überwiegend duktile Verformung, Zone 3: spröder Materialausbruch [416].



**Abbildung 4.37:** Positronenmessung über den Kratzer und die Schleifspuren des Ein-Korn-Ritzversuches: (a) S-Parameter im Flächenscan (Falschfarbendarstellung), (b) Elektronenmikroskopische Abbildung (REM), (c) Linienscan in Ritzrichtung über die Mitte des Kratzers. Eine Schädigung ist vom Anfang der Schleifspuren (Zone 1) nachweisbar und nimmt ihr Maximum direkt vor Beginn des Materialausbruchs an (Zone 2). Über den Bereich des spröden Materialausbruchs (Zone 3) wird eine geringere Schädigung gemessen.

Zur Optimierung des Schleifvorgangs bei der Waferherstellung wurde eine Reihe von Ein-Korn-Ritzversuchen unter Variation des Ritzwinkels, der Geschwindigkeit und der Eindringtiefe durchgeführt. Als Probenmaterial wurden parallel zur (100)-Ebene orientierte Wafer aus undotiertem, semi-isolierendem GaAs verwendet. Mit der Breitseite eines dachförmig geschliffenen Diamanten von 50  $\mu\text{m}$  Breite wurden unter flachem Auftreffwinkel Kratzer von ca. 1 mm Länge und 5-15  $\mu\text{m}$  Tiefe auf dem Wafer erzeugt [416].

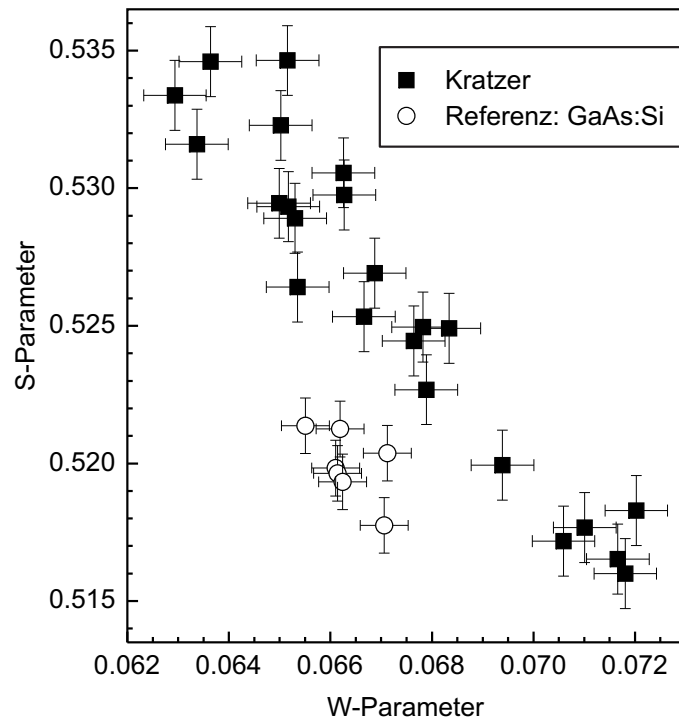
Abbildung 4.36 zeigt eine Differenzkontrastaufnahme des Anfangs eines solchen Kratzers, der mit einer Schnittgeschwindigkeit von 60 m/s in  $[0\bar{1}\bar{1}]$  Richtung ausgeführt wurde. Auf der Eintritt- und Austritts-Seite (hier nicht dargestellt) sind deutlich Schleifspuren auf der Oberfläche zu erkennen.

Bei aus reichender Eindringtiefe durchbricht das Korn die Oberfläche, wobei Material spröde aus dem Kratzer abgehoben wird [416]. Je nach Ausbildung von Mikrorissen auf der Oberfläche unterscheiden die Autoren dabei drei Verformungszonen: Zone 1: vollständig duktil – kein Auftreten von Mikrorissen. Zone 2: überwiegend duktil – Mikrorisse nur in den tieferen Bereichen des Kratzers. Zone 3: Spröder Ausbruch von Material aus der Oberfläche, die Eindringtiefe beträgt ca. 8  $\mu\text{m}$ .

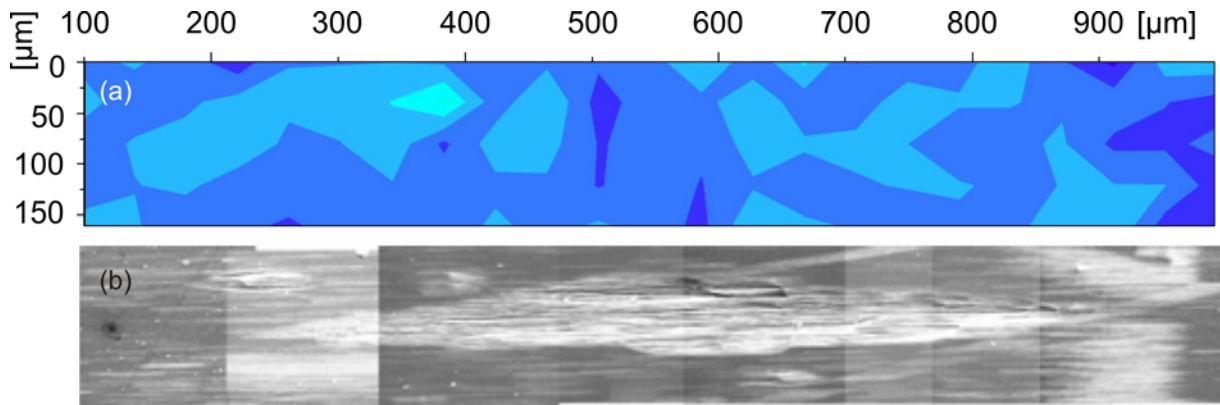
Im semi-isolierenden GaAs liegt das Fermi-Niveau in der Mitte der Bandlücke. Leerstellenartige Defekte auf dem Ga-Untergitter sollten also für Positronen sichtbar sein, ebenso wie neutrale oder negativ geladene Mehrfachleerstellen oder Leerstellen-Cluster [417].

Eine Positronenmessung mit der BPM über einen solchen Kratzer ist in Abbildung 4.37 dargestellt. Es handelt sich um den selben Kratzer wie in Abbildung 4.36. (a): S-Parameter relativ zum chemisch polierten Wafer desselben Materials über die Fläche des Kratzers ( $E = 30$  keV, Stahldurchmesser: 20  $\mu\text{m}$ , Raster 40  $\mu\text{m} \times 40 \mu\text{m}$ ). (b): Raster-Elektronenabbildung (REM) des Meßbereichs. (c): S-Parameter in der Mitte des Kratzers. In Zone 1 steigt der S-Parameter stetig an und erreicht in Zone 2 sein Maximum bei  $S/S_{bulk} = 1.030$ . Im Bereich spröden Materialabtrags (Zone 3) wird ein niedrigerer S-Parameter von  $S/S_{bulk} = 1.017$  gemessen [20, 418]. In Zone 2 liegt der S-Parameter signifikant über dem Wert der typischerweise für hohe Versetzungskonzentrationen in GaAs gefunden wird [419]. In Zone 3 wird hingegen eine vergleichsweise geringere plastische Verformung gefunden.

Im Vergleich der Daten aus den Schleifspuren (Zone 1 u. 2) mehrerer Kratzer mit Si-dotiertem unverformtem GaAs im S/W-Plot liegen die Punkte auf zwei unterschiedlichen Geraden (siehe Abbildung 4.38). Bei dem hier als Referenz verwendeten GaAs:Si liegt die Do-



tierung bei  $4 \times 10^{19}/\text{cm}^3$ , was einen vollständigen Einfang der Positronen in Ga-Leerstellen bedeutet [420]. Im Unterschied dazu, kann bei den Verformungszonen in den Ritzproben von einer durch den hydrostatischen Druck des Diamanten hervorgerufenen duktilen Verformung ausgegangen werden, die eine Vielzahl unterschiedlicher Typen von Mehrfachleerstellen und Leerstellen-Clustern erzeugt [20,391,418]. Ein guter Kandidat dafür sind ungeladene Doppel-Leerstellen [417].



**Abbildung 4.39:** Derselbe Kratzer wie in Abbildung 4.37 nach Entfernen einer Schicht von 10 µm Dicke durch Ionenstrahlätzen. (a) S-Parameter: Es gilt die gleiche Falschfarbenskala wie in Abbildung 4.37, der gemessene S-Parameter ist statistisch mit dem Bulk-Wert verträglich, so daß keine signifikante Schädigung mit Positronen mehr nachweisbar ist. (b) REM-Bild: Trotz einer “Verschmierung“ der Oberfläche ist die Vertiefung des Kratzers erhalten geblieben.

Zur Untersuchung der Tiefe der Schädigung wurden ca. 15 µm Material von der Oberfläche durch Ar-Ionenstrahlätzen (Sputtern bei 4 keV, 1 mA, 5° Einstrahlwinkel) abgetragen. Um den Kratzer nicht zu planen, sondern unabhängig von der Proben-topographie gleichviel abzutragen, wurde die Probe während des Sputterns nicht gedreht [391]. Abbildung 4.39 zeigt eine Positronenmessung (a) und ein REM-Bild (b) desselben Kratzers nach dem Sputtern.

Der Vertiefung des Kratzers ist als Oberflächenstruktur erhalten geblieben, es sind jedoch keine mit Positronen nachweisbaren Defekte in einer Tiefe von 15 µm unter der ursprünglichen Oberfläche mehr vorhanden. Darüber hinaus zeigt die Messung, daß das Sputtern selbst keine Defekte in der oberflächennahen Schicht erzeugt, die mit Positronen detektierbar sind. Daraus läßt sich schließen, daß bei diesem Ein-Korn-Ritzversuch keine Defekte jenseits einer Tiefe von 15 µm erzeugt wurden.



# Kapitel 5

## Vorhersage des Ermüdungsbruchs

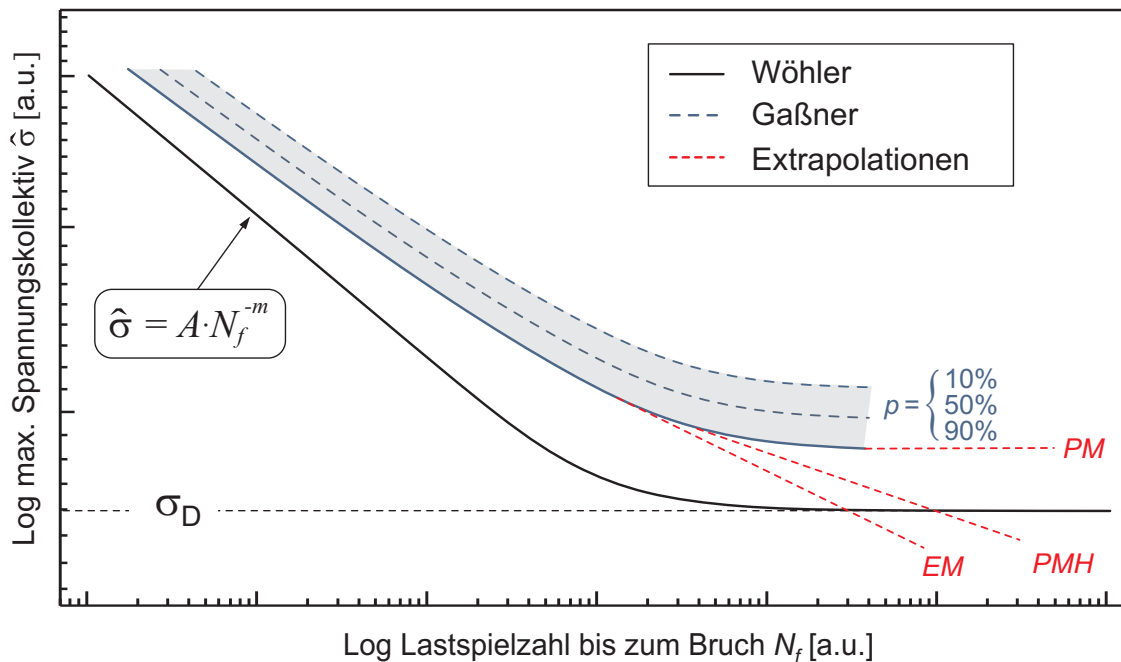
Aus der alltäglichen Erfahrung ist bekannt, daß die Lebensdauer mechanischer Bauteile unter wiederholter Belastung begrenzt ist. Auch wenn die Belastung signifikant unterhalb der materialspezifischen Fließgrenze bleibt, kommt es zu einer Ermüdung des Bauteils und damit zu einer Degradation seiner mechanischen Eigenschaften bis hin zum Materialversagen. Ein Unterschätzen des Risikos der Materialermüdung führt in regelmäßigen Abständen zu katastrophalen Unfällen z.B. in der Luftfahrt und beim Schienenverkehr, die breit in den Medien diskutiert werden.

Vor über 150 Jahren wurden die ersten systematischen Untersuchungen zur Materialermüdung von A. Wöhler an Eisenbahnachsen [421] durchgeführt. Aus einer Serie von destruktiven Tests an identischen Proben wird die Anzahl der Lastwechsel bis zum Bruch  $N_f$  in Abhängigkeit von der beaufschlagten Last bestimmt und in ein doppeltlogarithmisches Diagramm eingetragen (schwarze durchgezogene Linie in Abbildung 5.1). Beim Wöhler-Versuch kommen verschiedene Versuchsaufbauten zum Einsatz, wie z.B. der Umlaufbiegeversuch oder der Zug-Druck-Versuch. Allen Aufbauten gemeinsam ist, daß die Versuche unter Spannungskontrolle gefahren werden. Das bedeutet, daß die Spannungsamplitude als unabhängiger Parameter vorgegeben wird. Die Gesamtheit der beaufschlagten Spannungsamplituden eines Versuchs wird als Spannungskollektiv  $\hat{\sigma}$  bezeichnet. Im Wöhler-Versuch wird ein gleichförmiges Kollektiv mit konstanter Amplitude gewählt ( $\hat{\sigma}=\sigma$ ). Der zeitliche Verlauf der Spannung ist je nach Aufbau des Versuchs sinus-, dreieck- oder rechteckförmig. Für mittlere und hohe Lastwechselzahlen wird die Wöhler-Kurve in zwei Bereiche unterteilt: einen Bereich in dem sie durch ein Exponentialgesetz, der Basquin-Beziehung [422], angenähert werden kann, und den Bereich der Dauerschwingfestigkeit bei kleinen Lasten, in dem die Proben den Versuch auch bei höchsten Lastwechselzahlen überleben.

Der Verlauf einer Wöhler-Kurve sowie der Wert von  $N_f$  hängen außer von der Last von vielen anderen Faktoren ab: So beeinflußt die Materialvorgeschichte (Vorverformung, Wärmebehandlung, Auslagerungszeiten) und die Oberflächenbeschaffenheit einer Probe die Kurve erheblich. Materialinhomogenitäten wie z.B. Verunreinigungen, Einschlüsse oder Lunker ebenso wie Oberflächenfehler und Kerben verkürzen die Lebensdauer eines Bauteils signifikant [423]. Um vergleichbare Messungen unabhängig von diesen Einflüssen zu erhalten, ist es nötig, die Proben einer reproduzierbaren Vorbehandlung zu unterziehen.

Im realen Einsatz eines Bauteils ist das Spannungskollektiv keineswegs gleichförmig und im allgemeinen Fall nicht einmal einachsige. Eine einfache Richtungsabhängigkeit kann allerdings durch einen wohldurchdachten Versuchsaufbau realisiert werden: z.B.: beim einachsigen Zug-Druck-Versuch unter Vorspannung oder beim Umlaufbiegeversuch. Ein realistisches Span-

nungskollektiv enthält eine Vielzahl von Amplituden mit unterschiedlicher Häufigkeit und wurde zuerst von Gaßner [424,425] eingeführt. Bei diesem Ansatz wird das gemessene kontinuierliche Spannungskollektiv in mehrere Lastbereiche unterteilt und diese nach der Häufigkeit ihres Vorkommens gewichtet. Im Laborversuch werden diese Spannungsamplituden dann nacheinander abgearbeitet. Der von Gaßner eingeführte Begriff der linearen Schadensakkumulation sagt aus, daß sich die Schädigung eines Bauteils unabhängig von der Reihenfolge der Belastung aufaddiert – eine Annahme, die nicht in allen Fällen zutrifft. Die Gaßner-Linie (blaue Linien in Abbildung 5.1, mit den Überlebenswahrscheinlichkeiten von 10% – 90%) wird durch Auftragung des Maximums des Spannungskollektiv gegen  $N_f$  konstruiert.



**Abbildung 5.1:** Übersicht über Methoden der Schwingfestigkeitsprüfung: Doppeltlogarithmische Darstellung des Maximums des Spannungskollektivs  $\hat{\sigma}$  gegen die Lastwechselzahl bis zum Bruch  $N_f$ . Schwarz: Wöhler-Kurve. Blau: Gaßner-Kurve mit Überlebenswahrscheinlichkeiten  $p$  von 10% - 90%.  $\sigma_D$  bezeichnet die Dauerfestigkeit. Die funktionale Abhängigkeit zwischen  $\hat{\sigma}$  und  $N_f$  wird als Basquin-Beziehung bezeichnet. Rot: Abschätzung der Restlebensdauer: Elementare Miner-Regel (EM), Palmgren-Miner-Regel (PM), modifizierte Palmgren-Miner-Regel nach Haibach (PMH).

Aufgrund dieser Auftragung liegt die Gaßner-Kurve im Diagramm immer oberhalb der Wöhler-Kurve. Bei der Extrapolation der Gaßner-Kurve zu höchsten Lastwechselzahlen ist die Bewertung der Spannungsamplituden, die unterhalb der Dauerfestigkeit liegen, von Bedeutung. Die ursprünglich von Miner eingeführte Extrapolationsregel [426] (Elementar-Miner-Regel: rote gestrichelte Linie in Abbildung 5.1 – EM) führt die Steigung der Gaßner-Kurve fort, und resultiert in unrealistisch ungünstigen Vorhersagen. Die andere Seite des Spektrums wird von der Palmgren-Miner-Regel [427] abgedeckt (rote gestrichelte Linie in Abbildung 5.1 – PM), die keine Schädigung durch kleine Amplituden vorsieht, und damit zu optimistische Vorhersagen macht. Wirklichkeitsnähere Abschätzungen bieten z.B. die Modifikationen von Haibach [428] und Liu-Zenner [429] (rote gestrichelte Linie in Abbildung 5.1 – PMH). Bis heute werden die statistischen Methoden zur Vorhersage des Ermüdungsbruchs intensiv diskutiert (siehe z.B. [430]) und es existiert bisher noch keine universelle und zuverlässige Methode, um aus den Frühstadien der Ermüdung auf die Lastwechselzahl zu schließen, die zum Bruch führen wird.



## 5.1 Vorhersage des Ermüdungsbruchs aus der Fehlstellendichte

Während der Ermüdung findet auf mikroskopischer Ebene eine Multiplikation von Versetzungen statt, auch bei Spannungen weit unterhalb der Fließgrenze des entsprechenden Metalls [431]. Wenn es nicht bereits während der frühen Phase der Ermüdung auf Grund von makroskopischen Materialfehlern wie Lunkern, Kerben oder Einschlüssen zum Entstehen eines Risses kommt, bilden sich während des größten Teils der Lebensdauer eines ermüdeten Bauteils keine makroskopischen Risse. Vielmehr kommt es zu einer Akkumulation mikroskopischer Gitterfehler durch eine Vielzahl von Prozessen, wobei insbesondere die Versetzungsdichte während der Ermüdung ansteigt. Über Versetzungsschneiden, Jog-Drugging und die Interaktion von Versetzungen mit Ausscheidungen und anderen Gitterfehlern werden dabei laufend leerstellenartige Defekte produziert, die mit Positronen nachweisbar sind (siehe Kapitel 4.1).

Die Sensitivität von Positronen für die Materialermüdung wurde erstmals von Grosskreutz und Millet an Kupfer- und Aluminium-Einkristallen mittels Positronen-Lebensdauerermessung nachgewiesen [7]. Im letzten Jahrzehnt wurden verschiedene Untersuchungen zur Materialermüdung mit Positronen durchgeführt, hauptsächlich an austenitischen Stählen [21,132,432,433,434]. Übereinstimmend wird dabei ein monotoner Anstieg sowohl des S-Parameters als auch der mittleren Positronen-Lebensdauer  $\tau_{av}$  mit der Anzahl der Lastzyklen festgestellt.  $\tau_{av}$  und S-Parameter hängen dabei auf sehr ähnliche Weise von der Lastzyklenzahl ab [432], wobei ein signifikanter Anstieg der Defektdichte bereits in den frühesten Stadien der Ermüdung, weit unter einem Prozent von  $N_f$ , meßbar ist.

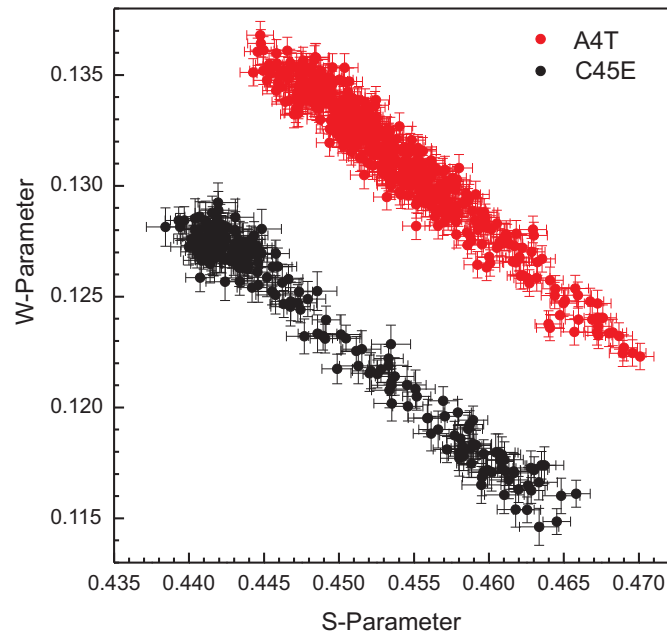
In diesem Zusammenhang wird das Versagen bei dem Lastwechsel  $N_f$  definiert, an dem ein Rißkeim entsteht. Obwohl diese Definition von der in der Bruchmechanik üblichen abweicht, bei der das Materialversagen dann eintritt, wenn der Riß die Probe durchlaufen hat, ist sie für viele Geometrien realistisch, da die Zahl der Lastwechsel bis zur Rißentstehung groß gegenüber der von der Rißentstehung bis zum vollständigen Bruch ist.

Es wird davon ausgegangen, daß die Entstehung eines Rißkeims mit der lokalen Überschreitung einer kritischen Defektdichte einhergeht. Diese korrespondiert mit einem kritischen S-Parameter  $S_{crit}$  und ist damit der Messung zugänglich. Hierbei wird nicht nach der Art der Gitterfehler differenziert, da die Doppler-Spektroskopie an verformten Metallen nicht zwischen den verschiedenen Komponenten des Defektspektrums unterscheidet, sondern nur sensitiv auf Änderungen deren Konzentration ist.

Eine Auftragung des W-Parameters gegen den S-Parameter zeigt, daß sich die Zusammensetzung der verschiedenen Arten von Positronenfallen während der Ermüdung auch bei mehrphasigen Legierungen nicht wesentlich ändert. Abbildung 5.2 zeigt einen S/W-Plot von Meßpunkten aus dem Bereich der plastischen Zone vor einem Ermüdungsriß in C45E (schwarz) und dem austenitischen Stahl A4T (rot). Die starke Streuung der Werte liegt an der geringen Anzahl der Annihilationsereignisse in den Spektren (ca.  $2 \times 10^5$ ). Der Dynamikbereich der Meßreihen reicht vom ausgeheilten Zustand in großer Entfernung vom Riß bis zum maximal verformten direkt vor der Rißspitze. Für beide Stähle liegen die Meßwerte auf einer Geraden, was belegt, daß die Positronen über den ganzen Dynamikbereich dieselbe Zusammensetzung von Positronenfallen sehen. Dies, und die Tatsache, daß sich der S-Parameter auch in der Endphase der Ermüdung weiter erhöht, ermöglichen die Verwendung des S-Parameters als Maß für den Ermüdungszustand, ohne daß eine genaue Kenntnis der sehr

komplexen Abläufe der Versetzungsmultiplikation und der Versetzungsstrukturbildung nötig wäre.

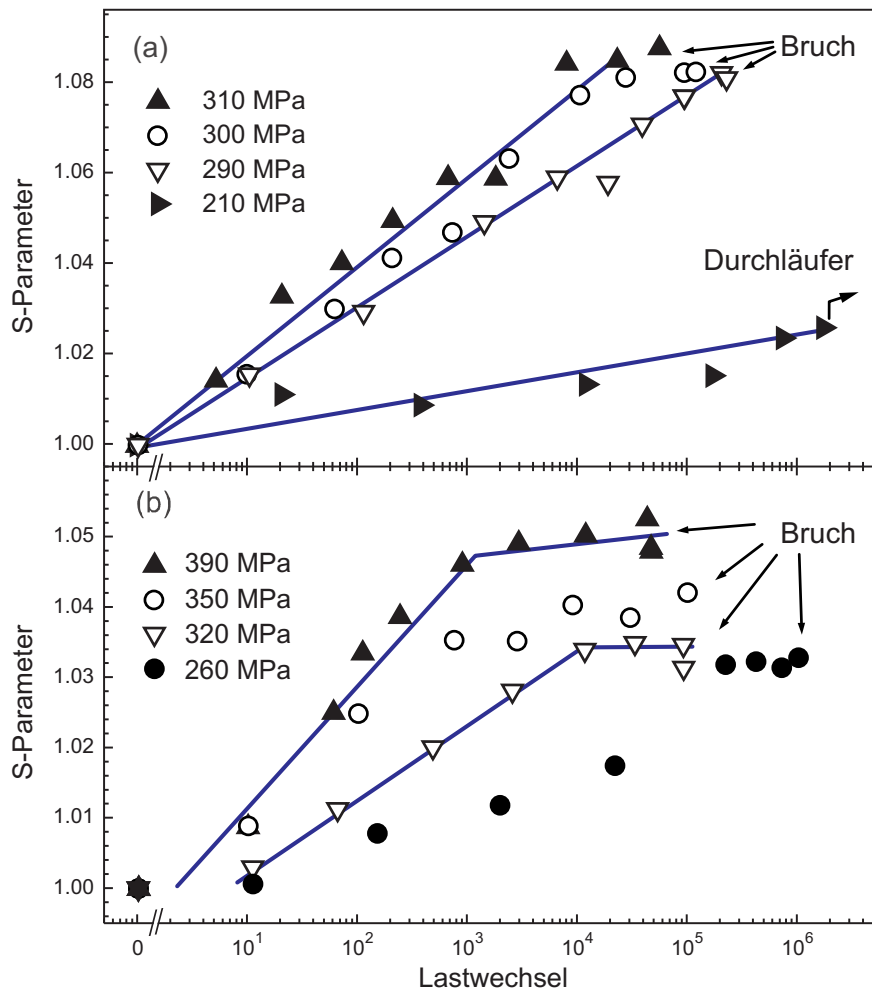
Ist  $S_{\text{crit}}$  und der Verlauf des S-Parameters mit der Lastwechselzahl  $N$  einmal für eine Legierung und einen definierten Ausgangszustand bekannt, kann  $N_f$  mittels des S-Parameters aus den Anfangsstadien der Ermüdung abgeschätzt werden. Die Positronenvernichtung bietet so einen alternativen Zugang zur Vorhersage des Ermüdungsbruchs, der auch von industriellem Interesse ist, da er den Zeitaufwand einer solchen Untersuchung erheblich verkürzt.



**Abbildung 5.2:** S/W-Plot von Daten aus der plastischen Zone vor einem Ermüdungsriß, gemessen mit der BPM. Schwarz: C45E, rot: der austenitische Stahl A4T. Zum Vergleich sind absolute S- und W-Parameter angegeben. Der Dynamikbereich reicht vom ausgeheilten Zustand bis zum maximal verformten direkt vor der Rißspitze. Für beide Stähle liegen die Werte auf einer Geraden.

Abbildung 5.3 zeigt den S-Parameter in Abhängigkeit vom Logarithmus der Lastwechselzahl für den austenitischen Stahl X6CrNiTi18-10 (a) und C45E (b) für verschiedene Lastniveaus. Die Proben wurden mit identischer Geometrie im Umlaufbiegeversuch ermüdet (siehe auch Abbildung 4.18). Die angegebenen Spannungen beziehen sich auf die oberflächennahe Schicht in der Auskehlung der Proben [21]. Beide Stähle wurden vor dem Versuch mittels Wärmebehandlung im UHV in einen reproduzierbaren Ausgangszustand gebracht. Die Versuche wurden bei verschiedenen Lastwechselzahlen unterbrochen und Doppler-Spektren in der Mitte der Auskehlung mit einer  $^{22}\text{Na}$ -Quelle von 2 mm Durchmesser aufgenommen (ex-situ) [21].

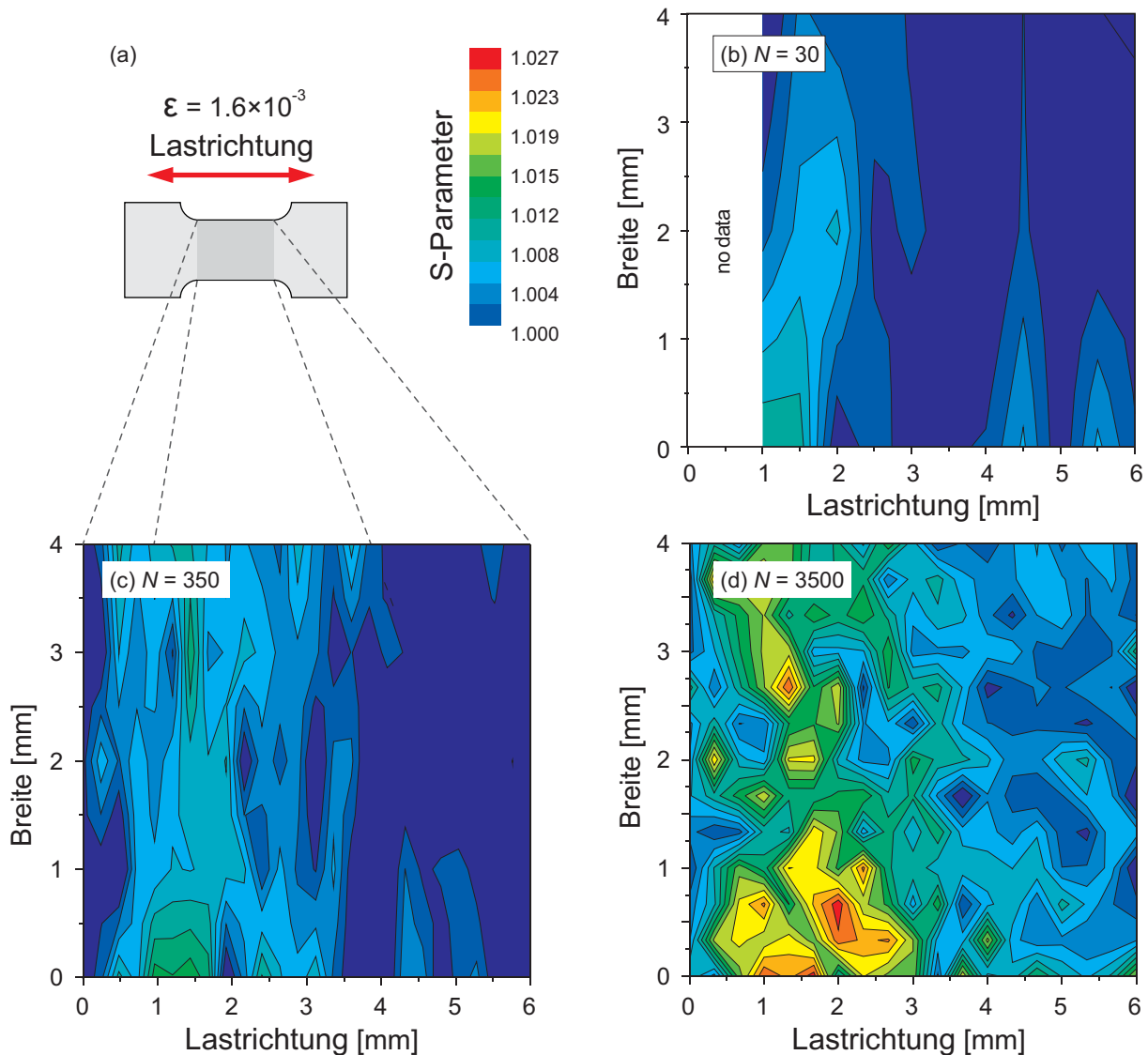
Für alle Lastniveaus zeigt sich am Anfang der Ermüdung ein linearer Anstieg des S-Parameters mit dem Logarithmus der Lastwechselzahl, wobei die Steigung der Geraden vom Lastniveau abhängt. Dieser lineare Zusammenhang wird auch für den bei geringer Last ermüdeten Austeniten gefunden (Durchläufer in Abbildung 5.3 (a)). Vor dem Eintritt des Ermüdungsbruchs erreicht der S-Parameter in einigen Fällen einen Maximalwert, der im Falle des Austeniten bei  $S \approx 1.08$  liegt. Dieser Wert stimmt mit dem überein, der im maximal ermüdeten Bereich direkt vor einer Rißspitze in derselben Legierung gefunden wird (siehe Abbildung 4.17). In einem solchen einfachen Fall läßt sich der Ermüdungsbruch aus der Kenntnis des Maximalwertes und der Steigung im  $S(\log N)$ -Diagramm vorhersagen.



**Abbildung 5.3:** S-Parameter in verschiedenen Stadien der Ermüdung in einem Umlaufbiede-Versuch an mehreren Proben aus (a) dem austenitischen Stahl X6CrNiTi18-10 und (b) dem ferritischen Stahl C45E unter verschiedenen Lastniveaus. Die Spannungen beziehen sich auf die Oberfläche in der Probenauskehlung. Die Werte sind relativ zum ausgeheilten Zustand des jeweiligen Stahls angegeben. In beiden Fällen sind die statistischen Fehler kleiner als die Symbole. (a): Beim Austeniten besteht eine klare lineare Beziehung zwischen dem S-Parameter und dem Logarithmus der Lastwechselzahl  $\log N$ . (b): Für C45E hängt der S-Parameter nur abschnittsweise linear von  $\log N$  ab. Scheinbar findet der Bruch bei unterschiedlichen S-Parametern statt.

Im Falle von C45E fällt dieser Maximalwert nicht nur uneinheitlich aus, sondern auch die Beziehung  $S \sim \log N$  ist nicht so eindeutig wie beim Austeniten. Dieses Ergebnis ist jedoch hier auf eine Meßungenauigkeit zurückzuführen: Die plastische Zone war bei dieser Messung wesentlich kleiner als die Positronenquelle, so daß ein unbestimmter Anteil von Positronen im ungeschädigten Bereich annihiliert.

Ein wesentlicher Unterschied zwischen den beiden Stählen bezüglich der Ermüdung liegt in ihrer Duktilität. Der Karbonstahl C45E ist bei Raumtemperatur spröder als der Austenit X6CrNiTi18-10. Dies äußert sich unter vergleichbaren Ermüdungsbedingungen in der Ausbildung einer signifikant kleineren plastischen Zone (siehe zum Vergleich auch Abbildung 4.17 und Abbildung 4.30). Dadurch ist die Verfestigung beim C45E auf einen Bereich lokalisiert, der deutlich kleiner ist, als die zur Messung verwendete Positronenquelle. Beim Austeniten tritt dieses Phänomen ebenfalls auf, ist jedoch aufgrund der größeren plastischen Zone lange nicht so ausgeprägt.

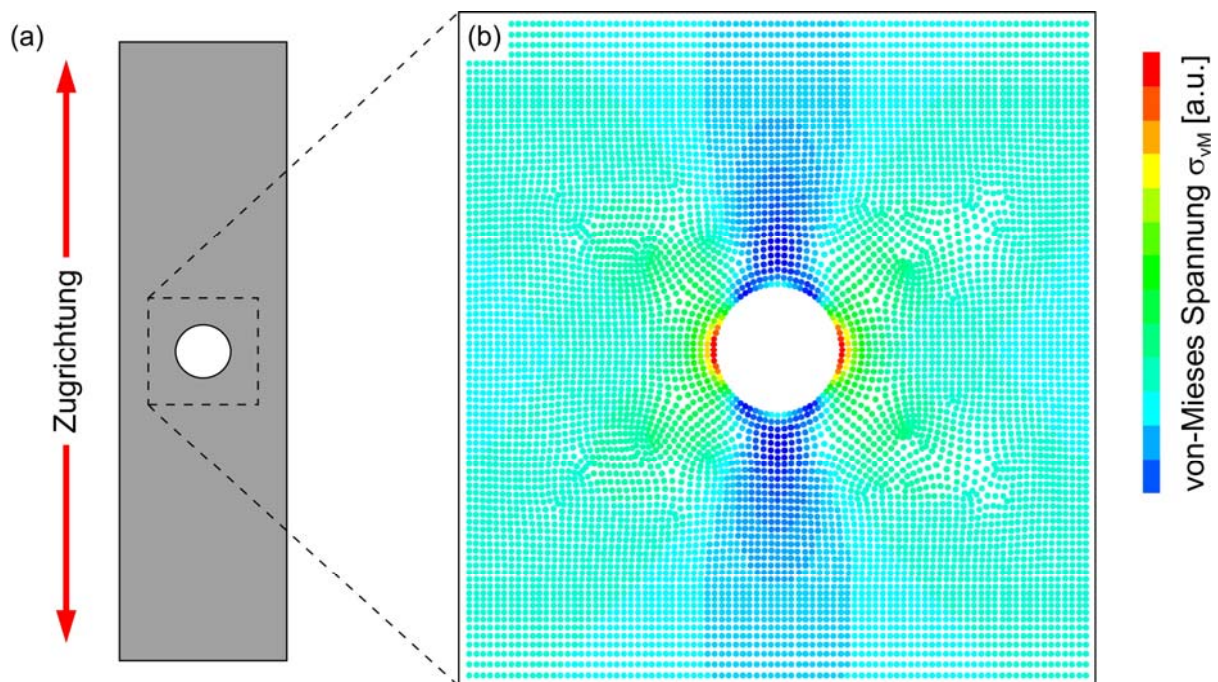


**Abbildung 5.4:** Ausbildung von lateralen Strukturen in der Fehlstellendichte bei einem Ermüdungsversuch an C45E mit annähernd homogenem Spannungsfeld unterhalb der Fließgrenze. (a): Probengeometrie. (b): Bereits nach 30 Lastwechseln bildet sich das Frühstadium eines verfestigten Bereichs aus. (c), (d): Dieser wächst im weiteren Verlauf der Ermüdung an und auch der Maximalwert der Verteilung steigt.

Die Lokalisierung der Verfestigung läßt sich gut anhand eines Ermüdungsversuchs unter dem Einfluß eines nahezu homogenen Spannungsfeldes verdeutlichen. Zu diesem Zweck wurde ein Ermüdungsversuch an einer Flachzugprobe aus C45E mit einem ausgekehlten Bereich von  $5 \times 6 \text{ mm}^2$  und einer Dicke von 1.6 mm durchgeführt (siehe Abbildung 5.4(a)). Der Versuch fand unter Dehnungskontrolle bei  $\varepsilon = 1.52 \times 10^{-3}$  statt. Zu Beginn des Versuchs entsprach dies einer Spannung von 330 MPa. Der Ermüdungsversuch wurde mehrfach unterbrochen und der ausgekehlte Bereich mit der BPM vermessen [270]. Bereits nach 30 Lastwechseln deutet sich ein lokal verfestigter Bereich durch einen Anstieg des S-Parameters an (Abbildung 5.4(b)). Im größten Teil der restlichen Meßfläche sind keine Effekte der Ermüdung zu erkennen. Auch wenn der genaue Startpunkt der Verfestigung von zufälligen Faktoren abhängt, wie z.B. mikroskopische Oberflächenschädigung oder Einschlüssen, bildet dieser Bereich den Ausgangspunkt für die weitere Entwicklung der Verfestigung. Abbildung 5.4(c) und (d) zeigen weitere Schnappschüsse der Verteilung der Verfestigung an derselben Probe nach 350 bzw. 3500 Lastwechseln. Ausgehend von der Vorschädigung brei-

tet sich der verfestigte Bereich weiter in die Probe aus. Der maximale Wert innerhalb dieses Bereichs steigt mit  $N$  an. Bei  $N = 3500$  wird eine Verfestigung bereits im gesamten Meßbereich nachgewiesen, wobei die Meßwerte eine inhomogene Verteilung annehmen.

Diese Messungen belegen eindrucksvoll, daß bei einer Legierung, die eine inhomogene Verfestigung zeigt, keine vernünftigen Ergebnisse erhalten werden können, wenn mit einer Positionenquelle gemessen wird, die über diese Verteilung integriert. Damit wird auch klar, warum der Bruch beim C45E in Abbildung 5.3 (b) bei unterschiedlichen maximalen S-Parametern eintritt.

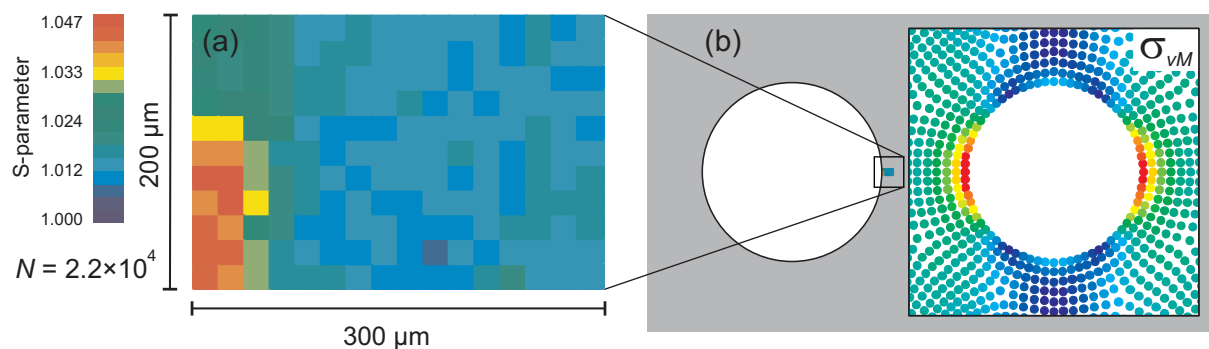


**Abbildung 5.5:** (a): Flachzugprobe (100 mm × 26 mm, Dicke: 1.2 mm) mit zentraler Bohrung ( $\varnothing = 5.4$  mm). (b): Finite-Elemente-Simulation (FEM) der von-Mises Spannung um die zentrale Bohrung im simulierten Zugversuch. Die Spannung konzentriert sich auf die seitlichen Ränder der Bohrung im sog. maximal belasteten Volumen.

Für eine verlässliche Vorhersage des Ermüdungsbruchs an einer spröden Legierung ist also eine andere Vorgehensweise nötig, bei der die Lokalisierung der Verfestigung auf eine definierte Weise festgelegt wird. Dies wird durch eine Flachzugprobe mit zentraler Bohrung erreicht (industrielle Standard-Geometrie). Wird eine solche Probe mit Zug oder Druck belastet, konzentriert sich die Spannung seitlich an den Rändern der Bohrung (siehe Abbildung 5.5). Die räumliche Verteilung der Spannung in einer Probe unter Belastung kann heutzutage sehr gut mit der Finite-Elemente-Methode (FEM) simuliert werden. Zur Darstellung wird hier die von-Mises Spannung  $\sigma_{vM}$  verwendet, ein skalares Maß (root mean square) auf dem Spannungstensor.  $\sigma_{vM}$  ist dafür gut geeignet, da erstens die lokale Verfestigung einer homogenen Legierung unabhängig von der Spannungsrichtung ist, und zweitens an Verformungsversuchen mit Indentern gezeigt werden konnte, daß  $\sigma_{vM}$  mit dem S-Parameter korreliert [435]. Abbildung 5.5 (b) zeigt das Ergebnis der FEM-Simulation eines einachsigen Zugversuchs im Bereich um die zentrale Bohrung der Flachzugprobe. Die Kraft wurde dabei im Hooke'schen Bereich gewählt. Die Spannung konzentriert sich an den seitlichen Rändern der Bohrung in einem vergleichsweise eng begrenzten Bereich, dem sogenannten maximal belasteten Volumen [436,437].

Eine orts aufgelöste Messung mit Positronen im maximal belasteten Volumen zu verschiedenen Stadien der Ermüdung sollte Aufschluß über den Verlauf der Verfestigung mit der Lastwechselzahl geben. Zu diesem Zweck wurde eine Serie von identischen Proben mit einer servohydraulischen Prüfmaschine unter Spannungskontrolle ermüdet, wobei die Spannung einen sinusförmigen Verlauf mit einer maximalen Amplitude von 160 MPa hatte. Diese Bedingungen entsprechen denen eines Wöhler-Versuchs. Zur Bestimmung des S-Parameters im maximal belasteten Volumen wurden am Rand der Bohrung Flächenmessungen mit der BPM gemacht.

Diesen Messungen liegt die Annahme zugrunde, daß die Fehlstellenverteilung in der oberflächennahen Schicht repräsentativ für die Schädigung des Volumens ist. Abbildung 5.6 zeigt beispielhaft eine Messung nach  $N = 2.2 \times 10^4$  Lastwechseln. Der Meßbereich in Abbildung 5.6 (a) befindet sich direkt am Rand des Loches, wobei die untere linke Ecke genau in der Mitte des Loches den Rand berührt. Die gemessene Verfestigung konzentriert sich auf einen noch geringeren Bereich, als durch die Spannungsverteilung aus der FEM-Rechnung vermutet wurde [436].



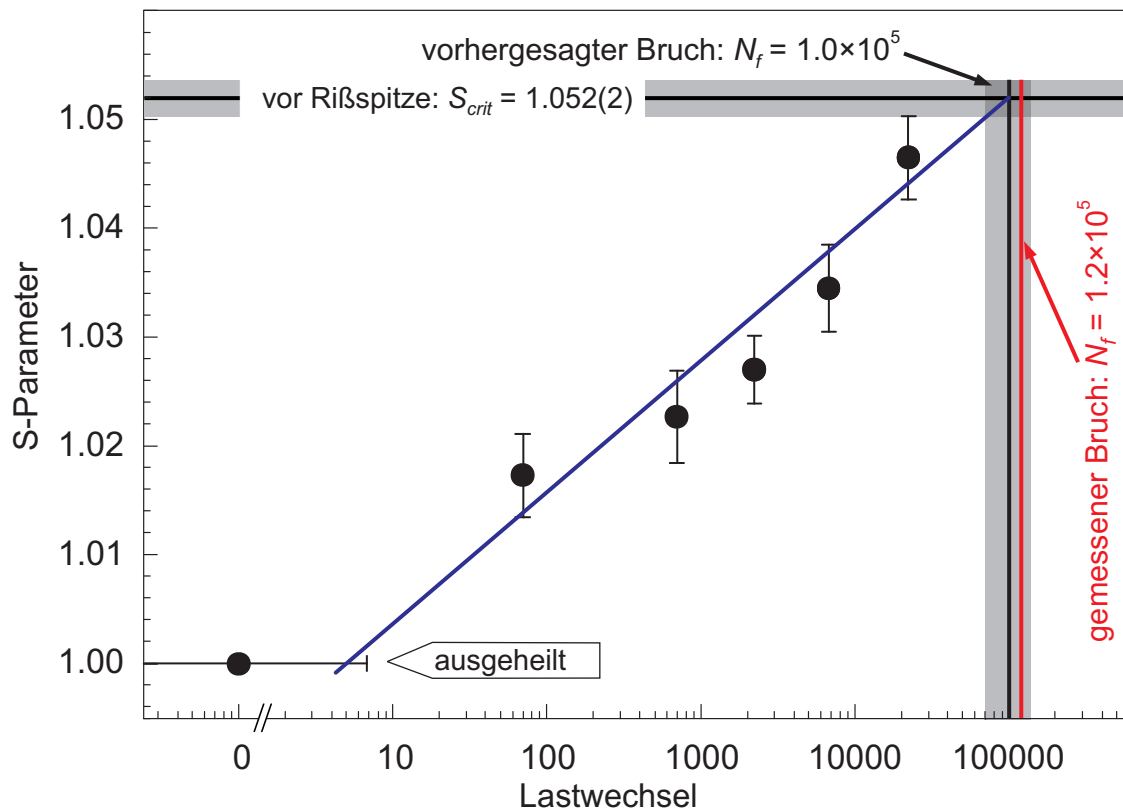
**Abbildung 5.6:** Links: Messung der Verfestigung am Rand der Bohrung mit der BPM. Auf der rechten Seite sind die Größenverhältnisse angedeutet und ein Ausschnitt aus der FEM gezeigt. Der Meßbereich der Positronen liegt in einem einzigen Stützpunkt der FEM.

Aus einer solchen Messung wird nun der S-Parameter im maximal belasteten Volumen entnommen und halblogarithmisch gegen  $N$  aufgetragen. Grundsätzlich ist zur Bestimmung des Maximalwertes kein zweidimensionaler Scan nötig. Ein Linienscan entlang der Symmetrieachse quer zur Zug- bzw. Druck-Richtung ist völlig ausreichend. Die Änderung  $\Delta S$  des S-Parameters verläuft dann nach [438] umgekehrt proportional zur Wurzel aus dem Abstand zum Rand der Bohrung, woraus der Maximalwert am Rand durch Anfitten mit geringen Meßaufwand bestimmt werden kann [437].

Abbildung 5.7 zeigt die Ergebnisse dieser Meßreihe in halblogarithmischer Auftragung gegen die Zyklenzahl. Die Idee zur Vorhersage des Ermüdungsbruchs aus diesen Daten basiert auf zwei Annahmen:

- 1.) Es existiert ein einfacher und bekannter Zusammenhang zwischen S-Parameter und dem Logarithmus der Lastwechselzahl  $S(\log N)$ , der eine Extrapolation zu höherem  $N$  ermöglicht.
- 2.) Ein Rißkeim entsteht dann, wenn lokal eine kritische Fehlstellendichte erreicht wird, die einem kritischen S-Parameter  $S_{crit}$  entspricht.

Im Falle der hier untersuchten Stähle, aber auch bei Al-Legierungen (siehe Kapitel 5.1.1), sind die Daten mit einer linearen Abhängigkeit  $S(\log N)$  verträglich.  $S_{crit}$  ist experimentell zugänglich und kann in der plastischen Zone direkt vor der Spitze eines Ermüdungsrisse gemessen werden.



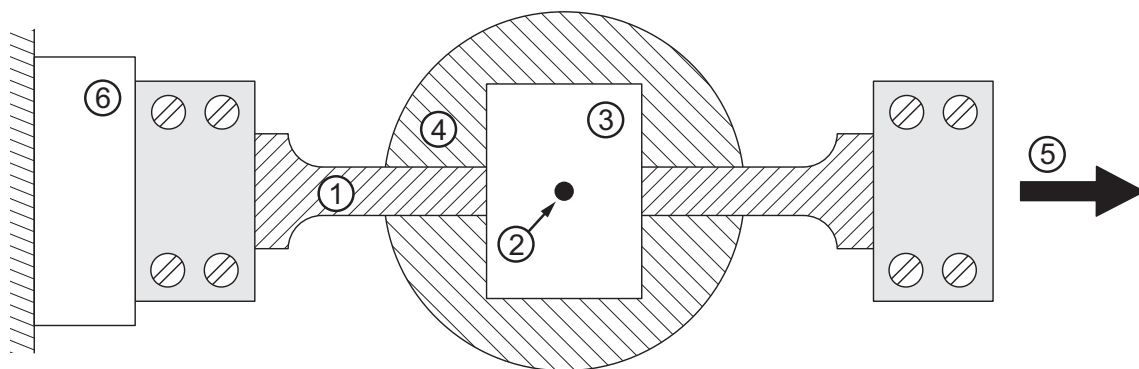
**Abbildung 5.7:** Vorhersagediagramm: Auftragung des S-Parameters aus dem maximal belasteten Volumen gegen den Logarithmus der Lastwechselzahl. Aus den Meßpunkten wird der Verlauf des S-Parameters mittels linearer Regression extrapoliert (blaue Gerade).  $N_f$  wird für den Schnittpunkt zwischen der extrapolierten Gerade und  $S_{crit}$  vorausgesagt (schwarze Linie). Die grau hinterlegten Bereiche beschreiben die Meßunsicherheit.

Bei den hier vorgestellten Daten wurde  $S(\log N)$  mittels linearer Regression extrapoliert (blaue Linie in Abbildung 5.7).  $N_f$  wird am Schnittpunkt der Gerade mit  $S_{crit}$  vorausgesagt (schwarze senkrechte Linie in Abbildung 5.7). Die grau unterlegten Bereiche in der Abbildung stellen die Meßunsicherheit dar. Wie die spätere Messung von  $N_f$  zeigt (rote Linie) stimmt der gemessene Wert sehr gut mit der Vorhersage überein. Trotz der einfachen und rein empirischen Annahme eines linearen Verlaufs von  $S(\log N)$  ist eine Vorhersage des Ermüdungsbruchs und damit eine Abschätzung der verbleibenden Restlebensdauer eines Bauteils mit Hilfe einiger weniger Meßpunkte möglich [439,440]. Dieser erste Versuch zeigt auch, daß eine Messung des S-Parameters im Frühstadium der Ermüdung unterhalb eines Prozents von  $N_f$  zur Bestimmung des Materialversagens ausreichen sollte.

### 5.1.1 Schadensvorhersage: Al-Legierungen

Das hier beschriebene Verfahren zur Vorhersage des Ermüdungsbruchs bzw. zur Abschätzung der Restlebensdauer eines Bauteils ist nicht allein auf Stähle beschränkt, sondern läßt sich auch auf Aluminiumlegierungen anwenden. Um dies zu belegen wurden Zugversuche an drei gängigen technischen Al-Legierungen (Al-Cu-Mg: AA2024, Al-Mg-Si: AA6013 und AA6082) durchgeführt und an einer ausgewählten Legierung (AA6082) ein Vorhersagediagramm erstellt. Die Zugversuche dienen dabei zum Nachweis des Dynamikbereichs der Positionen über den gesamten plastischen Bereich.

Vor den Zug- bzw. Wechselverformungsversuchen wurden alle drei Legierungen nach Lösungsglühen und Abschrecken durch Auslagern in einen reproduzierbaren Ausgangszustand gebracht (AA2024: Zustand T4 nach 4d bei RT; AA6013 u. AA6082: Zustand T6 nach 4h bei 190°C). Die Zugversuche wurden an Flachzugproben mit einer geringen Dehnrates von  $\dot{\epsilon} = 2 \times 10^{-6}/s$  an einer eigens zu diesem Zweck konstruierten Zugprüfmaschine durchgeführt (siehe Abbildung 5.8), die die gleichzeitige Messung des S-Parameters während der Aufnahme einer Spannungs-Dehnungs-Kurve ermöglicht (in-situ Messung) [441]. Ein Ende der Zugprobe wird über eine Kraftmeßdose fest mit einem massiven Stahlrahmen verbunden, während das Andere dazu beweglich eingespannt wird. Die Zugkraft wird mittels eines Motors mit 1 UpM und einer zweistufigen Untersetzung auf die Probe ausgeübt. Für die Dopplermessung wird eine  $^{68}\text{Ge}$ -Quelle mit 3  $\mu\text{Ci}$  und 2 mm Durchmesser verwendet. Dank der geringen Dehnrates ist es möglich über, 30 min ein Dopplerspektrum aufzunehmen, da die Dehnung in diesem Zeitraum nur  $3.6 \times 10^{-3}$  beträgt.



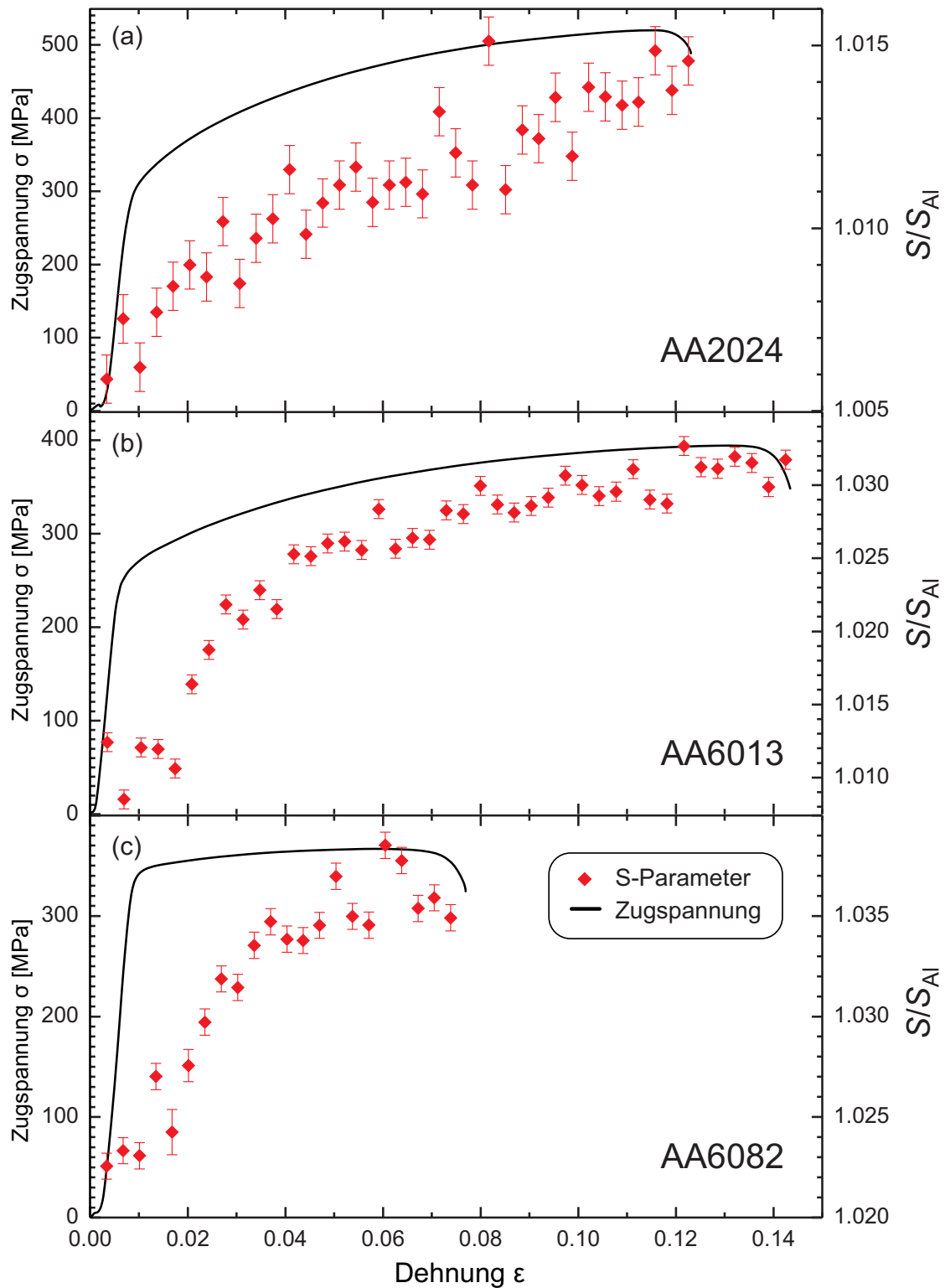
**Abbildung 5.8:** Skizze des Aufbaus zur in-situ Messung von Doppler Spektren während eines Zugversuchs in Aufsicht. (1) Probe, (2)  $^{68}\text{Ge}$ -Quelle auf 3  $\mu\text{m}$  Al-Folie (3) über der Probe, (4) Ge-Detektor unterhalb der Probe, (5) Zugseite, über Schneckentrieb und Untersetzung mit Motor verbunden, (6) Kraftmeßdose, verbunden mit starrem Rahmen.

Während des Zugversuchs wird die Kraft an der Kraftmeßdose kontinuierlich aufgezeichnet, aus der die technische Spannung mit dem Anfangsquerschnitt der Proben berechnet wird. Die Zugversuche wurden abgebrochen, nachdem auf der Oberfläche ein sichtbarer Anriß erschienen ist. Abbildung 5.9 zeigt die Spannungs-Dehnungs-Kurven aller drei Legierungen (schwarze Linien) sowie die dazugehörigen S-Parameter (rote Rhomben), relativ zu reinem ausgeheiltem Aluminium [442]. Der weiche Anstieg der  $\sigma$ - $\epsilon$ -Kurven am Anfang wird durch das Zahnradspiel der Untersetzung verursacht. Alle Legierungen zeigen eine deutliche Einschnürung vor dem Bruch. Über den gesamten plastischen Bereich wird ein monotoner Anstieg des S-Parameters mit der Dehnung beobachtet, wobei der Dynamikbereich vom Ausgangszustand bis zum Bruch reicht. Die Unterschiede im S-Parameter des Ausgangszustands liegen an der unterschiedlichen chemischen Zusammensetzung der Legierungen, insbesondere am Kupferanteil. Bei AA2024 verläuft der S-Parameter nahezu linear über den ganzen Bereich der Dehnung. Im Gegensatz dazu zeigen die beiden anderen Legierungen ein Abknicken bei  $\epsilon \approx 0.035$  von einem steileren Verlauf zu einem flacheren.

Die Al-Mg-Si Legierungen AA6013 und AA6082 zeigen hier ein typisches Verhalten für Al-Legierungen unter Zugbeanspruchung: Ein Klettern von Versetzungen wird gegenüber dem Gleiten bevorzugt, was zur Ausbildung ausgeprägter Versetzungsstrukturen führt. In den Bereichen besonders hoher Versetzungsdichte ist eine Annihilation von Versetzungen mit entgegengesetztem Vorzeichen wahrscheinlich, was eine dynamische Entspannung verursacht und

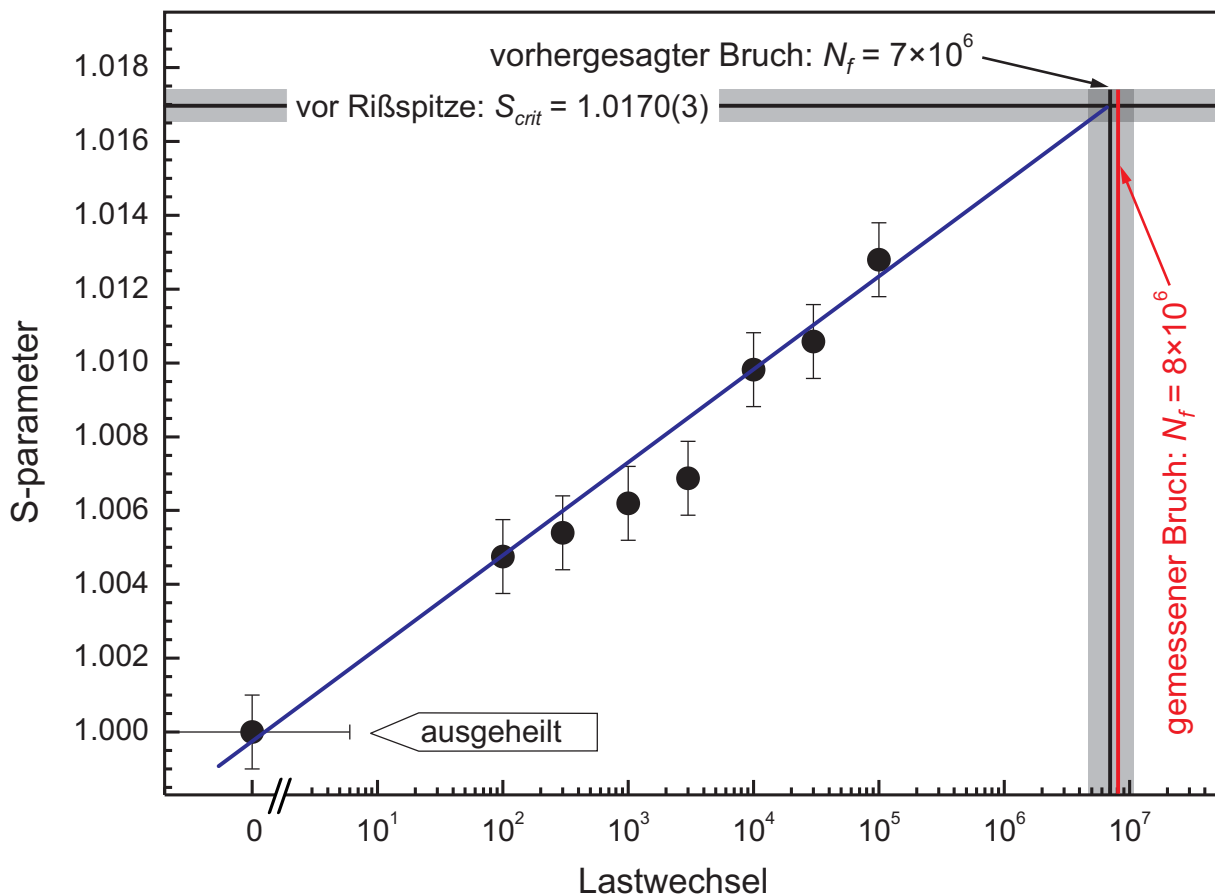


damit eine geringere Zunahme der Gitterfehlerkonzentration zur Folge hat [443]. Die Al–Cu–Mg Legierung AA2024 bildet eine Ausnahme unter den Al-Legierungen, da hier planares Gleiten bevorzugt ist, und damit ein solcher dynamischer Relaxationsprozeß vergleichsweise unwahrscheinlicher ist [443].



**Abbildung 5.9** In-situ Messung des S-Parameters während Zugversuchen an drei technisch relevanten Al-Legierungen mit geringer Dehnrates  $\dot{\epsilon} = 1.8 \times 10^{-6}/s$ . Zum Vergleich sind die S-Parameter relativ zu reinem, ausgeheiltem Al angegeben. Das weiche Anlaufen der Spannungs-Dehnungskurve wird durch das Lagerpiel der Untersetzung verursacht.

Eine der Legierungen (AA6082) wurde in der in Abbildung 5.5 beschriebenen Flachzug-Geometrie einem Ermüdungsversuch unterzogen, wobei bei geeigneten Lastwechselzahlen der Versuch unterbrochen wurde und der maximale S-Parameter am Rand der zentralen Bohrung bestimmt wurde [442]. Vor dem Versuch wurde die Legierung durch Auslagern (4h bei 190°C) in den Ausgangszustand gebracht. Bei dieser Untersuchung wurde der S-Parameter nur während des ersten 1% der Gesamtlebensdauer  $N_f$  bestimmt. Der kritische Wert des S-Parameters wurde an der Rißspitze in einer CT-Ermüdungsprobe bestimmt und  $N_f$  unter der Annahme eines linearen Verlaufs von  $S(\log N)$  aus den Daten extrapoliert. Abbildung 5.10 zeigt das Vorhersagediagramm.



**Abbildung 5.10:** Vorhersagediagramm für AA6082. Im Gegensatz zur vorigen Abbildung ist der S-Parameter hier relativ zum Ausgangszustand des AA6082 angegeben. Die Meßdaten stammen aus dem ersten Prozent der Gesamtlebensdauer der Probe. Die blaue Gerade zeigt die Extrapolation mittels linearer Regression. Auch bei dieser Al-Legierung stimmen vorhergesagter und gemessener Bruch gut überein.

Die S-Parameter sind hier im Gegensatz zu Abbildung 5.9 relativ zum Ausgangszustand von AA6082 angegeben. Insgesamt wurde an sieben Punkten in der Anfangsphase der Ermüdung gemessen und aus diesen Daten nach  $S_{crit}$  extrapoliert (blaue Gerade). Auch bei dieser Legierung zeigt die hier vorgestellte Methode zur Vorhersage des Ermüdungsbruchs ein hervorragendes Ergebnis. Der tatsächliche Bruch lag mit nur 15% Abweichung in der Nähe des vorhergesagten, was einer mit dem klassischen Wöhler-Versuch vergleichbaren Genauigkeit entspricht. Dies ist insbesondere bemerkenswert, da nur Daten aus dem ersten Prozent der Ermüdung zur Extrapolation verwendet wurden.

## 5.2 Untersuchung am Radreifenstahl A4T des ICE – Ein Beispiel

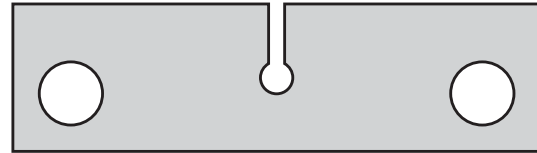
Die Ribbildung in Folge von Materialermüdung ist nicht nur von akademischem Interesse. Spätestens nach dem katastrophalen Zugunglück von Eschede am 03.06.1998 [444] steht diese Problematik im Rampenlicht der Öffentlichkeit. Die Ursache dieses Unglücks lag im Versagen eines verschlissenen Radreifens bei einer Fahrgeschwindigkeit von knapp 200 km/h.

Verbundräder mit Radreifen (Radtyp BR64) wurden beim ICE1 als preisgünstige Abhilfe gegen störende resonante Vibrationen während der Fahrt eingeführt, und haben das Vollmetallrad (sog. Monobloc-Rad) abgelöst. Dieser Radtyp besteht aus einem zentralen Teil aus Vollmetall und einem Radreifen, zwischen denen sich eine Schicht aus Hartgummi befindet.

Da sich Radreifen und Radkern gegeneinander bewegen können, bewirkt die Zwischenschicht eine Dämpfung etwaiger Vibrationen, die durch einseitige Annutzung oder Unwucht des Radreifens entstehen können und führt dadurch zu einem höheren Fahrgastkomfort. Diese Bewegung führt zu einer Auslenkung des Radreifens von der Kreisform. Auch wenn diese Auslenkung gering ist, kommt es im Innenbereich des Reifens zu Zug- und Druckbelastungen, die wie eine Welle kontinuierlich um den Reifen herumlaufen, und den Stahl ermüden. Der Radreifen unterliegt also einer Wechselverformung mit ca.  $5 \times 10^5$  Lastwechseln pro Tag, wenn man die durchschnittliche Fahrleistung des Zuges zugrundelegt.

In diesem Zusammenhang bietet sich eine Untersuchung des Radreifenstahls mit Positronen an. Insbesondere ist die Frage interessant, ob sich die in den vorherigen Kapiteln beschriebene Methodik zur Vorhersage des Ermüdungsbruchs auch auf den Radreifenstahl übertragen läßt. Bei dem hier untersuchten Stahl handelt es sich um den hochfesten austenitischen Stahl mit der Bezeichnung A4T nach EN 13261 [445] mit der Zusammensetzung 25CrMoV4 [446].

Da eine Untersuchung an der Originalgeometrie des Reifens schwer durchführbar ist, wurde auf handlichere Geometrien zurückgegriffen. Die Zugversuche wurden an der im letzten Kapitel beschriebenen Flachzug-Geometrie durchgeführt (siehe auch Abbildung 5.8), während für die Ermüdungsversuche eine spezielle Flachproben-Geometrie verwendet wurde (siehe Abbildung 5.11). Diese wurde aus der in den vorherigen Kapiteln verwendeten Flach-Geometrie entwickelt, um einen höheren Spannungsintensitätsfaktor im maximal belasteten Volumen am Rand der zentralen Bohrung zu erreichen.

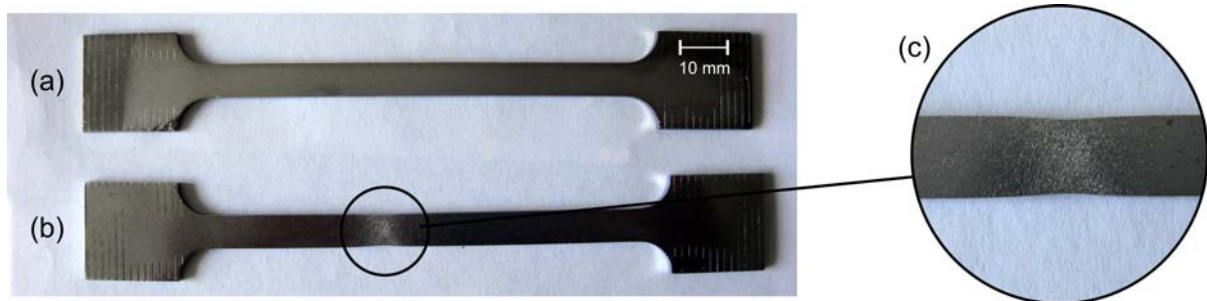


**Abbildung 5.11:** Geometrie der Wechselverformungsproben. Abmaße: 50 mm × 14 mm, Dicke: 0,8 mm, Durchmesser der zentralen Bohrung: 3 mm.

### 5.2.1 Zugversuche

Wie bei den vorherigen Untersuchungen wurden zuerst in-situ Doppler-Messungen während eines Zugversuchs am Radreifenstahl A4T durchgeführt, um den Dynamikbereich des S-Parameters mit der Zugspannung zu untersuchen. Zum Vergleich wurde die gleiche Messung am bereits gut untersuchten ferritischen Stahl C45E gemacht. Dabei kam die im letzten Kapitel beschriebene Vorrichtung mit derselben Dehnrates von  $\dot{\epsilon} = 1,8 \times 10^{-6}/s$  zum Einsatz (siehe Abbildung 5.8). Es wurde eine stärkere  $^{68}\text{Ge}$  Quelle verwendet, um eine bessere Dehnungsauflösung von  $\epsilon = 2,3 \times 10^{-3}$  pro Doppler-Spektrum zu erhalten [446].

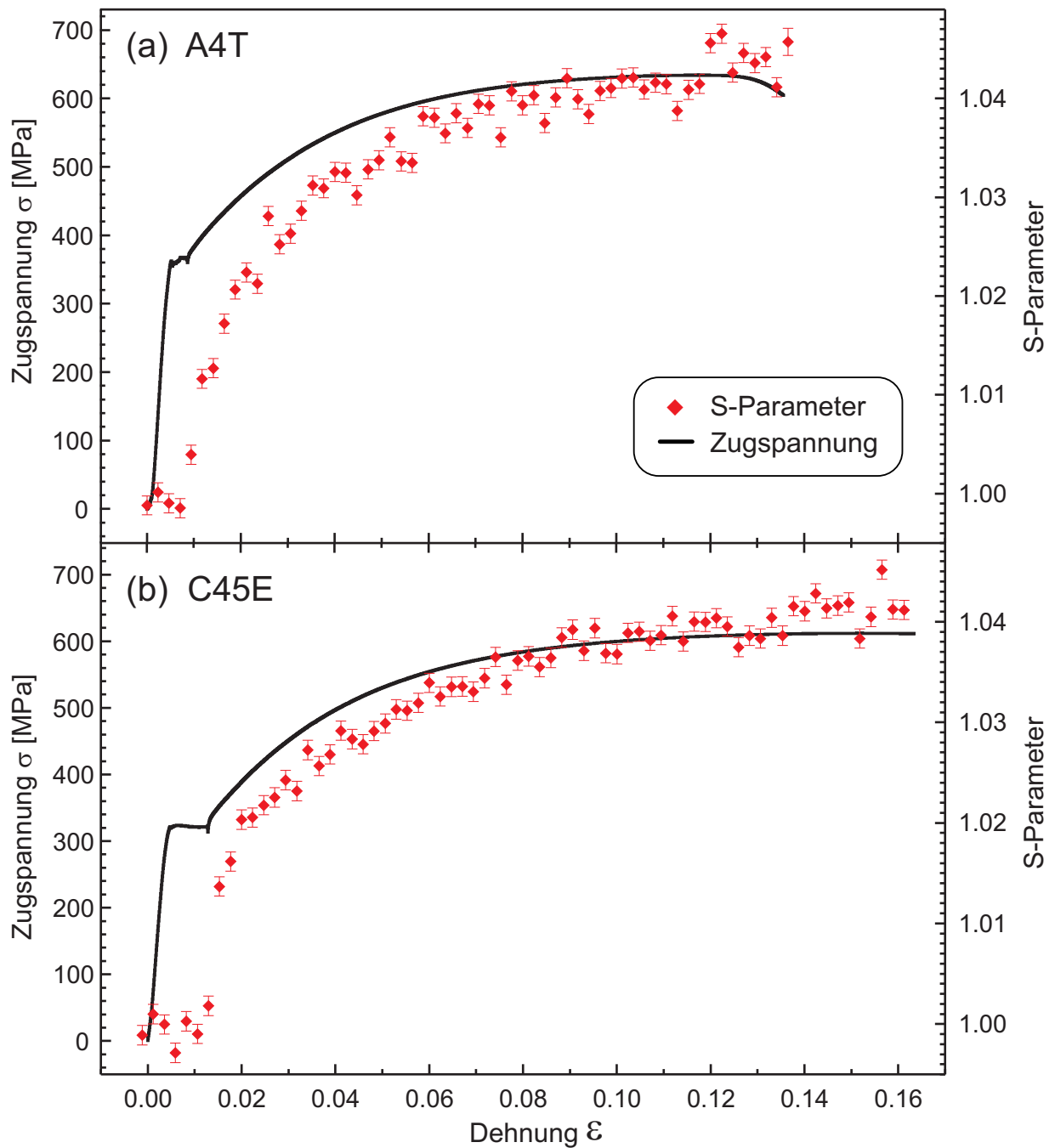
Auch wenn es sich bei beiden Stählen um Werkstoffe mit hoher Festigkeit handelt, unterscheiden sie sich metallurgisch erheblich. Der Austenit A4T verhält sich duktiler als der Karbonstahl C45E. Dies äußert sich in einer deutlichen Einschnürung der A4T-Probe vor dem Erreichen der Bruchdehnung (Abbildung 5.12).



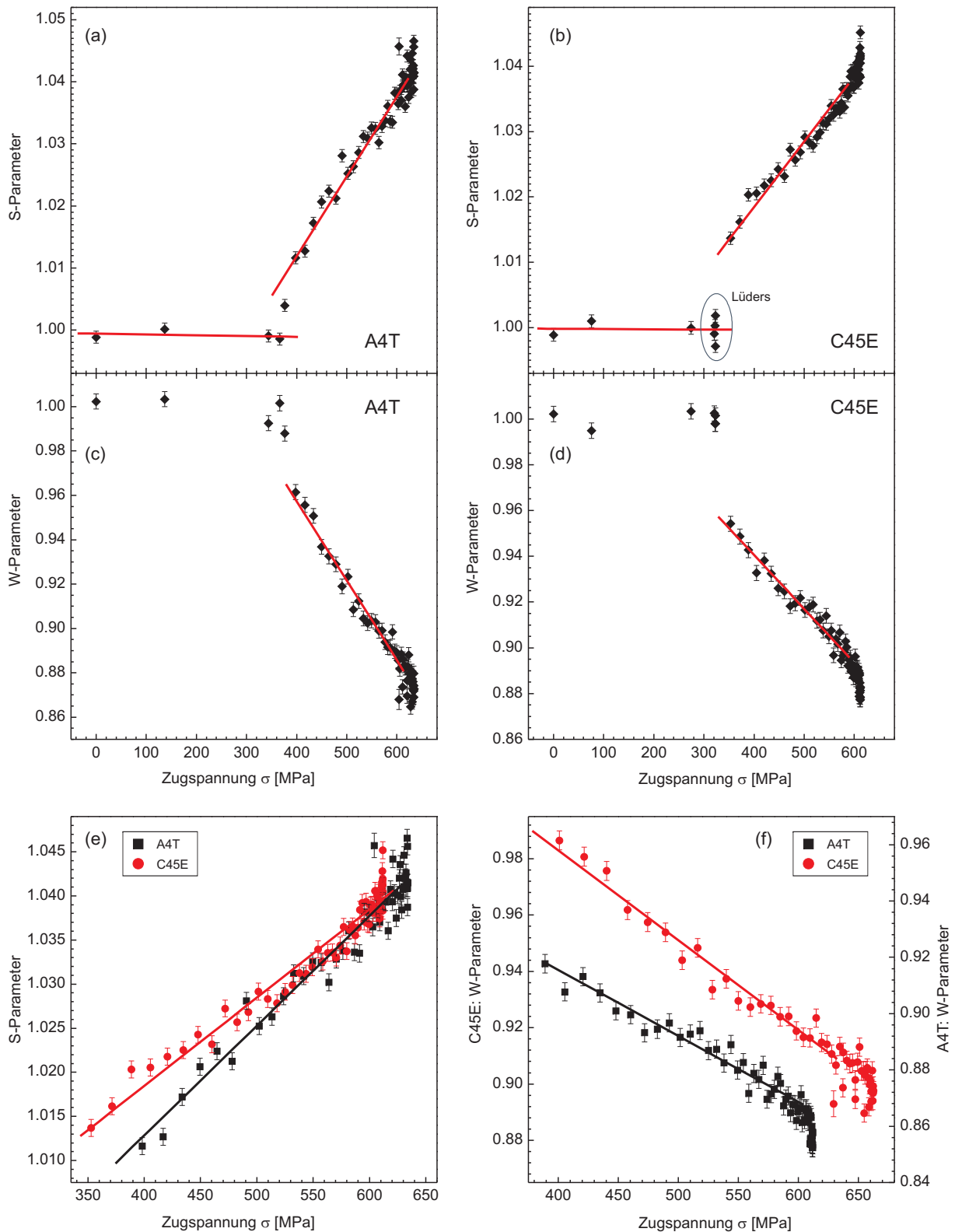
**Abbildung 5.12:** (a) Zugproben bei einer Unterbrechung des Zugversuchs vor dem Bruch: (a): C45E, (b): A4T. Nach dem Zugversuch weist die A4T-Probe im Gegensatz zum C45E eine deutliche Einschnürung (c) auf.

Abbildung 5.13 zeigt die Ergebnisse der Doppler-Messungen (rote Symbole) für beide Stähle zusammen mit den jeweiligen Spannungs-Dehnungs-Kurven (schwarze Linien). Im Vergleich zu früheren ex-situ Messungen (C45E: siehe Abbildung 4.5 und [21]), liefern die in-situ Messungen eine wesentlich höhere Genauigkeit. Zusätzlich erhält man mit  $^{68}\text{Ge}$  als Positronenquelle ein untergrundärmeres Doppler-Spektrum als mit  $^{22}\text{Na}$ , was zu einer geringeren Streuung der Werte bei vergleichbarer Statistik führt.

A4T zeigt eine ausgeprägte Streckgrenze, die jedoch geringer ausfällt als beim C45E. Bei beiden Stählen wird vor dem Beginn des Fließens keine Erhöhung des S-Parameters gemessen. Danach steigt der S-Parameter stetig an und folgt bis kurz vor dem Bruch bei beiden Stählen dem Anstieg der technischen Zugspannung. Die Einschnürung vor dem Bruch beim A4T äußert sich in einem Abfall der technischen Spannung. Die  $^{68}\text{Ge}$ -Quelle befand sich jedoch nicht am Ort der Einschnürung, so daß ein Einfluß der Einschnürung auf den S-Parameter aus diesen Daten nicht entnommen werden kann. Eine solche Einschnürung wird beim C45E nicht beobachtet.

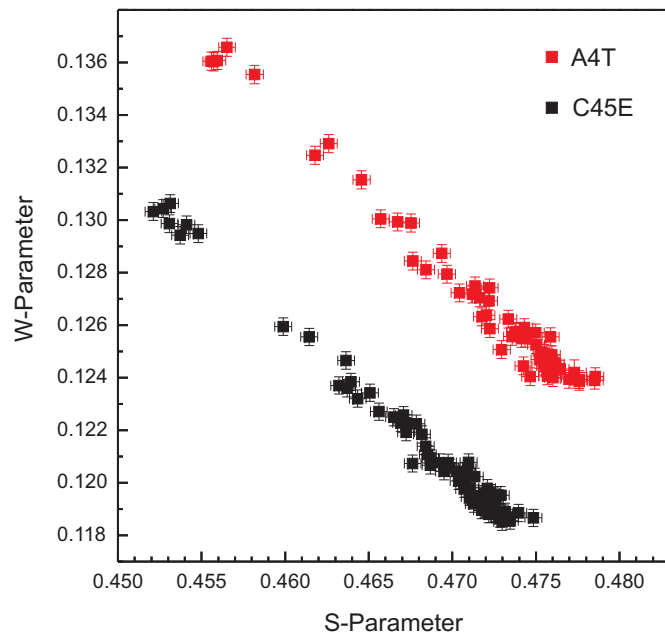


**Abbildung 5.13:** (a) In-situ Messung des S-Parameters während eines Zugversuchs am Radreifenstahl A4T mit sehr niedriger Dehnrates  $\dot{\epsilon} = 1.8 \times 10^{-6}/s$ . (b) Zum Vergleich die gleiche Messung am C45E. Der S-Parameter ist relativ zum jeweils selben Stahl im ausgeheilten Zustand angegeben. Beide Stähle zeigen keine Erhöhung des S-Parameters im Bereich der ausgeprägten Streckgrenze (Lüders-Dehnung).



**Abbildung 5.14:** S- und W-Parameter relativ zum jeweils selben Stahl im ausgeheilten Zustand gegen die Zugspannung. Symbole: Meßwerte, Linien: Regressionsgeraden. (a): A4T – S-Parameter, (b): C45E – S-Parameter. (c): A4T – W-Parameter, (d): C45E – W-Parameter. Im elastischen Bereich wird bei beiden Stählen keinerlei Änderung des S- oder W-Parameters gefunden. Im plastischen Bereich besteht bis kurz vor der Bruchdehnung ein linearer Zusammenhang zwischen den Parametern und der Spannung. S-Parameter (e) und W-Parameter (f) im plastischen Bereich im Vergleich für beide Stähle. (e): Am Ende der Geraden, die dem Abflachen der Spannungs-Dehnungs-Kurve bei hohen Dehnungen entspricht (siehe Abbildung 5.13), steigt der S-Parameter überproportional an. (f): Dieser Effekt ist im W-Parameter noch ausgeprägter und äußert sich in einem jähen Abfall.

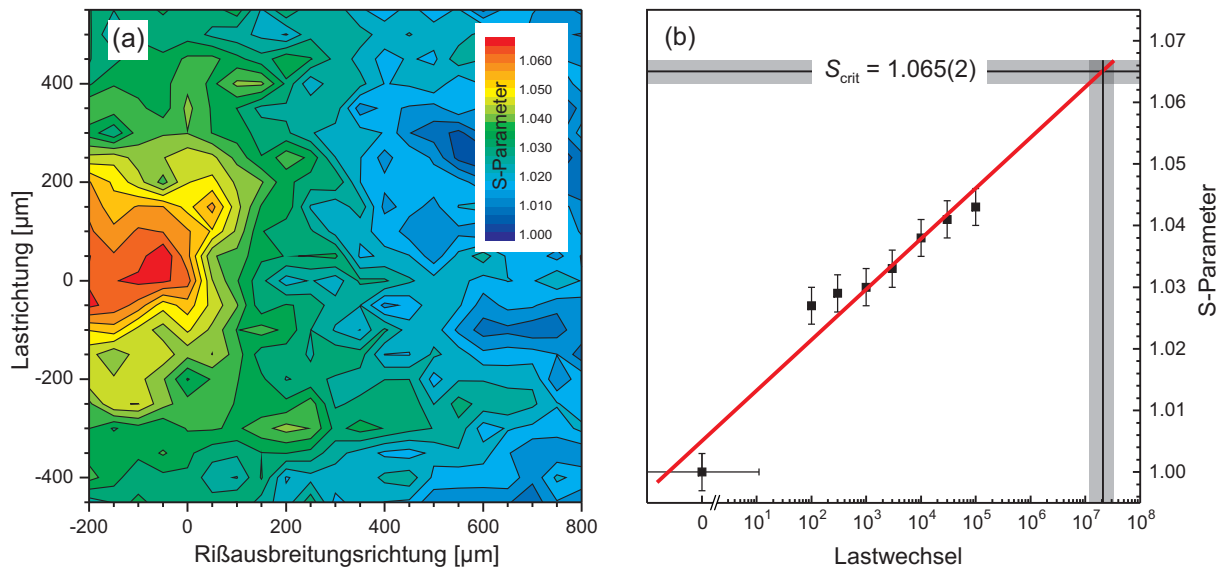
Dieses Phänomen wurde aufgrund geringerer Meßgenauigkeit bei den früheren Versuchen nicht gefunden. Eine Auftragung der Meßwerte gegen die technische Zugspannung ist in Abbildung 5.14 dargestellt, und zwar einmal für den S-Parameter (a und b) und für den W-Parameter (c und d). Im unteren Teil sind die Werte zum Vergleich noch mal nur für den plastischen Bereich gezeigt (e und f). Die Symbole entsprechen den Meßwerten, während die Linien durch lineare Regression ermittelt wurden. Wie es auch schon aus Abbildung 5.13 ersichtlich ist, ändern sich weder S- noch W-Parameter während der elastischen Dehnung. Beide Parameter verlaufen für beide Stähle bis kurz vor der Bruchlast linear mit der Spannung, wie es für C45E schon aus einer früheren in-situ Messung bekannt ist (siehe Abbildung 4.6). Nach dem linearen Teil steigt der S-Parameter überproportional an, bzw. fällt der W-Parameter ab. Das zeigt, daß die Konzentration der Gitterfehler zum Ende des Zugversuchs weiter ansteigt, obwohl in der Spannungs-Dehnungs-Kurve keine nennenswerte Verfestigung mehr beobachtet wird. Der Dynamikbereich der Positronen reicht also über den der makroskopischen Verfestigung hinaus. Ein S/W-Plot aller Daten aus den Zugversuchen zeigt (Abbildung 5.15), daß sich das Verhältnis der für Positronen sichtbaren Fehlstellentypen während des Zugversuchs nicht ändert. Dies gilt gleichermaßen für beide Stähle, obwohl sie eine sehr unterschiedliche chemische Zusammensetzung und Phasenstruktur besitzen.



**Abbildung 5.15:** S/W-Plot der Daten aus den Zugversuchen. Zum besseren Vergleich sind S- und W-Parameter in Absolutwerten angegeben. Für beide Stähle liegen die Werte über den gesamten Bereich auf einer Geraden. Deren unterschiedliche Lage wird durch die unterschiedliche chemische Zusammensetzung der Stähle verursacht.

## 5.2.2 Vorhersage des Ermüdungsbruchs

Die hier verwendete Probengeometrie (siehe Abbildung 5.11) stellt eine Weiterentwicklung der vorherigen Flach-Geometrie mit zentraler Bohrung dar. Zum einen wurde die Probe in ihrer Größe herunterskaliert, damit das Wechselverformungsexperiment mit einer piezoelektrischen Wechselverformungsmaschine [99,447] mit Kräften um 300 N im Labor durchgeführt werden konnte. Zum anderen wurde die Flachprobe von einer Seite her zur Bohrung hin aufgeschnitten. Dies bewirkt eine wohldefinierte maximal belastete Zone auf einer Seite der Bohrung, ähnlich der Situation bei einer CT-Probe. Im Gegensatz zur CT-Probe ist jedoch durch den Durchmesser der Bohrung von 3 mm gewährleistet, daß das Experiment nicht durch die Kerbwirkung einer Anrißkerbe verfälscht wird. Für die Bestimmung des kritischen S-Parameters von A4T wurde ein Ermüdungsriß in CT-Geometrie unter vergleichbaren Bedingungen wie bei der Untersuchung am C45E präpariert. Für beide Messungen wurde der Stahl vor dem Versuch bei 1000° C für drei Stunden im HV ausgeheilt [446].



**Abbildung 5.16:** (a): Plastische Zone vor einer Ermüdungsrißspitze im Radreifenstahl A4T. Der kritische S-Parameter wird vor der Rißspitze bestimmt. (b): Vorhersagediagramm für A4T:  $N_f = 2 \times 10^7$  wird aus sechs Datenpunkten vorgeschagt, die alle unterhalb von 0.5%  $N_f$  liegen. Der tatsächliche Wert von  $N_f$  konnte aufgrund der Entstehung vieler Mikrorisse nur auf den Bereich von  $1.8 \pm 0.3 \times 10^6$  eingegrenzt werden.

Eine S-Parameter-Scan von Rißspitze und plastischer Zone im A4T zeigt Abbildung 5.16 (a). Im Vergleich zu C45E ergibt sich eine etwa doppelt so große Ausdehnung der plastischen Zone bei vergleichbaren Parametern der Rißpräparation [446]. Der kritische S-Parameter für A4T ergibt sich vor der Rißspitze zu  $S_{\text{crit}} = 1.065(2)$ . Abbildung 5.16 (b) zeigt das Vorhersagediagramm für A4T. Die Meßwerte wurden am Rand der Bohrung bestimmt und der weitere Verlauf des S-Parameter, wie auch bei den vorigen Beispielen, unter der Annahme eines linearen Anstiegs mit  $\log(N)$  extrapoliert. Die Daten stammen aus der Anfangsphase der Ermüdung unterhalb von 0.5%  $N_f$ . Aus dem Diagramm ergibt sich Vorhersagewert für  $N_f$  von  $2 \times 10^7$ .

Im Experiment entstanden in der Endphase der Ermüdung sehr viele Mikrorisse in einer von Gleitlinien auf der Oberfläche gekennzeichneten plastischen Zone am Rand der Bohrung. Es war daher nicht möglich,  $N_f$  exakt anzugeben. Das Einsetzen der Mikrorißbildung konnte lediglich auf einen Bereich von  $1.8 \pm 0.3 \times 10^6$  Lastwechseln eingegrenzt werden [446]. Auch wenn dies keine exakte Verifikation der Vorhersage darstellt, liegt der vorhergesagte Wert dennoch innerhalb des Bereichs.

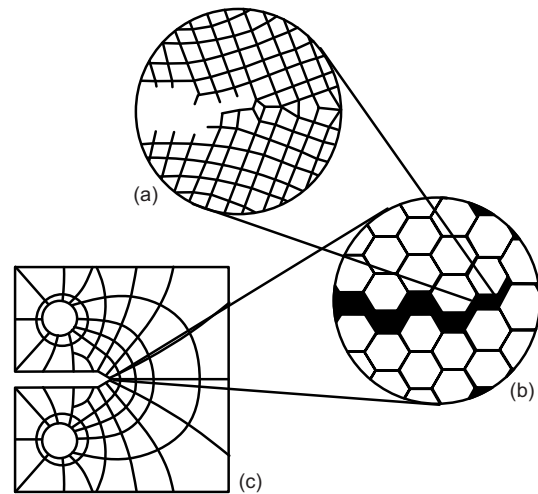
Die drei hier vorgestellten Messungen an recht unterschiedlichen Werkstoffen belegen, daß eine Vorhersage des Ermüdungsbruchs mit der zerstörungsfreien Methode der Positronen-Annihilation zu vernünftigen Ergebnissen führt. Sie wird aller Wahrscheinlichkeit nach nicht die herkömmliche Versuchsreihe nach Wöhler ersetzen, bildet aber eine interessante Alternative, da eine zuverlässige Vorhersage bereits nach einem Prozent von  $N_f$  möglich ist. Es ist allerdings nicht davon auszugehen, daß die einfache Beziehung  $S \sim \log(N) - 1$  universelle Gültigkeit hat, da sie momentan rein auf Empirie beruht. Ein numerisches Modell der Ermüdung, das nur von den Materialparametern abhängt, sollte aber eine Grundlage für ein besseres Verständnis der Beziehung  $S(N)$  liefern, mit dem die Methode auf einfache Weise auf andere Werkstoffe übertragen werden kann.



## 5.3 Modellierung der Akkumulation von Gitterfehlern

### 5.3.1 Ein kurzer Überblick über den Stand der Technik

Die physikalischen Vorgänge, die hinter den Phänomenen Plastizität, Materialermüdung und Versagen stehen, erstrecken sich über viele Skalen von der quantenmechanischen Welt einzelner Atome bis zum makroskopischen Festkörper. Ebenso werden zur Simulation dieser Vorgänge sehr verschiedene Techniken herangezogen, deren Stärken meist auf eine bestimmte Längenskala beschränkt sind. Eine gut gegliederte und ausführliche Übersicht über die Methoden findet sich in [448]. Die unterschiedlichen Skalen lassen sich sehr schön anhand des Logos der International Conference on the Fundamentals of Fracture (ICFF) beschreiben (siehe Abbildung 5.17). Die mikroskopische Skala, in Teil (a) der Abbildung angedeutet durch aufrei-



**Abbildung 5.17:** Das Logo der ICFF, auf den Kopf gestellt.

ßende atomare Bindungen, erstreckt sich über die Größenordnung von  $10^{-10}$  m –  $10^{-5}$  m. Auf unterster Ebene wird das Geschehen von der elektronischen Wechselwirkung der Orbitale bestimmt. Für einzelne oder einige wenige Atome kann diese Wechselwirkung durch Lösen der entsprechenden Schrödinger-Gleichung numerisch berechnet werden, wobei allerdings die teilweise drastischen Vereinfachungen der Dichte-Funktional-Theorie zur Anwendung kommen (DFT: All-Electron-Code) [192 - 194]. Für größere Systeme einiger hundert Atome reicht die verfügbare Rechenleistung nicht mehr aus, um alle Elektronen eines Atoms in der Rechnung zu berücksichtigen. Der Einfluß der kernnahen Elektronen wird in diesem Fall durch ein Pseudopotential ersetzt, und nur die äußeren Elektronen explizit berechnet. Der Zustand minimaler Gesamtenergie, von dem angenommen wird, daß er in der Natur realisiert ist, wird dann iterativ bestimmt. Dafür stehen heutzutage umfangreiche Programmpakete zur Verfügung, z.B. SIESTA [217] und VASP [449], mit denen es möglich ist, Fremdatome und Fehlstellen im Gitter sowie einzelne Versetzungen zu berechnen.

In der Molekulardynamik (MD) wird die quantenmechanische Bindung zwischen den Atomen durch klassische Kraftfelder eines empirischen Potentials, z.B. Lennard-Jones, approximiert. In der MD wird die zeitliche Entwicklung eines atomaren Ensembles durch Integration der Newton'schen Bewegungsgleichungen beschrieben. Die Elektronenstruktur der einzelnen Atome wird dabei nicht berücksichtigt, was den Aufwand beträchtlich gegenüber quantenmechanischen Rechnungen reduziert, so daß Rechnungen mit einigen  $10^6$  Atomen möglich sind. Einen umfassenden Überblick bietet [450]. Da in der MD auch die Auftrennung atomarer Bindungen berechenbar ist, kann die Entstehung und die Ausbreitung von Rissen simuliert werden [451], sogar in solch komplexen Festkörpern wie einem Quasikristall [452]. Da sich die Richtungsabhängigkeit kovalenter Bindungen in der MD nur schwer beschreiben läßt, ist sie nur für die Berechnung von Metallen mit ungerichteter Bindung geeignet.

Auf der mesoskopischen Ebene der Kristallkörner im Polykristall ( $10^{-5}$  m –  $10^{-3}$  m siehe Abbildung 5.17b) ist die Berücksichtigung einzelner Atome nicht mehr möglich. Es können

aber einzelne Versetzungen und deren Interaktion untereinander und mit anderen Hindernissen, wie Ausscheidungen oder Korngrenzen, diskret berechnet werden. Die Versetzung wird in der Versetzungsdynamik (VD) [453] als elastische Linie beschrieben, die über elastische Spannungsfelder wechselwirkt [454]. Unter Einwirkung äußerer Kräfte kann sich die Versetzung sowohl konservativ in einem ihrer Gleitsysteme bewegen, als auch dieses durch Klettern verlassen. Versetzungsanordnungen wie Versetzungsdipole, die Annihilation von Versetzungen mit umgekehrtem Vorzeichen, oder auch Frank-Read-Quellen [455] können mittels VD beschrieben werden. Auf diese Weise lassen sich sogar Netzwerke aus tausenden Versetzungen oder komplexe Vorgänge wie die Reflektion einer Versetzungsschar an einer Korngrenze berechnen [456].

Auf der größeren makroskopischen Skala ( $>10^{-3}$  m, in Abbildung 5.17c durch ein FEM Gitter auf einer CT-Probe symbolisiert) wird der Festkörper als ein Kontinuum mit stetigen und differenzierbaren Variablen beschrieben. Der innere Aufbau des Festkörpers, z.B. die polykristalline Struktur wird dabei vernachlässigt.

In der Kontinuumsmechanik wird die Wirkung äußerer Kräfte oder Kraftfelder durch Differentialgleichungen beschrieben, deren Randbedingungen durch die Probengeometrie gegeben sind. Die lokale Dehnung wird dabei mit der lokalen Spannung über das Hooke'sche Gesetz in tensorieller Form in Beziehung gesetzt. Zur Beschreibung plastischer Vorgänge, wie z.B. dem plastischen Fließen oder der Verfestigung muß diese Beschreibung um eine elasto-plastische Formulierung erweitert werden [457,458]. Die Gleichungen der Kontinuumsmechanik sind in vielen Fällen nicht analytisch lösbar, sie lassen sich jedoch auf einem an die Geometrie angepaßten Gitternetz diskretisieren (Finite Elemente Methode FEM). Mit Hilfe der Kontinuumsmechanik können z.B. Wöhlerkurven [459,460], aber auch die Entstehung einer plastischen Zone an einer Kerbe, sowie die Ribentstehung und der Ribfortschritt unter zyklischer Belastung simuliert werden [461,462]. Ein wichtiges Konzept solcher Rechnungen ist die Schadensakkumulation, das heißt ein Parameter, der den in einem Lastzyklus in Form von Gitterfehlern entstandenen Schaden im Gedächtnis behält. Es wird dabei nicht jeder Zyklus explizit durchgerechnet, sondern ein bestimmter Schädigungsanteil angenommen, der in jedem Zyklus aufaddiert wird. Die Größe dieses Anteils hängt von der während des Zyklus im Material deponierten plastischen Energie ab. Eine Übersicht über die verschiedenen Konzepte der Schadensakkumulation bieten die Artikel [463] und [464].

### 5.3.2 Ein neuer Ansatz zur Schadensakkumulation

Das hier vorgestellte Modell versucht nun das Konzept der Schadensakkumulation auf den Polykristall zu übertragen. Es befindet sich damit nach obiger Einteilung auf der mesoskopischen Ebene. Es verwendet einen granularen Ansatz, der auf einem zellulären Automaten basiert. Jedem Kristallkorn wird dabei eine Zelle zugeordnet. Um den Rechenaufwand vertretbar zu halten, werden die inneren Eigenschaften des Kornes in einigen wenigen Parametern zusammengefaßt [465]:

- Die geometrische Position:  $\vec{x}$
- Drei Orientierungswinkel:  $\theta, \psi, \varphi$
- Einfaches Materialgesetz bestehend aus Elastizitätsmodul  $E$  und Fließgrenze  $\sigma_f$
- Schadensparameter:  $D \sim \sqrt{\rho/\rho_0}$ .

Die Zellen des Automaten sind in einem kartesischen Koordinatensystem angeordnet. Jeder Zelle entspricht somit eine Position  $\bar{x}_i$ , die sich im Laufe der Simulation ändern kann. Im Allgemeinen sind die Kristallite in einem Polykristall zufällig orientiert. Diese kristallographische Orientierung wird durch die drei Winkel  $\theta$ ,  $\psi$ ,  $\varphi$  bezüglich einer ausgezeichneten Achse des Systems definiert, die mit der Richtung der externen Dehnung übereinstimmt. In den ersten Implementierungen wird die Orientierung als zufällig gleichverteilt angenommen. Es kann jedoch auch jede andere Verteilung in den Anfangsbedingungen realisiert werden, z.B. eine Walztextur.

Die elasto-plastischen Materialeigenschaften werden auf sehr einfache Weise implementiert: Bis zur Fließgrenze  $\sigma_f$  nach dem Hooke'schen Gesetz mit dem Elastizitätsmodul  $E$ , jenseits davon nimmt die Dehnung weiter zu, ohne daß sich die Spannung dabei erhöht. Abbildung 5.18 zeigt eine Skizze der dazugehörigen vereinfachten zyklischen Spannungs-Dehnungs-Kurve.

Der Schadensparameter  $D$  wird hier proportional der Quadratwurzel aus der Änderung der mittleren Versetzungsdichte  $\rho/\rho_0$  definiert.  $\rho_0$  bezeichnet die bereits anfänglich vorhandene Versetzungsdichte.

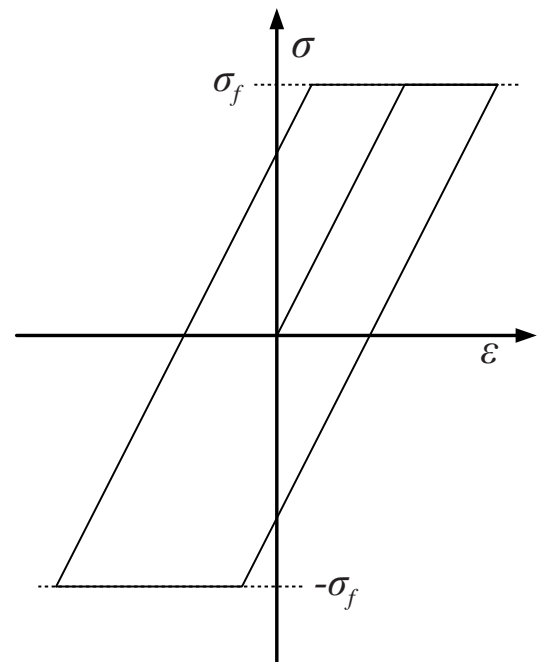
Das Materialversagen wird am Zeitpunkt der Entstehung eines Rißkeims definiert. Das tatsächliche Versagen, das dann eintritt, wenn der Riß die Probe durchlaufen hat, wird hier nicht berücksichtigt. Dies entspricht in soweit den Bedingungen der High-Cycle-Fatigue (Ermüdung bei hohen Lastwechselzahlen: HCF), als daß die Anzahl von Lastwechseln während des Rißfortschritts klein ist gegenüber den Lastwechseln bis zur Rißnukleation. Demzufolge kennt das Modell zwei Abbruchbedingungen:

- 1.) Der geometrische Abstand zweier benachbarter Zellen überschreitet eine kritische Entfernung, was der Nukleation eines intergranularen Risses entspricht.
- 2.) Der Schadensparameter übersteigt in einer Zelle einen kritischen Wert, was einem intragranularen Rißkeim entspricht.

Die äußeren Randbedingungen des Wechselverformungsversuchs werden in der Simulation durch eine oszillierende Dehnung  $\varepsilon_{\text{ext}}$  mit sinusförmigem Verlauf implementiert. Zur Vereinfachung wird der Sinus in acht Teilstücke diskretisiert.

Es wird davon ausgegangen, daß im plastischen Fall in jedem Korn das einfachste Gleitsystem aktiviert wird. Versetzungsgleiten findet dann auch nur auf diesem Gleitsystem statt. Welches System das ist, bestimmt sich aus der Orientierung der Zelle bezüglich der Dehnungsrichtung über den Schmid-Faktor [465, 466].

Der Ablauf der Simulation ist in einem Flußdiagramm in Abbildung 5.19 skizziert: Das Modell simuliert einen dehnungskontrollierten Wechselverformungsversuch. Die Anfangsbedingungen enthalten neben den Positionen  $x_i$  der Zellen und einer zufälligen Orientierung (beschrieben durch die Winkel  $\theta_i$ ,  $\psi_i$ ,  $\varphi_i$ ) auch eine Vorschädigung



**Abbildung 5.18:** Vereinfachte zyklische Hysteresekurve: ideal elastisches Verhalten bis zur Fließgrenze  $\sigma_f$ , danach ideal plastisches Verhalten.

$D_{0i}$ , die proportional zur Wurzel aus einer anfänglichen Versetzungsdichte  $\rho_{0i}$  ist.

Im ersten Schritt wird eine externe Dehnung  $\varepsilon_{ext}$  ausgeübt, deren Amplitude sich aus einer diskretisierten Sinusfunktion ergibt [465]. Daraus ergeben sich die neuen Positionen  $\bar{x}_i$  der Zellen. Danach wird geprüft, ob der kritische Abstand zwischen zwei benachbarten Zellen

überschritten ist. Wenn ja, bricht das Modell an dieser Stelle ab, wenn nicht, wird für jede Zelle die lokale Spannung  $\sigma_i$  nach dem Hooke'schen Gesetz berechnet. Die effektive Schubspannung im aktiven Gleitsystem setzt sich dann aus drei Komponenten zusammen: 1.) Ein Beitrag, der sich aus  $\sigma_i$  und der Kornorientierung über den Schmid-Faktor  $\mu$  ergibt [466]. 2.) Ein Beitrag, der durch die Querkontraktion der benachbarten Körner entsteht. 3.) Ein Beitrag, der durch das Aufstauen von Versetzungen (Pile-Up) an den Korngrenzen zu den benachbarten Körnern entsteht. Es wird dabei angenommen, daß sich im Korninneren nur eine Versetzungsquelle befindet, die Versetzung nur in die beiden Richtungen eines Gleitsystems emittiert. Die Spannung die durch den Pile-Up erzeugt wird, berechnet sich nach [467] als:

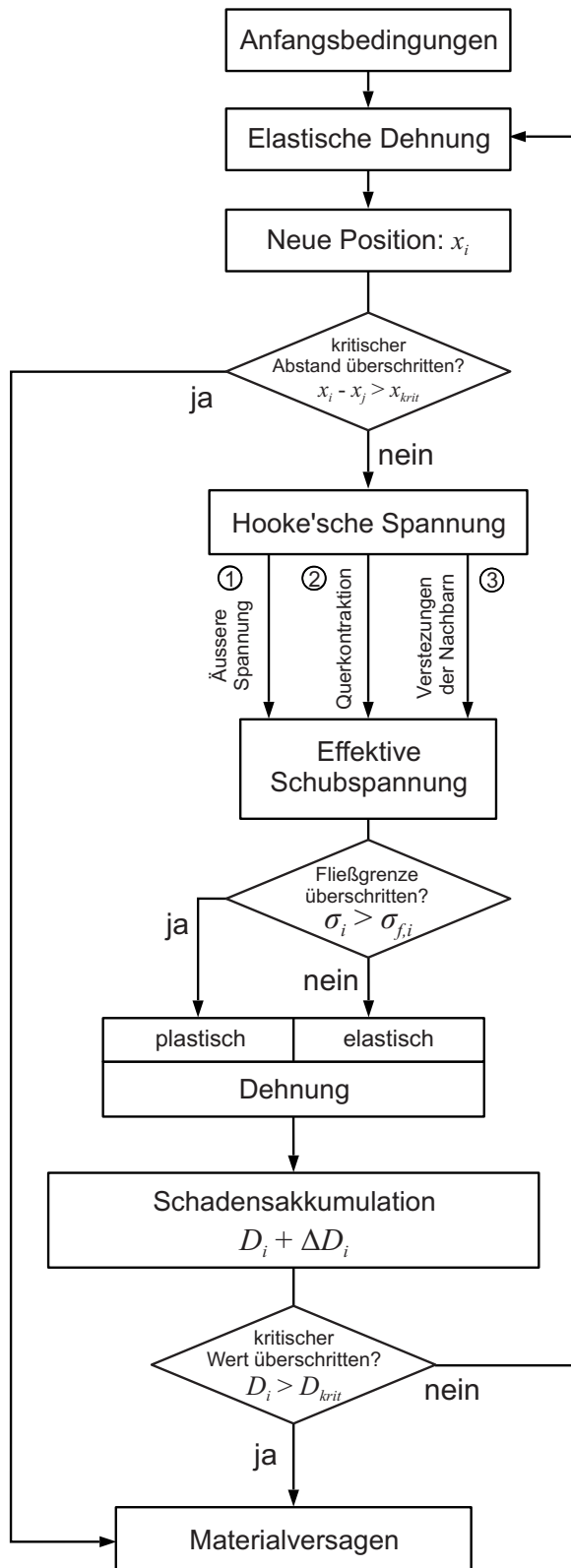
$$\sigma_{pile-up,i} = \frac{2}{\sqrt{3}} \sqrt{\sigma_i^2 - 0.25\sigma_{crit,i}^2} - \sigma_i \quad (5.1)$$

wobei  $\sigma_{crit}$  die kritische Spannung zur Aktivierung der Versetzungsquelle ist. Nachdem der Spannungstensor für jede Zelle berechnet wurde, ergibt sich die effektive Schubspannung  $\tau_i$  im aktivierten Gleitsystem einer Zelle zu:

$$\tau_i = \left[ \begin{pmatrix} \sigma_{xx,i} & \tau_{xy,i} & 0 \\ \tau_{yx,i} & \sigma_{yy,i} & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_{zz,i} \end{pmatrix} \cdot \vec{n}_i \right] \cdot \vec{r}_i \quad (5.2)$$

$\vec{n}_i$  ist hier der Normalenvektor auf der Gleitebene und  $\vec{r}_i$  die Gleitrichtung.

Sollte  $\tau_i$  oberhalb der Fließgrenze der Zelle  $\sigma_{f,i}$  liegen, wird der plastische Anteil der Verformung nach dem in Abbildung 5.18 skizzierten Verlauf berücksichtigt, ohne das es zu einer Erhöhung der Spannung kommt.



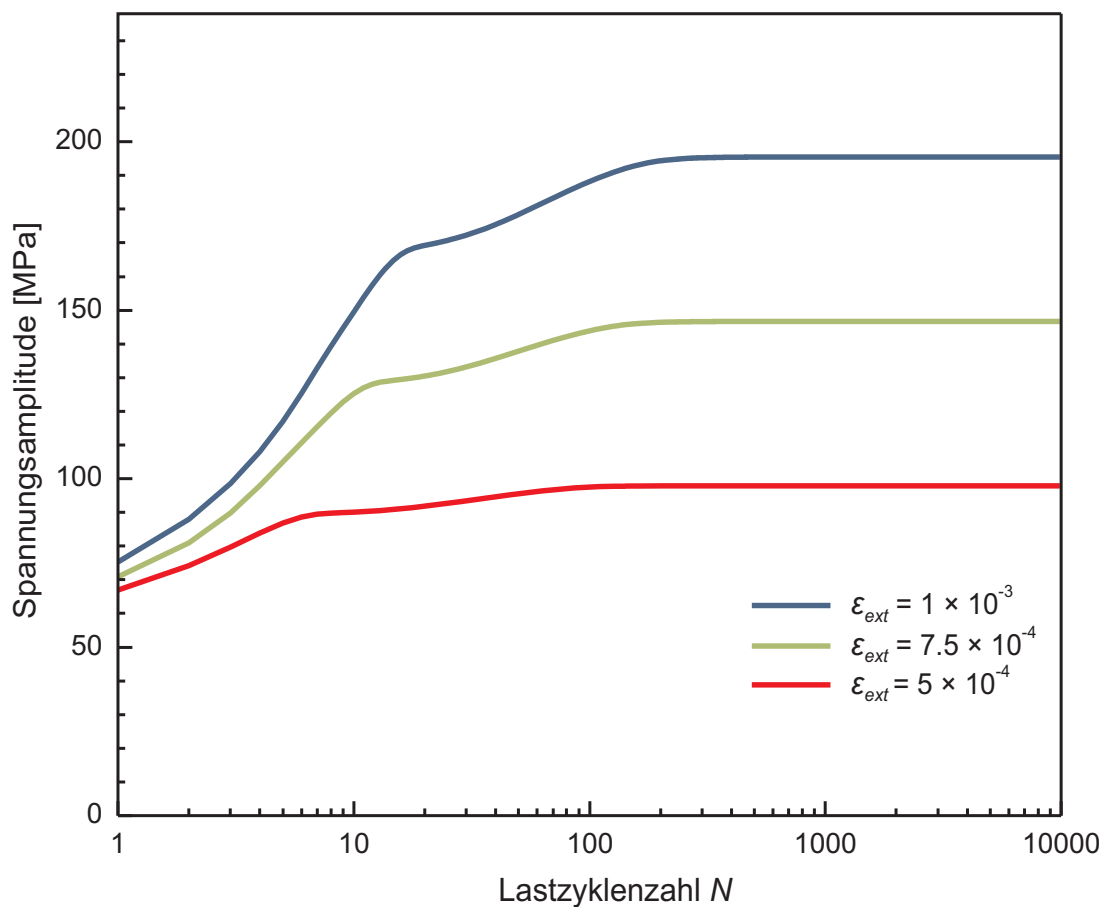
**Abbildung 5.19:** Flußdiagramm des Modells. Die einzelnen Schritte werden im Text diskutiert.

Dieser Anteil trägt demzufolge auch nicht zum Schadensparameter bei. Die Anzahl der in diesem Schritt neu erzeugten Versetzungen ist nach [468] proportional zu  $|\tau_i| - 2\tau_{crit}$ , wobei die kritische Schubspannung aus einem Anfangswert und der bereits vorhandenen Versetzungsdichte bestimmt wird:  $\tau_{crit} = \tau_{crit,0} \cdot \sqrt{\rho / \rho_0}$ . In jedem Schritt nimmt der Schadensparameter  $D_i$  also um einen Anteil  $\Delta D_i$  zu, der linear von der Schubspannung  $\tau_i$  abhängt.

In der Realität entspricht dies einer Verfestigung des Korns. Dementsprechend wird die Fließgrenze  $\sigma_{fi}$  um einen Beitrag proportional zu  $\sqrt{\rho_i}$  erhöht. Ist nun in einer Zelle der kritische Wert  $D_{crit}$  überschritten, bricht das Modell ab. Im anderen Fall wird ein weiterer Zyklus durchlaufen [465, 469, 470].

Ziel des Modells ist es, die Materialermüdung und über die Abbruchbedingungen auch das Materialversagen in drei Dimensionen für eine realistische Anzahl Kristallkörner ( $>10^5$  Zellen) und HCF-Bedingungen ( $>10^6$  Lastwechsel) wirklichkeitsnah zu simulieren. Des Weiteren sollte es die Ausbildung von Strukturen in der Fehlstellendichte reproduzieren, wie sie im Experiment beobachtet werden (siehe Abbildung 5.4 und [270]).

Das Modell ist grundsätzlich nicht auf äquidistante Zellen limitiert, so daß das Modell prinzipiell auf beliebige Probengeometrien erweitert werden kann. In Verbindung mit einer FEM, die das anfängliche Spannungs- und Dehnungsfeld mit den Werkzeugen der Kontinuumsmechanik lokal für die einzelnen Zellen berechnet, können diese Randbedingungen abgebildet werden.



**Abbildung 5.20:** Gerechnete Verfestigungskurven für drei äußere Dehnungen. Zwei-dimensionales Modell mit  $100 \times 100$  Zellen mit zufällig gleichverteilter Orientierung. Es wurden Elastizitätsmodul und Fließgrenze von reinem Nickel verwendet.

Im jetzigen Zustand sind jedoch nur rechteckige Probengeometrien in zwei Dimensionen möglich. Doch auch in dieser einfachen Implementierung zeigt das Modell bereits gute Ergebnisse. Abbildung 5.20 zeigt die Simulation von Verfestigungskurven in reinem Nickel für drei unterschiedliche externe Dehnungen, wobei die Materialkonstanten von Nিকেleinkristallen im ausgeheilten Zustand als Anfangswerte verwendet wurden. Die Simulation wurde auf einer zwei-dimensionalen  $100 \times 100$  Matrix mit zufällig gleichverteilter Kornorientierung ausgeführt [470]. Alle Kurven zeigen bereits während der ersten 10 Lastwechsel einen deutlichen Anstieg der Spannungsamplitude, dem nach Erreichen eines Buckels bei  $N \approx 10$  ein langsamer Anstieg folgt. Nach einigen hundert Lastwechseln läuft die Spannungsamplitude in ein Plateau ein. Der Kurvenverlauf entspricht qualitativ experimentellen Verfestigungskurven, wie sie von Bretschneider et al. bei Raumtemperatur an Nickel-Einkristallen unter vergleichbaren Bedingungen ( $\varepsilon_{ext} = 1 \times 10^{-3}$ ) gefunden wurden [471]. Ebenso wie in der Simulation erreicht die Spannungsamplitude auch im Experiment ein Plateau. Quantitativ weicht die Simulation allerdings vom Experiment ab: Das Plateau wird im Experiment erst nach ca.  $2 \times 10^4$  Lastwechseln erreicht, in der Simulation bereits bei  $N \approx 400$ . Die Situation ist allerdings auch nicht direkt übertragbar, da die Lastwechselzahl beim Erreichen des Plateaus bei ermüdeten Einkristallen um bis zu zwei Größenordnungen von der Orientierung abhängt [472, 473].

Im jetzigen, noch sehr einfachen Stadium zeigt das Modell bereits vernünftige Ergebnisse, die eine realistische Simulation der Materialermüdung im Polykristall in naher Zukunft erwarten lassen. Solche Resultate können direkt auf die Abschätzung der Restlebensdauer eines Bauteils mit Positronen angewendet werden. Der Schadensparameter  $D$  sollte auf eine einfache Weise mit dem S-Parameter korrelieren, so daß Vorraussagen des Modells mit Positronenmessungen validiert werden können. Leider ist es bisher noch nicht gelungen, die Ausbildung und Entwicklung von Defektstrukturen zu simulieren, so daß ein Vergleich mit dem Experiment hier noch aussteht.

# Kapitel 6

## Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit ist in drei große Themenbereiche unterteilt. Im ersten Teil wird ein Überblick über den Stand der Forschung bei der Anwendung des Positrons als zerstörungsfreie Sonde in der Materialuntersuchung gegeben. Der zweite Teil beschreibt die unterschiedlichen Methoden, die zur orts aufgelösten Messung von Plastizität und Ermüdung der Werkstoffe heutzutage zur Verfügung stehen. In diesem Rahmen werden verschiedene Methoden der Positronenvernichtung im Vergleich diskutiert. Im dritten Teil werden aktuelle Ergebnisse aus der Materialforschung mit Positronen vorgestellt, sowie ein neuer zerstörungsfreier Ansatz zur Vorhersage des Ermüdungsbruchs aus der Frühphase der Ermüdung präsentiert.

### Das Positron als zerstörungsfreie Sonde für Gitterfehler

Ein Positron im Kristallgitter des Festkörpers agiert als hochempfindliche Sonde für Gitterfehler mit offenem Volumen. Als positiv geladenes Teilchen wird es von den Atomrümpfen abgestoßen und hat seine maximale Aufenthaltswahrscheinlichkeit im Zwischengitter. Ein nicht positiv geladener Gitterfehler, der das Gitter aufweitet, bildet ein attraktives Potential für das Positron, in das es eingefangen werden kann. Die Zerstrahlung mit einem Elektron wird von zwei lokalen Eigenschaften einer Positronenfalle beeinflusst: Der Elektronendichte und der Elektronenimpulsdichte, die beide unmittelbare Auswirkungen auf die Zerstrahlungsparameter haben. Die Elektronendichte ist umgekehrt proportional zur Positronen-Lebensdauer und damit der Messung zugänglich. Über den Elektronenimpuls wird der Annihilationsstrahlung eine Doppler-Verschiebung aufgeprägt, die zu einer Linienverbreiterung im Energiespektrum der Annihilationsstrahlung führt. Diese ist über einen einfachen Linienformparameter, den S-Parameter, quantifizierbar. Mittels dieser Größen können zerstörungsfrei Aussagen über die Konzentration und die Art von Gitterfehlern gemacht werden.

Während der plastischen Verformung oder Ermüdung eines Werkstoffs werden über verschiedene Prozesse Versetzungen erzeugt, wobei deren Konzentration über mehrere Größenordnungen ansteigen kann. Bei diesen Prozessen entstehen immer auch Punktdefekte, wie z.B. atomare Leerstellen, Zwischengitteratome und Sprünge auf Versetzungslinien (Jogs). Besitzen diese Defekte ein offenes Volumen, das einem attraktiven Potential entspricht, dessen Tiefe groß im Vergleich zur kinetischen Energie des Positrons ist, wird es darin eingefangen und kann bis zu seiner Zerstrahlung nicht mehr entkommen. Bei der Untersuchung der Plastizität mit Positronen wird die Versetzungskonzentration indirekt über die Konzentration der assoziierten Punktdefekte bestimmt, wobei das Signal eines Jogs dem einer Leerstelle entspricht.

Die Positronen-Annihilations-Spektroskopie (PAS), eignet sich daher hervorragend zur Untersuchung plastisch verformter oder ermüdeter Proben, wobei die untere Ansprechschwelle

zwischen  $10^{-7}$  und  $10^{-6}$  Leerstellen pro Atom liegt. Der Dynamikbereich erstreckt sich über drei bis vier Größenordnungen vom thermisch ausgeheilten Zustand eines Werkstoffs, bis zum maximal verformten, direkt vor der Spitze eines Ermüdungsrisse.

Neben der Empfindlichkeit für die Konzentration von Gitterfehlern besitzt das Positron auch eine chemische Sensitivität für die Umgebung der nächsten Nachbarn einer Positronenfalle. Die Elektronenimpulsdichte ist für jede Atomspezies spezifisch, und führt über die Doppler-Verschiebung zu einer charakteristischen Form der Annihilationslinie. Das Doppler-Spektrum besitzt daher im Bereich hoher Elektronenimpulse eine ausgeprägte chemische Sensitivität. Auch wenn durch die Abschirmung der inneren Orbitale die Zerstrahlungsereignisse mit hohen Impulsen statistisch selten sind, können die Spezies der nächsten Nachbaratome in vielen Fällen identifiziert werden.

## Auswertung experimenteller Daten

Die Dopplerverbreiterung der Annihilationsstrahlung liegt in der Größenordnung der Energieauflösung aktueller Germanium-Detektoren. Dies erfordert eine hohe Stabilität der Meßapparatur sowie große Sorgfalt bei der Auswertung der Doppler-Spektren. Hinzu kommt, daß der chemisch sensitive Teil des Doppler-Spektrums von einem um drei Größenordnungen höheren Untergrund überdeckt ist. In der vorliegenden Arbeit werden Methoden vorgestellt und detailliert beschrieben, die eine hochgenaue Auswertung von Doppler-Spektren ermöglichen. Dabei ist es zunächst wesentlich, störende Einflüsse auf die Messung, wie zum Beispiel Schwankungen in der Elektronik, genau zu erfassen. Dies gelingt über die simultane Messung eines geeigneten Gammastrahlers, wobei sich  $^7\text{Be}$  als optimal herausgestellt hat. Sind diese Störungen einmal bekannt, können die Spektren im Nachhinein korrigiert werden.

Das Problem des hohen Untergrunds im chemisch sensitiven Bereich kann auf zwei verschiedene Weisen angegangen werden: Zum Einen mit der Messung beider Annihilationsquanten in Koinzidenz (Coincidence Doppler Broadening Spectroscopy CDBS), zum Anderen mit einer exakten mathematischen Anpassung und Subtraktion des Untergrundes (High Momentum Analysis HMA). Die CDBS hat den Nachteil des höheren Aufwandes, da sie ein Paar gut aufeinander abgestimmter Germanium-Detektoren erfordert. Doch selbst bei guter Abstimmung verbleiben Unterschiede, die die Qualität der resultierenden Spektren deutlich beeinflussen und zu unphysikalischen Asymmetrien in der Doppler-Kurve führen können. Es wird hier ein Algorithmus vorgestellt, der individuelle Parameter der Detektoren berücksichtigt. Mit diesem Algorithmus ausgewertete CDB-Spektren zeigen weniger Artefakte und lassen sich besser mit Ergebnissen anderer Messungen vergleichen. Die HMA benötigt nur einen Detektor und kann in jedem vorhandenen Doppler-Spektrometer implementiert werden. Die hier eingeführte mathematische Beschreibung des Annihilationspeaks und des Untergrundes ermöglicht es, die Feinheiten des Doppler-Spektrums über den für die chemische Analyse der Umgebung einer Positronenfalle relevanten Energiebereich aufzudecken. Die mit HMA mit einem einzelnen Detektor gewonnenen Ergebnisse sind mit denen der CDBS innerhalb der jeweiligen Fehlergrenzen identisch.

## Positronen-Mikrosonde

Bei vielen Versuchen zu Plastizität und Ermüdung ergibt sich eine stark inhomogene Verteilung der Gitterfehler über das Probenvolumen, wobei sich je nach Probengeometrie die Versetzungsdichte in Abständen weniger Mikrometer signifikant ändern kann. Eine solche Ortsauflösung ist mit herkömmlichen Positronenquellen nicht zu erreichen und kann nur mit einem Feinfokus-Positronenstrahl realisiert werden. Die Bonner Positronen-Mikrosonde (BPM)



stellt einen solchen Strahl zur Verfügung. Die BPM ist ein Laborgerät, das mit einer primären  $^{22}\text{Na}$  Positronenquelle arbeitet, und damit unabhängig von Großforschungsanlagen, wie Forschungsreaktoren oder Beschleunigern, ist. Die Positronenquelle ist gekapselt und so abgeschirmt, daß die BPM nicht in einem Kontrollbereich betrieben werden muß. Im jetzigen Entwicklungszustand erreicht die BPM eine maximale Ortsauflösung von einem Mikrometer. Der Strahl läßt sich auf bis zu 200  $\mu\text{m}$  defokussieren, so daß die BPM flexibel an die Anforderungen eines Experiments angepaßt werden kann. Die BPM verfügt über ein eingebautes Raster-Elektronenmikroskop, und läßt sich einfach während einer Messung zwischen Elektronen- und Positronenbetrieb umschalten. Dies erweist sich als essentiell, da nur eine genaue Zuordnung der Meßergebnisse zu einer Landkarte der Probenoberfläche ihre Interpretation ermöglicht.

Mit der BPM konnte erstmals die Versetzungsverteilung in plastisch deformierten Zonen zerstörungsfrei zweidimensional abgebildet werden. Obwohl die BPM ständig weiterentwickelt wird, arbeitet sie seit einem Jahrzehnt im Routinebetrieb. Mit der BPM wurde im Rahmen von Diplom- und Doktorarbeiten sowie Industriekooperationen und DFG-Projekten eine Vielzahl von materialphysikalischen Fragestellungen erfolgreich bearbeitet.

## Vergleich ortsaufgelöster Methoden

Zur ortsaufgelösten Untersuchung inhomogener Versetzungskonzentrationen stehen auch andere Methoden zur Verfügung, wobei die Transmissions-Elektronenmikroskopie (TEM) wohl die Verbreitetste ist. Es wird ein kurzer Überblick über die gängigen Methoden gegeben, und ihre Vor- und Nachteile diskutiert. Diese lassen sich in zwei Gruppen einteilen: zerstörende und zerstörungsfreie Methoden. Ein besonderes Augenmerk wird auf die ortsaufgelöste Röntgenbeugung gelegt, die ebenso wie die PAS zerstörungsfrei ist. Vergleichende Untersuchungen an plastisch verformten Metallproben sowie an der plastischen Zone vor einem Ermüdungsriß werden ausführlich diskutiert. Obwohl mit Röntgenbeugung (die Änderung der Gitterkonstante) ein anderer Parameter als mit der PAS (offenes Volumen) gemessen wird, zeigen beide experimentelle Herangehensweisen identische Ergebnisse bei Dehnungsversuchen, soweit die Probengeometrie an das Röntgenexperiment angepaßt ist. Im Röntgenbeugungsexperiment an ermüdeten Proben konnte der elastische Anteil der Verformung nicht vom Plastischen getrennt werden, so daß sich die PAS hier als überlegen erweist.

## Nachweis von Plastizität und Ermüdung

Es wurde eine Reihe von Zugversuchen an unterschiedlichen metallischen Werkstoffen durchgeführt und dabei in-situ Doppler-Spektren aufgenommen. Im elastischen Bereich einer Spannungs-Dehnungskurve konnte kein Einfluß der Dehnung auf den S-Parameter nachgewiesen werden. Auch im Bereich der ausgeprägten Streckgrenze zeigt sich nur ein minimaler Anstieg in der Versetzungsdichte. In plastischen Bereich steigt der S-Parameter in erster Näherung linear mit der Zugspannung an. Kurz vor dem Bruch steigt der S-Parameter überproportional zur Zugspannung an. Daraus ergibt sich, daß die Konzentration atomarer Fehlstellen auch dann noch ansteigt, wenn makroskopisch kein nennenswerter Anstieg der Verfestigung beobachtet wird.

Vor einem Ermüdungsriß befindet sich eine plastisch deformierte Zone. Mit der BPM ist es erstmals gelungen, die Fehlstellenkonzentration in der plastischen Zone in einem austenitischen Stahl zerstörungsfrei abzubilden. Seitdem konnten plastische Zonen in sehr unterschiedlichen metallischen Werkstoffen (Al-Legierungen, Ti-Legierungen, Cu-Legierungen, austenitischen und ferritischen Stählen) abgebildet werden. Die Abbildung von Deformati-

onszonen ist auch in anderen Bereichen der Materialforschung von Bedeutung. So stellt sich bei der spanenden Bearbeitung die Frage nach der Qualität der neuen Oberfläche nach dem Zerspanvorgang. Die Auswirkung der Bearbeitungsparameter Schnitttiefe und Schnittgeschwindigkeit wurde an einer Reihe von Zerspanungsproben aus einem Karbonstahl untersucht. Dazu wurden die Verformungszonen in Span und Spanwurzel nach dem abrupt unterbrochenen Scheidvorgang mit der BPM bildgebend abgerastert. Aus einer solchen Abbildung können die relevanten Daten, wie z.B. die Tiefe der plastischen Deformation unter der neuen Oberfläche entnommen werden.

## Identifikation von frühen Ausscheidungen in Al-Legierungen

Technisch nutzbare Aluminiumlegierungen erhalten ihre Härte über feinverteilte Ausscheidungen in der Größenordnung von wenigen bis zu einigen zehn Nanometern, die die Versetzungsbewegung effektiv behindern. Eine weitverbreitete Gruppe dieser Werkstoffe sind die Al-Cu-Mg Legierungen, die unter anderem im Flugzeugbau eingesetzt werden. Metallurgisch werden Al-Cu-Mg Legierungen durch Lösungsglühen, Abschrecken und Auslagern hergestellt, wobei die Legierungselemente direkt nach dem Abschrecken in einer übersättigten Lösung vorliegen. Über eine schnelle, durch atomare Leerstellen vermittelte Diffusion lagern sie sich zuerst zu Agglomeraten und später zu nanoskaligen Ausscheidungen, den Guinier-Preston-Bagaryatskii-Zonen (GPBZ), zusammen. Obwohl die GPBZ gut erforscht sind, ist über die frühen Agglomerate wenig bekannt. Durch ihre Elementselektivität ist die Dopplerspektroskopie gut geeignet, diese Strukturen aufzuklären. Bei der in-situ Untersuchung einer Ausscheidungssequenz in der Al-Cu-Mg Legierung AA2024 konnte ein unterschiedliches Zeitverhalten für Magnesium und Kupfer festgestellt werden, wodurch klar wurde, daß Mg nicht die Rolle eines Leerstellenfängers einnimmt, wie bisher vermutet wurde.

Zur Aufklärung der Struktur früher Agglomerate reicht die Positronenspektroskopie allein nicht aus. Um aus der Vielzahl denkbarer Konfigurationen die zu bestimmen, die in der Natur realisiert werden, sind theoretische Überlegungen nötig. Mit Elektronenstruktur-Rechnungen können die relaxierten Gitterpositionen einer Testkonfiguration bestimmt werden. Aus diesen Daten werden die Annihilationsparameter, d.h. die spezifische Lebensdauer und die Doppler-Kurve, berechnet, die dann mit den experimentellen Daten verglichen werden. Auf diese Weise lassen sich Konfigurationen ausschließen, die dem Experiment widersprechen. In einigen Fällen kann zwischen den übriggebliebenen Kandidaten nicht eindeutig entschieden werden, so daß komplementäre Methoden, wie die Röntgen-Absorptions-Spektroskopie (XAFS), herangezogen werden müssen. Durch den Vergleich von PAS- und XAFS-Daten mit gerechneten Konfigurationen konnte die frühe Ausscheidung in AA2024 als eine der S-Phase ( $\text{Al}_2\text{MgCu}$ ) ähnliche Struktur identifiziert werden.

## Ortsaufgelöster Wasserstoffnachweis in der Rißspitze

Bei der Rißbildung und beim Rißfortschritt in wechselbelasteten Bauteilen spielt außer den mechanischen Einflüssen auch die Korrosion eine große Rolle. Das bekannte Phänomen der Wasserstoffversprödung kann zum Teil katastrophale Auswirkungen auf die Betriebsfestigkeit von Werkstoffen haben. So wurde bei der Al-Mg-Si-Cu Legierung AA6013, die als schweißbare Al-Legierung seit einiger Zeit im Flugzeugbau Anwendung findet, ein bis zu viermal schnelleres Rißwachstum unter korrosiven Bedingungen festgestellt. Bei der Untersuchung plastischer Zonen in AA6013 mit der BPM konnte nachgewiesen werden, daß während der Ermüdung in die Rißspitze eindiffundierter Wasserstoff die Diffusion von Leerstellen bei Raumtemperatur behindert, und so ein dynamisches Ausheilen von Defekten unterdrückt.

Um diese Aussage zu untermauern, wäre ein direkter orts aufgelöster Nachweis des Wasserstoffs in der plastischen Zone wünschenswert. Dazu wurde eine Methode entwickelt, die den Wasserstoff über thermische Desorption nachweist (Wasserstoffsäge HSaw). In einem UHV-Rezipienten werden Späne aus der Probe herausgesägt, die in einen Tiegel fallen. Probenvorschub und Sägeblattantrieb sind miteinander synchronisiert, wobei eine Schrittweite von 10 Mikrometern erreicht wurde. Im Tiegel wird der herabgefallene Span erhitzt und die Konzentration der flüchtigen Bestandteile mit einem Massenspektrometer gemessen.

Eine der Schwierigkeiten einer solchen Messung ist die Unterscheidung des Wasserstoffs, der während der Ermüdung in die plastische Zone eindiffundiert, vom ohnehin in jedem Werkstoff vorhandenen Wasserstoff. Dazu wurden Ermüdungsrisse in AA6013 unter dem Einfluß eines deuterierten korrosiven Mediums erzeugt. Mit der HSaw wurden Schnitte durch die plastische Zone geführt, und die Ionenströme der Massen 1 bis 4 parallel aufgezeichnet. Aus diesen Ergebnissen kann ein Konzentrationsprofil der Isotope H und D bestimmt werden, das eindeutig das Vorhandensein von Deuterium im Bereich der plastischen Zone zeigt.

### Plastizität bei nichtmetallischen Werkstoffen

Die PAS ist bei der Untersuchung der Plastizität nicht auf metallische Werkstoffe beschränkt. Es wird an zwei Beispielen, Galliumarsenid (GaAs) und Quarz ( $\text{SiO}_2$ ), gezeigt, daß plastische Vorgänge auch an Halbleitern und Nichtleitern mit Positronen nachvollzogen werden können. Bei Einkorn-Ritzversuchen an GaAs-Wafern wurde die Deformation der Oberfläche sowie die Tiefe einer etwaigen Schädigung untersucht. Es stellte sich heraus, daß es beim Auftreffen des Korns auf die Wafer-Oberfläche durch hydrostatische Drücke zu einem Spröde-Duktil-Übergang des GaAs kommt, der eine eindeutige Signatur in den Positronendaten hinterläßt.

Beim Quarz ging es um die Ermüdung von Drucksensoren durch wechselnde Druckverformung. Solche Sensoren zeigen nach längerem Einsatz eine Degradation ihrer mechanischen Eigenschaften, insbesondere ein Nachlassen der Drucksensitivität. Mit PAS-Untersuchungen bei verschiedenen Stadien der Ermüdung konnte eine stark lokalisierte irreversible Schädigung des Kristallgitters nachgewiesen werden. Bei der aus  $\text{SiO}_4$ -Tetraedern aufgebauten Struktur kristallinen Quarzes basiert eine solche Schädigung auf Umordnung der Tetraeder, wobei sich das offene Volumen zwischen den Tetraedern vergrößert. Beim Positroniumbildner Quarz bewirkt dies einen Anstieg der Pick-Off Lebensdauer sowie eine Verschiebung des Verhältnisses zwischen  $3\gamma$ - und  $2\gamma$ -Zerfall des Ortho-Positroniums. Da dieses Verhältnis aus Doppler-Spektren bestimmt werden kann, konnte mit der BPM die Lokalisierung der Ermüdung auf einen kleinen Bereich des Sensors nachgewiesen werden.

### Vorhersage des Ermüdungsbruchs

Die Abschätzung der Restlebensdauer eines Werkstücks unter wechselnder Belastung ist sehr zeitaufwendig und erfordert eine Serie von zerstörenden Versuchen bei unterschiedlichen Lastniveaus. In dieser Arbeit wird eine alternative Methode vorgestellt, die sich die Tatsache zu Nutze macht, daß die Konzentration an Gitterfehlern während der Ermüdung ansteigt. Es wird davon ausgegangen, daß ein Ermüdungsriß dann entsteht, wenn lokal eine kritische Fehlstellendichte überschritten wird. Diese korrespondiert mit einem kritischen S-Parameter und kann damit in der direkten Umgebung eines Ermüdungsrisses bestimmt werden. Ist der Zusammenhang zwischen S-Parameter und Lastwechselzahl bei einem bestimmten Lastniveau erst einmal bekannt, kann der Zeitpunkt der Rißentstehung aus den Frühstadien der Ermüdung extrapoliert werden.

Anfängliche Experimente mit Positronenquellen im Umlauf-Biegeversuch an einem austenitischen Stahl zeigen einen linearen Verlauf des S-Parameters mit dem Logarithmus der Lastwechselzahl ( $\log(N)$ ). Dieses Ergebnis konnte mit einer Quellmessung nicht an einem Karbonstahl reproduziert werden, der im Vergleich zum Austeniten spröder ist und eine kleinere plastische Zone besitzt. Erst Messungen mit der BPM konnten auch hier einen linearen Zusammenhang zwischen dem S-Parameter und  $\log(N)$  bestätigen. In einem Blindversuch, bei dem die Lastwechselzahl der einzelnen Proben unbekannt war, konnte die Lastwechselzahl bis zum Bruch ( $N_f$ ) mittels Meßdaten aus dem ersten Prozent von  $N_f$  mit 20% Genauigkeit vorausgesagt werden. Diese Methodik ließ sich ohne Weiteres auf die Aluminium-Legierung AA6082 übertragen, wobei auch hier das tatsächliche  $N_f$  nur um 15% vom Vorhergesagten abwich. Auch beim hart-zähen Stahl A4T, der bei Radreifen an Eisenbahnwaggons zum Einsatz kommt, zeigte sich die Vorhersage erfolgreich, obwohl sich der Beginn des Ermüdungsrisse in diesem Fall nur abschätzen läßt, da die A4T-Probe eine Vielzahl von Mikrorissen ausgebildet hat, denen kein eindeutiger Versagenszeitpunkt zugeordnet werden konnte. Es ist nicht davon auszugehen, daß der bei den hier untersuchten Werkstoffen und Probengeometrien gefundene lineare Zusammenhang zwischen S-Parameter und  $\log(N)$  universelle Gültigkeit hat. Deshalb wäre die Unterstützung der Vorhersage durch ein Modell vorteilhaft, mit dem die Methode auf einfache Weise auf andere Werkstoffe übertragen werden kann. Es wird hier ein solches Modell vorgestellt, das auf dem Ansatz eines zellulären Automaten basiert. Jedes Korn eines Metalls entspricht dabei einer Zelle. Um die Rechenzeit für eine ausgedehnte Geometrie realistisch zu halten, wurden die inneren Eigenschaften eines Kornes auf einen Satz einiger weniger Parameter reduziert, wobei die sich bei jedem Lastwechsel akkumulierende plastische Verformung in einem Schadensparameter gespeichert wird. Die während eines Lastwechsels wirkenden Kräfte werden über eine oszillierende Dehnung des Gitters implementiert. Im jetzigen Zustand lassen sich mit dem Modell  $10^5$  Lastwechsel auf einem zweidimensionalen Gitter von  $100 \times 100$  Zellen mit einem handelsüblichen PC simulieren. Es ist zu erwarten, daß wirklichkeitsnahe Geometrien mit  $10^6$  Zellen und  $10^6 - 10^7$  Lastwechseln auf einem Großrechner simuliert werden können.

## Fazit

Aufgrund ihrer hohen Sensitivität für Gitterfehler mit offenem Volumen erweisen sich Positronen als vielseitige Sonden zur zerstörungsfreien Untersuchung plastisch verformter oder ermüdeter Werkstoffe. Darüber hinaus besitzt die Doppler-Spektroskopie eine chemische Sensitivität für die atomare Umgebung einer Fehlstelle. Dieser chemische Fingerabdruck ermöglicht – in Kombination mit numerischen Rechnungen und komplementären Methoden – in vielen Fällen die Aufklärung der Struktur von Positronenfallen.

Mit der Bonner Positronen-Mikrosonde (BPM) ist eine bildgebende Messung der Fehlstellenverteilung in Deformationszonen mit einer Ortsauflösung bis zu einem Mikrometer möglich. Mit Hilfe der BPM konnten plastische Zonen sowohl in metallischen Legierungen als auch in Halbleitern und ionischen Kristallen zerstörungsfrei abgebildet werden.

Bei der Ermüdung metallischer Werkstoffe wirken sich mikroskopische Veränderungen der Struktur bereits nach wenigen Lastwechseln auf die Zerstrahlungsparameter des Positrons aus. Das Materialversagen ist mit einer, vom Lastniveau unabhängigen, kritischen Konzentration an Punktdefekten assoziiert. Ist der Verlauf der Zerstrahlungsparameter mit der Lastwechselzahl für einen Werkstoff bekannt, kann das Materialversagen aus dem Anfangsstadium der Ermüdung extrapoliert werden. Damit erhält man eine zuverlässige und zerstörungsfreie Methode zur Abschätzung der Restlebensdauer eines Werkstücks.

# Literaturverzeichnis

- [1] R. Beringer, C.G. Montgomery, The Angular Distribution of Positron Annihilation Radiation, *Phys. Rev.* 61 (1942) 222
- [2] I.K. MacKenzie, C.F.O. Langstroth, B.T.A. McKee, C.G. White, Some Temperature Effects on Positron Annihilation in Metals, *Can. Journ. Phys.* 42 (1964) 1837
- [3] I.K. MacKenzie, T.L. Khoo, A.B. McDonald, B.T.A. McKee, Temperature Dependence of Positron Mean Lives in Metals, *Phys. Rev. Lett.* 19 (1967) 946
- [4] I.Ya. Dekhtyar, D.A. Levina, V.S. Mikhalekov, Electron-Positron Annihilation in Plastically Deformed Metals, *Sov. Phys. Dokl.* 9 (1964) 492
- [5] S. Berko, J.C. Erskine, Angular Distribution of Annihilation Radiation from Plastically Deformed Aluminum, *Phys. Rev. Lett.* 19 (1967) 307
- [6] D.C. Connors, R.N. West, Positron Annihilation and Defects in Metals, *Phys. Lett. A* 30 (1969) 24
- [7] J.C. Grosskreutz, W.E. Millett, The effect of cyclic deformation on positron lifetimes in copper and aluminum, *Phys. Lett. A* 28 (1969) 621
- [8] V.I. Goldanskii, Positron Annihilation, *Atom. Energy Rev.* 6 (1968) 183
- [9] R. West, Positron Studies of Condensed Matter, *Adv. Phys.* 22 (1973) 263
- [10] A. Seeger, The Study of Defects in Crystals by Positron Annihilation, *Appl. Phys.* 4 (1974) 183
- [11] P. Hautojärvi, Positrons in Solids, *Topics in Current Physics*, Vol. 12 Springer-Verlag, Berlin (1979)
- [12] L.C. Smedskjaer, M.J. Fluss, Experimental Methods of Positron Annihilation for the Study of Defects in Metals, in J.N. Mundy et al. (eds), *Methods of Experimental Physics*, Vol. 21, Academic Press, New York - London (1983)
- [13] P.J. Schultz, K.G. Lynn, Interaction of positron beams with surfaces, thin films and interfaces, *Rev. Mod. Phys.* 60 (1988) 701
- [14] H. Ullmaier (ed.) *Landolt-Börnstein, New Series III Vol. 25 Vacancies in Metals*, Springer-Verlag, Berlin(1991)
- [15] K. Maier, M. Peo, B. Saile, H.E. Schaefer, A. Seeger, High-temperature positron annihilation and vacancy formation in refractory metals, *Phil. Mag. A* 440 (1979) 701
- [16] R. Wüschum., W. Bauer, K. Maier, A. Seeger, H.E. Schaefer, Defects in semiconductors after electron irradiation or in high-temperature thermal equilibrium, as studied by positron annihilation, *J. Phys.: Condens. Matter* 1 (1989) SA33
- [17] J. Mader, S. Berko, H. Krakauer, A. Bansil, Electronic Momentum Densities by Two-Dimensional Angular Correlation of Annihilation Radiation in Aluminium, *Phys. Rev. Lett.* 37 (1976) 1232

- [18] S. Berko, M. Haghgooie J.J. Mader, Momentum Density Measurements with a new Multicounter Two-dimensional Angular Correlation of Annihilation Radiation Apparatus, *Phys. Lett. A*, 63 (1977) 335
- [19] R. Krause-Rehberg, H. Leipner, *Positron Annihilation in Semiconductors*, Springer-Verlag, Berlin (1999)
- [20] T.E.M. Staab, C. Zamponi, M. Haaks, I. Müller, S. Eichler, K. Maier, Spatially resolved detection of point defects in the vicinity of scratches on GaAs, *Mater. Sci. Forum*, 445-446 (2004) 510
- [21] K. Bennewitz, M. Haaks, T. Staab, S. Eisenberg, Th. Lampe, K. Maier, Positron Annihilation - a non destructive method for lifetime prediction in the field of dynamical material testing, *Z. f. Metallkd.* 93 (2002) 778
- [22] M. Haaks, J. Plöger, Abbildung der Schädigung in der Randzone mit Positronen als Sondenteilchen, in H.K. Tönshoff, C. Hollmann (eds.), *Hochgeschwindigkeitsspanen metallischer Werkstoffe*, Wiley-VCH, Weinheim, (2005) pp. 89
- [23] M. Haaks, Scanning Positron Microscopy: Non-destructive Imaging of Plastic Deformation in the Micron Range, *CIRP Annals - Manufacturing Technology* 57 (2008) 537
- [24] C.D. Anderson, The Positive Electron, *Phys. Rev.* 43 (1933) 491
- [25] C.M. Lederer, V. Shirley (eds.), *Table of Isotopes*, 7th ed. Wiley, New York (1978)
- [26] J.L. Campbell, T. E. Jackman, I.K. MacKenzie, C.W. Schulte, C.G. White, Radionuclide Emitters for Positron-Annihilation Studies of Condensed Matter, *Nucl. Instr. Meth.* 116 (1974) 369
- [27] I.K. MacKenzie, Experimental Methods of Annihilation Time and Energy Spectrometry, in W. Brandt, A. Dupasquier, *Positron Solid-State Physics*, North-Holland Publishing Co., Amsterdam (1983)
- [28] T.W. Burrows, Nuclear Data Sheets for A = 68, *Nuclear Data Sheets* 97 (2002) 1
- [29] M. Haaks, T.E.M. Staab, K. Maier, Analyzing the High-momentum Part of Positron Annihilation Doppler Spectra with a Single Germanium Detector, *Nucl. Instr. Meth. A* 569 (2006) 829
- [30] K.A. Keller, J. Lange, H. Münzel, G. Pfennig, Excitation functions for charged particle induced nuclear reactions, in H. Schopper (Ed.) *Landolt-Börnstein New Series*, Vol. 5b, Springer (1973)
- [31] N. Baron, B.L. Cohen, Activation Cross-Section of Deuteron induced reactions, *Phys. Rev.* 129 (1963) 2636.
- [32] P.M. Endt, Supplement to energy levels of A=21-44 Nuclei (VII), *Nucl. Phys. A* 633 (1998) 1
- [33] A. Zecca, Positron beam development and design, *Appl. Surf. Sci.* 194 (2002) 4
- [34] R.S. Vallery, P.A. Encarnacim, W.E. Frieze, D.W. Gidley, H.C. Griffin, M. Ludington, M. Skalsey, Fabrication of <sup>58</sup>Co positron sources, *Nucl. Instr. Meth. A* 353 (1994) 16
- [35] B.L. Brown, A cobalt 58 'slow positron generator', *Appl. Surf. Sci.* 116 (1997) 104

- [36] R. Xie, M. Petkov, D. Becker, K. Canter, F.M. Jacobsen, K.G. Lynn, R. Mills, L.O. Roellig, Production of a low energy positron beam using the  $^{12}\text{C}(\text{d},\text{n})^{13}\text{N}$  reaction, Nucl. Inst. Meth. B 93 (1994) 98
- [37] A.W. Hunt, L. Pilant, D.B. Cassidy, R. Tjossem, M. Shurtliff, M.H. Weber, K.G. Lynn, The development of the intense positron beam at Washington State University, Appl. Surf. Sci. 194 (2002) 296
- [38] Y. Itoh, K.H. Lee, T. Nakajyo, A. Goto, N. Nakanishi, M. Kase, I. Kanazawa, Y. Yamamoto, N. Oshima, Y. Ito, Slow positron production using the RIKEN AVF cyclotron, Appl. Surf. Sci. 85(1995)165
- [39] M. Hirose, M. Washio, K. Takahashi, Production of an intense slow positron beam using a compact cyclotron, Appl. Surf. Sci. 85 (1995) 111
- [40] Y. Itoh, Z.L. Peng, K.H. Lee, M. Ishii, A. Goto, N. Nakanishi, M. Kase, Y. Ito, Slow positron beam production by irradiation of  $\text{p}^+$ ,  $\text{d}^+$ , and  $\text{He}^{2+}$  on various targets, Appl. Surf. Sci. 116 (1997) 68
- [41] M. Hirose, T. Nakajyo, The SHI Slow Positron Beam Facility with a Compact Cyclotron, Apl. Surf. Sci. 149 (1999) 24
- [42] I. Fujiwara, Y. Itoh, R. Iwata, F. Saito, A. Goto,  $^{18}\text{F}$  intense spot positron source for spin polarized positron beam, Appl. Surf. Sci. 149 (1999) 30
- [43] T. Nozaki, Y. Itoh, Z.L. Peng, Y. Ito, N. Nakanishi, H. Yoshida, A. Goto, Preparation of Positron Source for Slow Positron Beam by Ion Bombardment on Liquid and Gas Targets, Mater. Sci. Forum. 255-257 (1997) 799
- [44] F. Saito, Y. Nagashima, T. Kurihara, I. Fujiwara, R. Iwata, N. Suzuki, Y. Itoh, A. Goto, T. Hyodo, Spot  $^{18}\text{F}$  positron source electro-deposited on a graphite rod, Nucl. Inst. Meth. 450 (2000) 491
- [45] G. Barbiellini, G. Petrucci, Very high intensity positron beam generated by LEP synchrotron radiation, Appl. Surf. Sci. 116 (1997) 49
- [46] P. Csonka, Undulators for efficient positron production, Rad. Phys. Chem 68 (2003) 663
- [47] H.M. Chen, Y.C. Jean, C.D. Jonah, S. Chemerisov, A.F. Wagner, D.M. Schrader, A.W. Hunt, Intense slow positron production at the 15 MeV LINAC at Argonne National Laboratory, Appl. Surf. Sci. 252 (2006) 3165
- [48] D.G. Costello, D.E. Groce, D.F. Herring, J.W. McGowan, Evidence for the Negative Work Function Associated with Positrons in Gold, Phys. Rev. B 5 (1972) 1433
- [49] T. Akahane, T. Chiba, N. Shiotani, S. Tanigawa, T. Mikado, R. Suzuki, M. Chiwaki, T. Yamazaki, T. Tomimasu, Stretching of Slow Positron Pulses Generated with an Electron Linac, Appl. Phys. A 51 (1990) 146
- [50] R. Suzuki, T. Ohdaira, T. Mikado, H. Ohgaki, M. Chiwaki, T. Yamazaki, Control and measurement system for positron experiments at the ETL linac facility, Appl. Surf. Sci. 116 (1997) 187
- [51] R.H. Howell, I.J. Rosenberg, M.J. Fluss, Production and Use of Low-Energy, Monoenergetic Positron Beams from Electron LINACS, Appl. Phys. A 43 (1987) 247

- [52] C.D. Jonah, S. Chemerisov, J. Long, W. Gai, Y.C. Jean, D. Schrader, Development of the Argonne positron source APosS, *Appl. Surf. Sci.* 255 (2008) 25
- [53] R. Krause-Rehberg, S. Sachert, G. Brauer, A. Rogov, K. Noack, EPOS - An intense positron beam project at the ELBE radiation source in Rossendorf, *Appl. Surf. Sci.* 252 (2006) 3106
- [54] R. Krause-Rehberg, G. Brauer, M. Jungmann, A. Krille, A. Rogov, K. Noack, Progress of the intense positron beam project EPOS, *Appl. Surf. Sci.* 255 (2008) 22
- [55] R.H. Howell, R.A. Alvarez, M. Stanek, Production of slow positrons with a 100 MeV electron linac, *Appl. Phys. Lett.* 40 (1982) 751
- [56] T. Kurihara, A. Shirakawa, A. Enomoto, T. Shidara, H. Kobayashi, K. Nakahara, An overview of the slow-positron beam facility at the photon factory, KEK, *Appl. Surf. Sci.* 85 (1995) 178
- [57] T. Kurihara, The Positron Beams at KEK, *Mater. Sci. Forum* 363-365 (2001) 433
- [58] B. Wang, X. Cao, R. Yu, C. Wie, Z. Zhang, C. Ma, T. Chang, G. Pei, J. Li, L. Zheng, L. Wie, T. Wang, Y. He, W. Yu, S. Zhu, The Slow Positron Beam Based on Beijing Electron-Positron Collider, *Mater. Sci. Forum* 445-446 (2004) 513
- [59] B.Y. Wang, Y.Y. Maa, Z. Zhang, R.S. Yu, P. Wang, Performance of the Beijing pulsed variable-energy positron beam, *Appl. Surf. Sci.* 255 (2008) 119
- [60] A. van Veen, H. Schut, J. de Roode, F. Labohm, C.V. Falub, S.W.H. Eijt, P.E. Mijnarends, Intense Positron Sources and their Applications, *Mat. Sci. Forum* 363-365 (2001) 415
- [61] H. Schut, A. van Veen, C.V. Falub, J. de Roode, F. Labohm, Performance of an Intense Nuclear-Reactor Based Positron Beam, *Mat. Sci. Forum* 363-365 (2001) 430
- [62] A. van Veen, F. Labohm, H. Schut, J. de Roode, T. Heijenga, P.E. Mijnarends, Testing of a nuclear-reactor-based positron beam, *Appl. Surf. Sci.* 116 (1997) 39
- [63] B. Krusche, K. Schreckenbach, Intense positron sources by pair creation with neutron capture  $\gamma$ -rays, *Nucl. Instr. Meth. A* 295 (1990) 155
- [64] G. Triftshäuser, G. Kögel, W. Triftshäuser, M. Springer, B. Straßer, K. Schreckenbach, A high intense reactor based positron source, *Appl. Surf. Sci.* 116 (1997) 45
- [65] C. Hugenschmidt, G. Kögel, R. Repper, K. Schreckenbach, P. Sperr, B. Straßer, W. Triftshäuser, The neutron induced positron source at Munich – NEPOMUC, *Nucl. Instr. Meth. B* 221 (2004) 160
- [66] C. Hugenschmidt, K. Schreckenbach, M. Stadlbauer, B. Straßer, First positron experiments at NEPOMUC, *Appl. Surf. Sci.* 252 (2006) 3098
- [67] F.A. Selim, D.P. Wells, J.F. Harmon, J. Kwofie, G. Erikson, T. Roney, New positron annihilation spectroscopy techniques for thick materials, *Rad. Chem. Phys.* 68 (2003) 427
- [68] T. Hirade, H. Toyokawa, T. Ohdaira, R. Suzuki, H. Ohgaki, Positron Annihilation Methods by  $\gamma$ -Rays Produced in laser-induced Compton-Backscattering, *Mater. Sci. Forum* 445-446 (2004) 474



- [69] R.M. Nieminen, J. Oliva, Theory of positronium formation and positron emission at metal surfaces, *Phys. Rev. B* 22 (1980) 2226
- [70] A. Perkins, J.P. Carbotte, Effects of the Positron-Phonon Interaction on Positron Matter, *Phys. Rev. B* 1 (1970) 101
- [71] C.H. Hodges, Trapping of Positrons at Vacancies in Metals, *Phys. Rev. Lett.* 25 (1970) 284
- [72] K.G. Lynn, W.E. Friese, P.J. Schultz, Measurement of the Positron Surface-State Lifetime for Al, *Phys. Rev. Lett.* 52 (1984) 1137
- [73] A.H. Weiss, P.G. Coleman, Surface Science with Positrons, in P.G. Coleman (ed.), *Positron Beams and Their Applications*, World Scientific Publishing Co., Singapore (2000)
- [74] A.P. Mills, Positron and Positronium Emission Spectroscopy, in: A. Dupasquier, A.P. Mills (eds.), *Positron Spectroscopy of Solids*, IOS Press, Amsterdam (1995), pp. 209
- [75] A. Weiss, R. Mayer, M. Jibaly, C. Lei, D. Mehl, K.G. Lynn, Auger-Electron Emission Resulting from the Annihilation of Core Electrons with Low-Energy Positrons, *Phys. Rev. Lett.* 61 (1988) 2245
- [76] A. Weiss, Positron-Annihilation-Induced Auger Electron Spectroscopy, in: A. Dupasquier, A.P. Mills (eds.), *Positron Spectroscopy of Solids*, IOS Press, Amsterdam (1995), pp. 259
- [77] J. Van House, A. Rich, Surface Investigations Using the Positron Reemission Microscope, *Phys. Rev. Lett.* 61 (1988) 488
- [78] G.R. Brandes, K.F. Canter, A.P. Mills, Submicron-Resolution Study of a Thin Ni Crystal Using a Brightness-Enhanced Positron Reemission Microscope, *Phys. Rev. Lett.* 61 (1988) 492
- [79] T. Ohdaira, R. Suzuki, T. Mikado, Time-of-Flight Analysis of Positron-Annihilation Induced Auger-Electrons and Re-Emitted Positrons, *Mater. Sci. Forum* 363-365 (2001) 542
- [80] C. Hugenschmidt, S. Legl, A Novel Time-of-flight Spectrometer for the Analysis of Positron Annihilation Induced Auger-Electrons, *Rev. Sci. Instr.* 77 (2006) 103904
- [81] L. Kim, R.H. Pratt, S.M. Seltzer, M.J. Berger, Ratio of positron to electron bremsstrahlung energy loss - An approximate scaling law, *Phys. Rev. A* 33 (1986) 3002
- [82] S.M. Seltzer, M.J. Berger, Transmission and reflection of electrons by foils, *Nucl. Instr. Meth.* 119 (1974) 157
- [83] E. J. Woll, J.P. Carbotte, Relaxation of Positron Momentum Distribution in Metals, *Phys. Rev.* 164 (1967) 985
- [84] P. Kubica, A.T. Stewart, Thermalization of Positrons and Positronium, *Phys. Rev. Lett.* 34 (1975) 852
- [85] G.E. Lee-Whiting, Thermalization of Positrons in Metals, *Phys. Rev.* 97 (1955) 1557

- [86] S.L. Adler, Theory of the Range of Hot Electrons in Real Metals, *Phys. Rev.* 130 (1963) 1654
- [87] K.O. Jensen, A.B. Walker, Positron thermalization and non-thermal trapping in metals, *J. Phys. Condens. Matter* 2 (1990) 9757
- [88] A.F. Makhov, The penetration of electrons into solids, *Sov. Phys. Solid State* 2 (1961) 1934, 1942, 1945
- [89] S. Valkealathi, R.M. Nieminen, Monte Carlo calculations of keV electron and positron slowing down in solids II, *Appl. Phys. A* 35 (1984) 51
- [90] K.O. Jensen, A.B. Walker, Monte Carlo simulation of the transport of fast electrons and positrons in solids, *Surf. Sci.* 292 (1993) 83
- [91] A. Vehanen, K. Saarinen, P. Hautojärvi, H. Huomo, Profiling multilayer structures with monoenergetic positrons, *Phys. Rev. B* 35 (1987) 4606
- [92] K.A. Ritley, K.G. Lynn, V.J. Ghosh, D.O. Welch, M. McKeown, Low-energy contributions to positron implantation, *J. Appl. Phys.* 74 (1993) 3479
- [93] M.J. Puska, R.M. Nieminen, Theory of positrons in solids and on solid surfaces, *Rev. Mod. Phys.* 66 (1994) 841
- [94] V.J. Ghosh, Positron implantation profiles in elemental and multilayer systems, *Appl. Surf. Sci.* 85 (1995) 187
- [95] Y.C. Wu, X.H. Zhang, Y.C. Jean, R. Suzuki, T. Ohdaira, Positron Annihilation Study on Hydrogen-Induced Defects in AISI 304 Stainless Steel, *Mater. Sci. Forum* 445-446 (2004) 213
- [96] C. Hübner, T. Staab, R. Krause-Rehberg, Positron diffusion in fine-grained materials – A Monte-Carlo simulation, *Appl. Phys. A* 61 (1995) 203
- [97] E. Soininen, H. Houmo, P.A. Huttunen, J. Mäkinen, A. Vehanen, P. Hautojärvi, Temperature dependence of positron diffusion in cubic metals, *Phys. Rev. B* 41 (1990) 6227
- [98] A. Seeger, Investigation of point defects in equilibrium concentrations with particular reference to positron annihilation techniques, *J. Phys. F* 3 (1973) 248
- [99] T. Wider, S. Hansen, U. Holzwarth, K. Maier, Sensitivity of positron annihilation to plastic deformation, *Phys. Rev.* 57 (1998) 5126
- [100] T.E.M. Staab, R. Krause-Rehberg, B. Kieback, Positron annihilation in fine-grained materials and fine powders – An application to the sintering of metal powders, *J. Mater. Sci.* 33 (1999) 3833
- [101] V.I. Gol'danskii, E.P. Prokop'ev, Annihilation of positrons in alkali halide crystals, *Sov. Phys. Solid State* 6 (1965) 2641
- [102] L.C. Smedskjaer, M. Manninen, M.J. Fluss, An alternative interpretation of positron annihilation in dislocations, *J. Phys. F* 10 (1980) 2237
- [103] C. Hidalgo, S. Linderöth, Dislocations in Cd studied by positron annihilation spectroscopy, *J. Phys F* 18 (1988) L263
- [104] K. Petersen, I.A. Repin and G. Trumphy, Positron lifetime analysis of dislocations arising from tensile strain, *J. Phys. Condens Matter* 8 (1996) 2815

- [105] W. Brandt, Positron Annihilation in Molecular Substances and Ionic Crystals, in A.T. Stewart, A.T. Stewart, L.O. Roellig (eds.), Positron Annihilation, Academic Press, New York, London (1967) pp. 155
- [106] W. Frank, A. Seeger, Theoretical foundation and extension of the trapping model, Appl. Phys. 3 (1974) 61
- [107] B. Bergensen, T. McMullen, Positron Trapping at Dislocations in Metals, Solid State Commun. 24 (1977) 421
- [108] E. Hashimoto, T. Kino, Temperature Dependence of Positron Trapping to Dislocations in Aluminum, J. Phys. Soc. Japan 60 (1993) 552
- [109] A.H. Cottrell, Dislocations and Plastic Flow in Crystals, Clarendon Press, Oxford (1953)
- [110] T. Wider, K. Maier, U. Holzwarth, Temperature-dependent positron trapping in copper and aluminum tubes after tensile deformation, Phys. Rev. B 60 (1999) 179
- [111] B. Korff, persönliche Mitteilung (2007)
- [112] M.J. Puska, R.M. Nieminen, Defect spectroscopy with positrons: a general calculational method, J. Phys. F 13 (1983) 333
- [113] S. DeBenedetti, C. Cowan, W. Konneker, Angular Distribution of Annihilation Radiation, Phys. Rev., 76 (1949) 440
- [114] M. Alatalo, H. Kauppinen, K. Saarinen, M.J. Puska, J. Makinen, P. Hautojärvi, R.M. Nieminen, Identification of vacancy defects in compound semiconductors by core-electron annihilation: Application to InP, Phys. Rev. B 51 (1995) 7
- [115] B. Somieski, T.E.M. Staab, R. Krause-Rehberg, The data treatment influence on the spectra decomposition in positron lifetime spectroscopy Part 1: On the interpretation of multi-component analysis studied by Monte Carlo simulated model spectra, Nucl. Instr. Meth. A 381 (1996) 128
- [116] P. Kirkegaard, M. Eldrup, Positronfit: A versatile program for analysing positron lifetime spectra, Comput. Phys. Commun. 3 (1972) 240
- [117] J. Kansy, Microcomputer program for analysis of positron annihilation lifetime spectra, Nucl. Instr. and Meth. A 374 (1996) 235
- [118] J. Dryzek, J. Kansy, Comparison of three programs: Positronfit, Resolution and LT used for deconvolution of positron lifetime spectra, Nucl. Instr. and Meth. A 380 (1996) 576
- [119] K. Saarinen, P. Hautojärvi, A. Vehanen, R. Krause, G. Dlubek, Shallow positron traps in GaAs, Phys. Rev. B 39 (1989) 5287
- [120] M. Moszynski, Study of light collection process from cylindrical scintillators, Nucl. Instr. Meth 134 (1976) 77
- [121] P. Schotanus, G. Stam, E. Gerritse, B. Utts, B. Briaux, Scintillation Detectors, Harshaw QS – Scintillation Detector Catalog, Saint Gobain – Ceramiques Industrielles (1992)
- [122] L. Dorikens-Vanpraet, D. Seegers, M. Dorikens, The influence of geometry on the resolution of a positron annihilation lifetime spectrometer, Appl. Phys. 23 (1980) 149

- [123] W.W. Moses, Current trends in scintillator detectors and materials, Nucl. Instr. Meth. A 487 (2002) 123
- [124] M. Moszynski, M. Kapusta, M. Mayhugh, D. Wolski, S.O. Flyckt, Absolute light output of scintillators, IEEE Trans. Nucl. Sci. 44 (1997) 1052
- [125] A. Lempicki, J. Glodo, Ce-doped scintillators: LSO and LuAP, Nucl. Instr. Meth A 416 (1998) 333
- [126] A.J. Wojtowicz, W. Drozdowski, D. Wisniewski, J.-L. Lefaucheur, Z. Galazka, Z. Gou, T. Lukasiewicz, J. Kisielewski, Scintillation properties of selected oxide monocrystals activated with Ce and Pr, Opt. Mater. 28 (2006) 85
- [127] M. Haaks, R. Valentini, R. Vianden, First test of LSO scintillators for Positron Lifetime Spectroscopy, phys. stat. sol. (c) 4 (2007) 4036
- [128] R.E. Bell, R.L. Graham, Time Distribution of Positron Annihilation in Liquids and Solids, Phys. Rev. 90 (1953) 644
- [129] K. Maier, R. Myllylä, Positron Lifetime Spectrometer with  $\beta^+$ - $\gamma$ -coincidence, Proc. 5th International Conference on Positron Annihilation (1979) 829
- [130] S. Hansen, U. Holzwarth, M. Tongbhoyai, T. Wider, K. Maier, A mobile positron-lifetime spectrometer for field applications based on  $\beta^+$ - $\gamma$  coincidence, Appl. Phys. A 65 (1997) 47
- [131] U. Holzwarth, A. Barbieri, S. Hansen-Ilzhöfer, P. Schaaff, M. Haaks, Positron annihilation studies on the migration of deformation induced vacancies in stainless steel AISI 316 L, Appl. Phys. A 73 (2001) 467
- [132] U. Holzwarth, P. Schaaff, Nondestructive monitoring of fatigue damage evolution in austenitic stainless steel by positron-lifetime measurements, Phys. Rev. B 69 (2004) 094110
- [133] H. Zaidi, C. Labbé, C. Morel, Improvement of the performance and accuracy of PET Monte Carlo simulations, Proceedings of the SPIE Conference on Physics of Medical Imaging: Proc. SPIE 3659 (1999) 582
- [134] G. Murray, The Doppler broadening of annihilation radiation, Phys. Lett. B 24 (1967) 258
- [135] H.P. Hotz, J.M. Mathiesen, J.P. Hurley, Measurement of Positron Annihilation Line Shapes with a Ge(Li) Detector, Phys. Rev. 170 (1967) 351
- [136] I.K. MacKenzie, J.A. Eady, R.R. Gingerich, The Interaction Between Positrons and Dislocations in Cooper and in Aluminum Alloy, Phys. Lett. A 33 (1970) 279
- [137] S. Mantl, W. Triftshäuser, Defect annealing studies on metals by positron annihilation and electrical resistivity measurements, Phys. Rev. B 17 (1978) 1645
- [138] J.L. Campbell, Annihilation gamma-ray lineshape parameters, Appl. Phys. 13 (1977) 365
- [139] C. Zamponi, S. Sonneberger, M. Haaks, I. Müller, T. Staab, G. Tempus, K. Maier, Investigation of fatigue cracks in aluminium alloys 2024 and 6013 in laboratory air and corrosive environment, J. Mater. Sci. 39 (2004) 6951

- [140] M. Clement, J.M.M. Nijs, P. Balk, H. Schut, A. van Veen, Analysis of positron beam data by the combined use of the shape- and wing-parameters, *J. Appl. Phys.* 79 (1996) 9029
- [141] M. Clement, J.M.M. Nijs, P. Balk, H. Schut, A. van Veen, Transport of positrons in the electrically biased metal-oxide-silicon system, *J. Appl. Phys.* 81 (1997) 1943
- [142] F. Börner, S. Eichler, A. Polity, R. Krause-Rehberg, R. Hammer, M. Jurisch, Large-depth defect profiling in GaAs wafers after saw cutting, *Appl. Surf. Sci.* 149 (1999) 151
- [143] S. Eichler, R. Krause-Rehberg, Comparison of experimental and theoretical Doppler broadening line-shape parameters, *Appl. Surf. Sci.* 149 (1999) 227
- [144] C. Hugenschmidt, U. Holzwarth, M. Jansen, S. Kohn, K. Maier, Crystallization of silica studied by positron annihilation, *J. Non-Cryst. Solid* 217 (1997) 72
- [145] F. Faupel, J. Kanzow, K. Günther-Schade, C. Nagel, P. Sperr, G. Kögel, Positron Annihilation Spectroscopy in Polymers, *Mater. Sci. Forum* 445-446 (2004) 219
- [146] S.J. Tao, Positronium Annihilation in Molecular Substances, *J. Chem. Phys.* 56 (1972) 5499
- [147] M. Eldrup, D. Lighthbody, J.N. Sherwood, The temperature dependence of positron lifetimes in solid pivalic acid, *J. Chem. Phys.* 63 (1981) 51
- [148] M. Weber, K.G. Lynn, Positron Porosimetry, in Y.C. Jean et al. (eds.) *Positron and Positronium Chemistry*, World Scientific, Singapore (2003), pp.167
- [149] S.V. Stepanov, V.M. Byakow, Physical and Radiation Chemistry of the Positron and Positronium, in Y.C. Jean et al. (eds.) *Positron and Positronium Chemistry*, World Scientific, Singapore (2003), pp.117
- [150] C. Dauwe, B. Van Waeyenberge, N. Balcaen, Positronium formation in poly(methyl methacrylat), *Phys. Rev. B* 68 (2003) 132202
- [151] C. Dauwe, B. van Waeyenberge, J. de Braedemakers, Experimental Verification of the Blob Model and Delayed Formation of Ps, *Acta Phys. Pol. A* 107 (2005) 623
- [152] A. Bisi, A. Fiorentini, E. Gatti, L. Zappa, Magnetic Quenching of Positronium in Solids and Positron Helicity, *Phys. Rev.* 128 (1962) 2195
- [153] G. Consolati, F. Quasso, Magnetic quenching of the three-photon annihilation rate in some molecular solids, *Phys. Rev. B* 50 (1994) 5848
- [154] O. Halpern, Magnetic Quenching of the Positronium Decay, *Phys. Rev.* 94 (1954) 904
- [155] R.L. Garwin, Thermalization of Positrons in Metals, *Phys. Rev.* 91 (1953) 157
- [156] M. Dresden, Speculations on the Behavior of Positrons in Superconductors, *Phys. Rev.* 93 (1954) 1413
- [157] A. Seeger, Challenges to Positron and Positronium Physics by Material Science, *Mater. Sci. Forum*, 255-257 (1997) 1
- [158] A.P. Mills, Positronium Formation at Surfaces, *Phys. Rev. Lett.* 41 (1978) 1828
- [159] U. Fano, Ionization Yield of Radiations. II. The Fluctuations of the Number of Ions, *Phys. Rev.* 72 (1947) 1
- [160] L.A. McNelles, J.L. Campbell, Analytic approximations to peak shapes produced by Ge(Li) and Si(Li) spectrometers, *Nucl. Instr. and Meth.* 127 (1975) 73

- [161] D.C. Tennant, P. Martel, W.J.L. Buyers, S.M. Kim, Automatic corrections for deadtime effects and lineshape changes due to source decay in positron-annihilation experiments, *Nucl. Instr. Meth.* 118 (1974) 367
- [162] F. Ajzenberg-Selove, Energy Levels of the Light Nuclei  $A=5-10$ , *Nucl. Phys. A* 320 (1979) 1
- [163] W. Press, S. Teukolski, W. Vetterling, B. Flannery, *Numerical Recipes in C*, Cambridge University Press (1999)
- [164] R.G. Helmer, C.M. McCullagh, GAUSS VII, a computer program for the analysis of  $\gamma$ -ray spectra from Ge semiconductor spectrometers, *Nucl. Instr. Meth.* 206 (1983) 477
- [165] D.W. Marquardt, An algorithm for least-squares estimation of non-linear parameters, *J. Soc. Ind. Appl. Math.* 11 (1963) 431
- [166] R.G. Helmer, C.M. McCullagh, GAUSS VII, a computer program for the analysis of  $\gamma$ -ray spectra from Ge semiconductor spectrometers, *Nucl. Instr. Meth.* 206 (1983) 477
- [167] R.G. Helmer, M.A. Lee, Analytical functions for fitting peaks from Ge semiconductor detectors, *Nucl. Instr. Meth.* 178 (1980) 499
- [168] G.W. Phillips, K.W. Marlow, Automatic analysis of gamma-ray spectra from germanium detectors, *Nucl. Instr. Meth.* 137 (1976) 525
- [169] J.A. Jackman, I.K. MacKenzie, J.L. Campbell, H.H. Jorch, Analytic fitting of full-energy peaks in Ge(Li) spectra at high count rates, *Nucl. Instr. Meth.* 172 (1980) 583
- [170] M. Rasulbaev, K. Maier, R. Vianden, T. Thümmler, B. Ostrick, C. Weinheimer, Production of  $^{83}\text{Rb}$  for the KATRIN experiment, *Appl. Radiat. Isotopes*, to be submitted (2007)
- [171] M. Alatalo, B. Barbiellini, M. Hakala, H. Kauppinen, T. Korhonen, M.J. Puska, K. Saarinen, P. Hautojärvi, R.M. Nieminen, Theoretical and experimental study of positron annihilation with core electrons in solids, *Phys. Rev. B* 54 (1996) 2397
- [172] W. Egger, G. Bischof, V. Gröger, G. Krexner, Identification of Defect Sites in FeAl by Doppler Spectroscopy of Core Electrons, *Mater. Sci. Forum* 363-365 (2001) 82
- [173] Y. Nagai, T. Honma, Z. Tang, K. Hono, M. Hasegawa, Coincidence Doppler broadening study of the pre-precipitation stage of an Al-Cu-Mg-Ag alloy, *Phil. Mag. A* 82 (2002) 1559
- [174] Y. Nagai, Z. Tang, H. Ohkubo, K. Takadate, M. Hasegawa, Elemental analysis of positron affinitive site in materials by coincidence Doppler broadening spectroscopy, *Rad. Phys. Chem.* 68 (2003) 381
- [175] K.G. Lynn, J.R. MacDonald, R.A. Boie, L.C. Feldman, J.D. Gabbe, M.F. Robbins, E. Bonderup, J. Golovchenko, Positron-Annihilation Momentum Profiles in Aluminum: Core Contribution and the Independent-Particle Model, *Phys. Rev. Lett.* 38 (1977) 241
- [176] K.G. Lynn, J.E. Dickman, W.L. Brown, M.F. Robbins, E. Bonderup, Vacancies studied by positron annihilation with high-momentum core electrons, *Phys. Rev. B* 20 (1979) 3566
- [177] S. Matsui, Precise Radiation Energy and Core Electron Contribution of Positron Annihilation in Al Studied with Two Ge(Li) Detectors, *J. Phys. Soc. Jpn.* 61 (1992) 187

- [178] M. Haaks T.E.M. Staab, K. Saarinen, K. Maier, Chemical sensitivity in positron annihilation with just one single Ge detector, *phys. stat. sol. (a)* 202 (2005) R38
- [179] M. Haaks, T.E.M. Staab, High Momentum Analysis in Doppler Spectroscopy, *Appl. Surf. Sci.* 255 (2008) 84
- [180] P.E. Mijnders, A.C. Kruseman, A. van Veen, V.J. Ghosh, P. Asoka-Kumar, A. Bansil, S. Kaprzyk, K.G. Lynn, Two-Detector Doppler Broadening Profiles in Al, *Mater. Sci. Forum* 255-257 (1999) 784
- [181] P. Asoka-Kumar, M. Alatalo, V.J. Ghosh, A.C. Kruseman, B. Nielsen, K.G. Lynn, Increased Elemental Specificity of Positron Annihilation Spectra, *Phys. Rev. Lett* 77 (1996) 2097
- [182] J.C. Dow, J.P. Lestone, R.B. Taylor, I. Whittingham, Small-angle Compton scattering of gamma rays by atoms, *J. Phys. B* 21 (1988) 2425
- [183] A.C. Kruseman, H. Schut, A. van Veen, P.E. Mijnders, M. Clement, J.M.M de Nijs, Positron beam analysis of semiconductor materials using a two-detector coincidence system, *Appl. Surf. Sci.* 116 (1997) 192
- [184] V.J. Ghosh, B. Nielsen, A.C. Kruseman, P.E. Mijnders, A. van Veen, K.G. Lynn, The effect of the detector resolution on the Doppler broadening measurements of both valence and core electron-positron annihilation, *Appl. Surf. Sci.* 149 (1999) 234
- [185] J. Gebauer, R. Krause-Rehberg, S. Eichler, F. Börner, Doppler broadening spectroscopy using the FAST-ComTec two-dimensional coincidence system: a case study, *Appl. Surf. Sci.* 149 (1999) 110
- [186] M. Haaks, T.E.M. Staab, On the Evaluation of Coincidence Doppler Spectra, in preparation for *Nucl. Instr. Meth.* (2009)
- [187] L. Varnell, J. Trischuk, A peak-fitting and calibration program for Ge(Li) detectors, *Nucl. Instr. Meth.* 76 (1969) 109
- [188] A. Artna-Cohen, Nuclear Data Sheets for A = 152, *Nuclear Data Sheets* 79 (1996) 1
- [189] J. Dryzek, C.A. Quarles, A spectrometer for the measurement of the Doppler broadening of the annihilation radiation line with efficient reduction of background, *Nucl. Instr. Meth. A* 378 (1996) 337
- [190] M. Hakala, Computational scheme for core-electron annihilation in solids, Master Thesis, Helsinki University of Technology, Finland (1996)
- [191] I. Makkonen, M. Hakala, M.J. Puska, Modeling the momentum distributions of annihilating electron-positron pairs in solids, *Phys. Rev. B* 73 (2006) 035103
- [192] P. Hohenberg, W. Kohn, Inhomogeneous Electron Gas, *Phys. Rev.* 136 (1964) B864
- [193] W. Kohn, L.J. Sham, Self-Consistent Equations Including Exchange and Correlation Effects, *Phys. Rev.* 140 (1965) A1133
- [194] L. Hedin, B.I. Lundqvist, Explicit local exchange-correlation potentials, *J. Phys. C* 4 (1971) 2064
- [195] E. Boroński, R.M. Nieminen, Electron-positron density-functional theory, *Phys. Rev. B* 34 (1986) 3820

- [196] P. Valminen, Positron parameter calculations using the {TB-LMTO-ASA} software, Special Assignment, Helsinki University of Technology, Department of Technical Physics (2002)
- [197] B. Korff, persönliche Mitteilung (2007)
- [198] A. Wilm, Physikalisch-metallurgische Untersuchungen über magnesiumhaltige Aluminiumlegierungen, Metallurgie 8 (1911) 225
- [199] A. Guinier, La diffraction des rayons X aux très petits angles: Application a l'étude de phénomènes ultramicroscopiques, Ann. Phys. 12 (1939) 161
- [200] G. D. Preston, The Diffraction of X-Rays by Age-Hardening Aluminium Copper Alloys, Proc. Roy. Soc. A 167 (1938) 526
- [201] J.M. Silcock, The Structural Ageing Characteristics of Al-Cu-Mg Alloys with Copper: Magnesium Weight Ratios of 7:1 and 2.2:1, J. Inst. Met. (1960) 203
- [202] M.J. Starink, S.C. Wang, The thermodynamics of and strengthening due to co-clusters: General theory and application to the case of Al-Cu-Mg alloys, Acta Mater. 47 (2009) 2376
- [203] R.J. Rioja, D.E. Laughlin, The early stages of GP zone formation in naturally aged Al-4 wt pct Cu alloys, Metal. Trans A 8 (1977) 1257
- [204] G.H. Bray, M. Glazov, R.J. Rioja, D. Li, R.P. Gangloff, Effect of artificial aging on the fatigue crack propagation resistance of 2000 series aluminum alloys, Int. J. Fatigue 23 (2001) S265
- [205] S.C. Wang, M.J. Starink, Precipitates and intermetallic phases in precipitation hardening Al-Cu-Mg-(Li) based alloys, Int. Mater. Rev. 50 (2005) 193
- [206] S.C. Wang, M.J. Starink, The assessment of GPB2/S'' structures in Al-Cu-Mg alloys, Mater. Sci. Eng A 386 (2004) 156
- [207] S.P. Ringer, K. Hono, Microstructural Evolution and Age Hardening in Aluminium Alloys - Atom Probe Field-Ion Microscopy and Transmission Electron Microscopy Studies, Mater. Char. 44 (2000) 101
- [208] H. Perlitz, A. Westgren, The crystal structure of Al<sub>2</sub>CuMg, Arkiv Kemi Mineral. Geol. 16B (1943) 13
- [209] Yu.A. Bagaryatskii, The Mechanism of Artificial Aging of Al-Cu-Mg Alloys, Dokl. Akad. Nauk CCCP 87 (1952) 397
- [210] Yu.A. Bagaryatskii, About the Natural Aging of Al Alloys, Dokl. Akad. Nauk CCCP 87 (1952) 559
- [211] C. Wolverton, Crystal structure and stability of complex precipitate phases in Al-Cu-Mg-(Si) and Al-Zn-Mg alloys, Acta Mat. 49 (2001) 3129
- [212] H.S. Kim, S.P. Ringer, On the Crystal Structure of the S-phase Precipitate in Al-Cu-Mg Alloy, Microsc. Microanal. 11 (2005) 1688
- [213] G. Dlubek, O. Kabisch, O. Brümmer, and H. Löffler, Precipitation and dissolution processes in age-hardenable Al alloys - a comparison of positron annihilation and X-ray small-angle scattering investigations I. Al - Zn(x) (x = 3, 4.5, 6, 10, and 18 at%), phys. stat. sol. (a) 55 (1979) 509



- [214] A. Dupasquier, P. Folegati, N. de Diego, A. Somoza, Current positron studies of structural modifications in age-hardenable metallic systems, *J. Phys.: Condens. Matter* 10 (1998) 10409
- [215] T.E.M. Staab, M. Haaks, H. Modrow, Early precipitation stages of aluminum alloys — the role of quenched-in vacancies, *Appl. Surf. Sci.* 255 (2008) 132
- [216] C. Volverton, Solute–vacancy binding in aluminum, *Acta Met.* 55 (2007) 5867
- [217] J.M. Soler, E. Artacho, J.D. Gale, A. García, J. Junquera, P. Ordejón, D. Sánchez-Portal, The SIESTA method for ab initio order-N materials simulation, *J. Phys. F* 14 (2002) 2745
- [218] B. Lengeler, P. Eisenberger, Extended x-ray absorption fine structure analysis of interatomic distances, coordination numbers, and mean relative displacements in disordered alloys, *Phys. Rev. B* 21 (1980) 4507
- [219] A.L. Ankudinov, B. Ravel, J.J. Rehr, S.D. Conradson, Real-space multiple-scattering calculation and interpretation of x-ray-absorption near-edge structure, *Phys. Rev. B* 58 (1998) 7565
- [220] T.E.M. Staab, M. Haaks, C. Zamponi, H. Modrow, K. Maier, Atomic structure of pre-Guinier–Preston zones in Al alloys, *phys. stat. sol. (rrl)* 1 (2007) 172
- [221] J. Røyset, T. Stene, J.A. Sæter, O. Reiso, The Effect of Intermediate storage Temperature and Time on the Age Hardening Response of Al-Mg-Si Alloys, *Mater. Sci. Forum* 519-521 (2006) 239
- [222] B. Klobes, Untersuchungen zu Frühstadien der Ausscheidungsbildung in AlMgSi-Legierungen, Diplomarbeit, Universität Bonn (2007)
- [223] B. Klobes, T.E.M. Staab, M. Haaks, K. Maier, I. Wieler, The role of quenched-in vacancies for the decomposition of aluminium alloys, *phys. stat. sol. rrl* 2 (2008) 224
- [224] G. Dlubek, Positron Studies of Decomposition Phenomena in Al Alloys, *Mater. Sci. Forum* 13/14 (1987) 11
- [225] R.K.W. Marceau, R. Ferragut, A. Dupasquier, M.M. Iglesias, S.P. Ringer, Vacancy-Solute Interactions in Al-Cu-Mg, *Mater. Sci. Forum* 519-521 (2006) 197
- [226] T. Kratzer, B.M. Gable, K.M. Nairn, T.J. Bastow, B.C. Muddle, A.J. Hill, The Effect of Alloying Additions on Vacancy Behaviour in Aluminium-Copper Alloys, *Mater. Sci. Forum* 519-521 (2006) 597
- [227] W. Brandt, R. Paulin, Positron implantation-profile effects in solids, *Phys. Rev. B* 15 (1977) 2511
- [228] L. Madansky, F. Rasetti, An Attempt to Detect Thermal Energy Positrons, *Phys. Rev.* 79(1950)397
- [229] W. Cherry, Secondary Electron Emission Produced from Surface by Positron Bombardment, PhD thesis, Princeton University, USA (1958)
- [230] A. Vehanen, K.G. Lynn, P.J. Schultz, M. Eldrup, Improved Slow-Positron Yield Using a Single Crystal Tungsten Moderator, *Appl. Phys. A* 32 (1983) 163
- [231] A.P. Mills, E.M. Gullikson, Solid neon moderator for producing slow positrons, *Appl. Phys. Lett.* 49 (1986) 1121

- [232] T. Grund, K. Maier, A. Seeger, Rare-gas solids as positron moderators in "critical environments", *Mater. Sci. Forum*, 105-110 (1992) 1879
- [233] A.P. Mills, Experimentation with low energy positron beams, in W. Brandt, A. Dupasquier, *Positron Solid-State Physics*, Horth-Holland, Publishing Co., Amsterdam (1983)
- [234] L.D. Hulett, J.M. Dale, The generation of monoenergetic positrons and some potential applications in materials science, *Mater. Sci. Forum* 2 (1984) 133
- [235] G.R. Brandes, K.F. Canter, A.P. Mills, Submicron-Resolution Study of a Thin Ni Crystal Using a Brightness-Enhanced Positron Reemission Microscope, *Phys. Rev. Lett.* 61 (1988) 492
- [236] A.P. Mills, Brightness Enhancement of Slow Positron Beams, *Appl. Phys.* 23 (1980) 189
- [237] J. Van House, A. Rich, Surface Investigations Using the Positron Reemission Microscope, *Phys. Rev. Lett.* 61 (1988) 488
- [238] A. Goodyear, P.G. Coleman, Development of a reflection geometry positron reemission microscope, *Appl. Surf. Sci.* 85 (1995) 98
- [239] J. Van House, A. Rich, First Results of a Positron Microscope, *Phys. Rev. Lett.* 60 (1988) 169
- [240] M. Doyama, M. Inoue, Y. Kogure, Y. Hayashib, T. Yoshiie, T. Kurihara, K. Tsuno, Remodeling design of commercial transmission electron microscopes to positron-electron transmission microscopes, *Appl. Surf. Sci.* 194 (2002) 218
- [241] M. Doyama, Y. Kogure, M. Inoue, T. Kurihara, T. Yoshiie, R. Oshima, M. Matsuya, Transmission positron microscopes, *Appl. Surf. Sci.* 252 (2006) 3126
- [242] K.F. Canter, G.R. Brandes, T.M. Roach, A.P. Mills, Positron annihilation microprobe resolution limit, *Solid State Phenom.* 28-29 (1992) 341
- [243] G.R. Brandes, K.F. Canter, T.N. Horsky, P.H. Lippel, A.P. Mills, Scanning positron microbeam, *Rev. Sci. Instrum.* 59 (1988) 228.
- [244] L.J. Seijbel, R.F.J. Neelissen, P. Kruit, A. van Veen, H. Schut, Coupling optics for a combined electron positron scanning microscope, *Appl. Surf. Sci.* 85 (1995) 92
- [245] A. Zecca, Pulsed beam positron physics, *Mater. Sci. Forum* 175-178 (1995) 125
- [246] A. Zecca, R.S. Brusa, M.P. Duarte-Naia, G.P. Karwasz, J. Paridaens, A. Piazza, G. Kögel, P. Sperr, D.T. Britton, K. Uhlmann, P. Willutzki, W. Triftshäuser, A pulsed positron microbeam, *Europhys. Lett.* 29 (1995) 617
- [247] Z. Shao, P.S.D. Lin, High-resolution low-voltage electron optical system for very large specimens, *Rev. Sci. Instr.* 60 (1989) 3434
- [248] W. Triftshäuser, G. Kögel, P. Sperr, D.T. Britton, K. Uhlmann, P. Willutzki, A scanning positron microscope for defect analysis in materials science, *Nucl. Instr. Meth. B* 130 (1997) 264
- [249] R.H. Howell, W. Stoeffl, A. Kumar, P.A. Sterne, T.E. Cowan, J. Hartley, High Current Pulsed Positron Microprobe, *Mater. Sci. Forum* 255-257 (1997) 644
- [250] W. Stoeffl, P. Asoka-Kumar, R. Howell, The positron microprobe at LLNL, *Appl. Surf. Sci.* 149 (1999) 1

- [251] H. Greif, M. Haaks, U. Holzwarth, U. Männig, M. Tongbhoyai, T. Wider, K. Maier, J. Bihr, B. Huber, High-Resolution Positron Annihilation Spectroscopy with a New Positron Microprobe, *Appl. Phys. Lett.* 71 (1997) 2115
- [252] H. Greif, M. Haaks, U. Holzwarth, U. Männig, M. Tongbhoyai, K. Maier, A Combined Positron Microprobe – Scanning Electron Microscope for Positron-Annihilation Spectroscopy with a Spatial Resolution in the Micron Range, *Mater. Sci. Forum* 255-257 (1997) 641
- [253] Patentanmeldung vom 6.12.96 beim Deutschen Patentamt München, Titel “Elektronenmikroskop mit Positronenzusatz” und Patentanmeldung vom 6.12.96 beim Deutschen Patentamt München, Titel “Positronenquelle”
- [254] M. Maekawa, A. Kawasuso, Construction of a positron microbeam in JAEA, *Appl. Surf. Sci.* 255 (2008) 39
- [255] P. Castaign, L. Henry, Filtrage magnétique des vitesses en microscopie électronique, *J. Microscopie* 3 (1964) 133
- [256] M. Haaks, Positronenspektroskopie an Ermüdungsrissen und Spanwurzeln, Dissertation, Universität Bonn (2003)
- [257] K.G. Lynn, B. Nielsen, J.H. Quateman, Development and use of a thin-film transmission positron moderator, *Appl. Phys. Lett.* 47 (1985) 239
- [258] K.G. Lynn, E. Gramsch, S.G. Usmar, P. Sferlazzo, Development of a cone-geometry positron moderator, *Appl. Phys. Lett.* 55 (1989) 87
- [259] J.M. Dale, L.D. Hulett, S. Pendyala, Low Energy Positrons from Metal Surfaces, *Surf. Interf. Anal.* 2 (1980) 199
- [260] H. Greif, Der Bonner Feinfokuspositronenstrahl, Dissertation, Universität Bonn (1996)
- [261] Simion 7, Scientific Instrument Services, Inc., Ringoes, NJ, USA
- [262] S.M. Hühne, Einzelfehlstellennachweis mit einem Positronen-Mikrostrahl, Diplomarbeit, Universität Bonn (2008)
- [263] I. Müller, Vergleich ortsaufgelöster zerstörungsfreier Methoden zur Plastizitätsuntersuchung, Dissertation, Universität Bonn (2006)
- [264] R.H. Howell, T.E. Cowan, J.H. Hartley, P.A. Sterne, Positron Beam Lifetime Spectroscopy at Lawrence Livermore National Laboratory, *Proc. AIP* 392 (1997) 451 (UCRL-JC-124616 Preprint)
- [265] H.I. Dawson, Electrical Resistivity and Shear Modulus of Copper during Cyclic Stressing, *J. Appl. Phys.* 39 (1968) 3022
- [266] D. Hull, Introduction to dislocations, Pergamon Press, Oxford, UK (1968)
- [267] A. Seeger, The Generation of Lattice Defects by Moving Dislocations and its Application to the Temperature Dependence of the Flow-Stress of F.C.C. Crystals, *Phil. Mag.* 46 (1955) 1194
- [268] P.B. Hirsch, D.H. Warrington, The Flow Stress of Aluminium and Copper at High Temperatures, *Phil. Mag.* 6 (1961) 735

- [269] P. Dadras, Stress-Strain Behavior in Bending, H. Kuhn et al., Mechanical Testing and Evaluation, ASM Handbook, Vol. 8, ASM International, Materials Park, OH, USA (2000), pp. 109
- [270] M. Haaks, K. Maier, Predicting the Lifetime of steels, in: S. Albeverio, V. Jentsch, H. Kantz (eds.), Extreme Events in Nature and Society, Springer, Berlin (2006) pp. 211
- [271] K. Bennewitz, Positronenspektroskopie an zyklisch verformten Titan- und Eisenwerkstoffen, Dissertation, Universität Bonn (2002)
- [272] A.H. Cottrell, Dislocations and Plastic Flow in Crystals, Clarendon Press, Oxford (1956)
- [273] G.E. Dieter, Mechanical Metallurgy, McGraw-Hill, Singapore (1988)
- [274] G.I. Taylor, The Mechanism of Plastic Deformation of Crystals, Part I.- Theoretical, Proc. Roy. Soc. A 145 (1934) 362
- [275] L.P. Kubin, Dislocation Patterning, in: H. Mughrabi, Material Science and Technology Vol 6: Plastic Deformation and Fracture of Materials, VCH, Weinheim (1993) pp.137
- [276] P.J. Hurley, W.J. Evans, A methodology for predicting fatigue crack propagation rates in titanium based on damage accumulation, Scripta. Mater. 56 (2007) 681
- [277] A. Uğuz, J.W. Martin, Plastic Zone Size Measurement Techniques for Metallic Materials, Mater. Charact. 37 (1996) 105
- [278] Y.L. Chiu, A.H.W. Ngan, A TEM investigation on indentation plastic zones in Ni<sub>3</sub>Al(Cr,B) single crystal, Acta Mater. 50 (2002) 2677
- [279] G.T. Hahn, R.G. Hoagland, A.R. Rosenfield, Local Yielding Attending Fatigue Crack Growth, Met. Trans. 3 (1972) 1189
- [280] DIN 50150/ ICS 77.040.10, Testing of metallic materials - Conversion of hardness values, Beuth Verlag, Berlin (2000)
- [281] R. Smith, G. Sandland, Some Notes on the Use of a Diamond Pyramid for Hardness Testing, J. Iron Steel Inst. 111 (1925) 285
- [282] D.S Dugdale, Experiments with pyramidal indenters, J. Mech. Phys. Solids 3 (1955) 206, 212
- [283] C. Bathias, R.M. Pelloux, Fatigue Crack Propagation in Martensitic and Austenitic Steels, Met. Trans. 4 (1973) 1265
- [284] A.H. Purcell, J. Weertman, Crack Tip Area in Fatigued Copper Single Crystals, Metal. Trans. 5 (1974) 1805
- [285] A. Saxena, S.D. Antolovich, Low Cycle Fatigue, Fatigue Crack Propagation and Substructures in a Series of Polycrystalline Cu-Al Alloys, Met. Trans. A 6 (1975) 1809
- [286] M. Nyström, E. Söderlund, B. Karlsson, Plastic zones around fatigue cracks studied by ultra-low-load indentation technique, Int. J. Fatigue 17 (1995) 141
- [287] G. Savary, M. Cans, F.L. Bastian, Characterization of optical, electronic and topographic images in fatigue research, Image Vision Comput. 13 (1995) 609
- [288] G.R. Chananai, Determination of plastic-zone sizes at fatigue-cracks by optical interference technique, Int. J. Fract. 13 (1977) 394

- [289] J.W. Cho, J. Yu, Near-crack-tip deformation in copper single crystals, *Phil. Mag. Lett.* 61 (1991) 175
- [290] C. Zamponi, persönliche Mitteilung (2001)
- [291] B. Pan, A. Asundi, H. Xie, J. Gao, Digital image correlation using iterative least squares and point wise least squares for displacement field and strain field measurements, *Opt. Laser Eng.* 47 (2009) 865
- [292] D.G. Coates, Kikuchi-like reflection patterns obtained with the scanning electron microscope, *Phil. Mag.* 16 (1967) 1179
- [293] F.J. Humphreys, Quantitative metallography by electron backscattered diffraction, *J. Microsc.* 195 (1999) 170
- [294] S. Kikuchi, Diffraction of Cathode Rays by Mica, *Jap. J. Phys.* 5 (1928) 83
- [295] M.N. Alam, M. Blackman, D.W. Pashley, High angle Kikuchi patterns. *Proc. R. Soc. London Ser. A* 221 (1954) 224
- [296] A.P. Day, T.E. Quested, A comparison of grain imaging and measurement using horizontal orientation and colour orientation contrast imaging, electron backscatter pattern and optical methods, *J. Microsc.* 195 (1999) 186
- [297] S.I. Wright, B.L. Adams, Automatic Analysis of Electron Backscatter Diffraction Patterns, *Met. Trans. A* 23 (1992) 759
- [298] S.I. Wright, M.N. Nowell, EBSD Image Quality Mapping, *Microsc. Microanal.* 12 (2006) 72
- [299] B.L. Adams, S.I. Wright, K. Kunze, Orientation imaging: The emergence of a new microscopy, *Met. Trans. A* 24 (1993) 819
- [300] L.N. Brewer, M.A. Othon, L.M. Young, T.M. Angeliu, Misorientation Mapping for Visualization of Plastic Deformation via Electron Back-Scattered Diffraction, *Microsc. Microanal.* 12 (2006) 85
- [301] D.G. Coates, Kikuchi-like reflection patterns obtained with the scanning electron microscope, *Phil. Mag.* 16 (1967) 1179
- [302] E.M. Schulson C.G. van Essen, Optimum conditions for generating channelling patterns in the scanning electron microscope, *J. Phys. E* 2 (1969) 247
- [303] E.M. Schulson, Electron channelling patterns in scanning electron microscopy, *J. Mater. Sci.* 12 (1977) 1071
- [304] A.J. Wilkinson, P.B. Hirsch, Electron Diffraction Based Techniques in Scanning Electron Microscopy of Bulk Materials, *Micron* 28 (1997) 279
- [305] B.C. Ng, B.A. Simkin, M.A. Crimp, Application of the electron channeling contrast imaging technique to the study of dislocations associated with cracks in bulk specimens, *Ultramicroscopy* 75 (1998) 137
- [306] J. Ahmed, A.J. Wilkinson, S.G. Roberts, Study of dislocation structures near fatigue cracks using electron channelling contrast imaging technique (ECCI), *J. Microsc.* 195 (1999) 197

- [307] A.J. Wilkinson, G.R. Anstis, J.T. Czernuszka, N.J. Long, P.B. Hirsch, Electron channelling contrast imaging of interfacial defects in strained silicon-germanium layers on silicon, *Phil. Mag. A* 68 (1993) 59
- [308] A. Tekin, J.W. Martin, High-resolution measurement of crack-tip plastic zone sizes by selected area channelling patterns, *Metallography* 22 (1989) 1
- [309] A.J. Wilkinson, M.B. Henderson, J.W. Martin, Examination of fatigue crack plastic zones using scanning-electron-microscope-based electron diffraction techniques, *Phil. Mag. Lett.* 74 (1996) 145
- [310] T. Welsch, M. Henning, M. Marx, H. Vehoff, Measuring the Plastic Zone Size by Orientation Gradient Mapping (OGM) and Electron Channeling Contrast Imaging (ECCI), *Adv. Eng. Mater.* 9 (2007) 31
- [311] G.I. Taylor, M.A. Quinney, The Latent Energy Remaining in a Metal after Cold Working, *Proc. Roy. Soc. A* 143 (1934) 307
- [312] M.B. Bever, D.L. Holt, A.L. Titchener, The stored energy of cold work, *Prog. Met. Phys.* 17 (1973) 5
- [313] J. Hodowany, G. Ravichandran, A.J. Rosakis, P. Rosakis, Partition of plastic work into heat and stored energy in metals, *Exp. Mech.* 40 (2000) 113
- [314] G.L. Moss, R.B. Pond, Inhomogeneous thermal changes in copper during plastic elongation, *Met. Trans. A* 6 (1975) 1223
- [315] K.A. Hartley, J. Duffy, R.H. Hawley, Measurement of the temperature profile during shear band formation in steels deforming at high strain rates, *J. Mech. Phys. Solids* 35 (1987) 283
- [316] A.T. Zehnder, A.J. Rosakis, On the temperature distribution at the vicinity of dynamically propagating cracks in 4340 steel, *J. Mech. Phys. Solids* 39 (1991) 385
- [317] J.A. Kallivayalil, A.T. Zehnder, Measurement of the temperature field induced by dynamic crack growth in Beta-C titanium, *Int. J. Fract.* 66 (1994) 99
- [318] P.R. Guduru, A.T. Zehnder, A.J. Rosakis, G. Ravachandran, Dynamic full field measurements of crack tip temperatures, *Eng. Fract. Mech.* 68 (2001) 1535
- [319] H. Barkhausen, Zwei mit Hilfe der neuen Verstärker entdeckten Erscheinungen, *Phys. Z.* 20 (1919) 401
- [320] G. Bertotti, *Hysteresis in Magnetism*, Academic Press, San Diego (1998) pp. 276
- [321] H.J. Williams, W. Shockley, C. Kittel, Studies of the Propagation Velocity of a Ferromagnetic Domain Boundary, *Phys. Rev.* 80 (1950) 1090
- [322] I. Mészáros, *Micromagnetic Measurements and Their Applications*, *Mater. Sci. Forum* 414-415 (2003) 275
- [323] R.M. Bozorth, H.J. Williams, Effect of Small Stresses on Magnetic Properties, *Rev. Mod. Phys.* 17 (1945) 72
- [324] D.C. Jiles, D.L. Atherton, Theory of the magnetisation process in ferromagnets and its application to the magnetomechanical effect, *J. Phys. D* 17 (1984) 1265

- [325] V. Moorthy, B.A. Shaw, J.T. Evans, Evaluation of tempering induced changes in the hardness profile of case-carburised EN36 steel using magnetic Barkhausen noise analysis, *NDT&E International* 36 (2003) 43
- [326] H. Kikuchi, T. Onuki, Y. Kamada, K. Ara, S. Kobayashi, S. Takahashi, Initial permeability and vickers hardness of thermally aged FeCu alloy, *J. Mag. Mag. Mater.* 310 (2007) 2886
- [327] J. Błachnio, J. Dutkiewicz, A. Salamon, The effect of cyclic deformation in a 13% Cr ferritic steel on structure and Barkhausen noise level, *Mater. Sci. Eng. A* 323 (2002) 83
- [328] J. Capó-Sánchez, M. Alberteris Camposa, L.R. Padovese, bMagnetic Barkhausen measurements for evaluating the formation of Lüders bands in carbon steel, *NDT&E International* 40 (2007) 520
- [329] X. Kleber, A. Hug, J. Merlin, Characterization of the Residual Stresses in Plastically Deformed Ferrite-Martensite Steels using Barkhausen Noise Measurements, *Mater. Sci. Forum* 500-501 (2005) 655
- [330] A. Dhar, L. Clapham, D.L. Atherton, Influence of Lüders bands on magnetic Barkhausen noise and magnetic flux leakage signals, *J. Mater. Sci.* 37 (2002) 2441
- [331] W.H. Bragg, W.L. Bragg, The Reflection of X-rays by Crystals, *Proc. Roy. Soc. A* 88 (1913) 428
- [332] U. Bonse, Zum Kontrast an Versetzungen im Röntgenbild, *Z. Physik* 177 (1964) 543
- [333] S. Taira, K. Hayashi, X-Ray Investigation on Fatigue Fracture of Notched Steel Specimen - Observation of Fatigue Phenomena of Annealed Low-Carbon Steel by X-Ray Microbeam Technique, *Bull. JSME* 9 (1966) 627
- [334] J.E. Ayers, The measurement of threading dislocation densities in semiconductor crystals by X-ray diffraction, *J. Cryst. Growth* 135 (1994) 71
- [335] S. Weissmann, D.L. Evans, An X-ray Study of the Substructure of Fine-grained Aluminum, *Acta Cryst.* 7 (1954) 733
- [336] R. N. Pangborn, S. Weissmann, I.R. Kramer, Dislocation distribution and prediction of fatigue damage, *Met. Trans. A* 12 (1981) 109
- [337] S.A. Sous, B.O. Hildmann, W.A. Kaysser, Characterization of Dislocation Densities in Germanium and Silicon Single Crystals by High Resolution X-Ray Diffraction, *phys. stat. sol. a* 159 (1997) 343
- [338] H.J. Gough, W.A. Wood, A New Attack upon the Problem of Fatigue of Metals, Using X-Ray Methods of Precision, *Proc. Roy. Soc. A* 154 (1936) 510
- [339] P.B. Hirsch, J.N. Kellar, A study of cold-worked aluminium by an X-ray microbeam technique (I - III), *Acta Cryst.* 5 (1952) 162, 168, 172
- [340] P. Gay, P.B. Hirsch, A. Kelly, X-ray studies of polycrystalline metals deformed by rolling (I - III), *Acta Cryst.* 6 (1953) 165, 172, 7 (1954) 41
- [341] A.M. Korsunsky, K.E. Wells, P.J. Withers, Mapping two-dimensional state of strain using synchrotron X-ray diffraction, *Scripta Mat.* 39 (1998) 1705

- [342] J. Böhm, A. Wanner, R. Kampmann, H. Franz, K.D. Liss, A. Schreyer, H. Clemens, Internal stress measurements by high-energy synchrotron X-ray diffraction at increased specimen-detector distance, *Nucl. Inst. Meth. B* 200 (2003) 315
- [343] P. Thompson, D.E. Cox, J.B. Hastings, Rietveld refinement of Debye-Scherrer synchrotron X-ray data from  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , *J. Appl. Cryst.* 20 (1987) 79
- [344] R.W. Cheary, A. Coelho, A fundamental parameters approach to X-ray line-profile fitting, *J. Appl. Cryst.* 25 (1992) 109
- [345] T. Ida, Model Peak profile functions for powder diffractometry as convolution with instrumental functions, *Rigaku Journ.* 19 (2002) 47
- [346] U. Hahn, H. Schulte-Schrepping, K. Balewski, J.R. Schneider, P. Illinski, B. Lai, W. Yun, D. Legnini, E. Gluskin, Measurements of Emittance and Absolute Spectral Flux of the PETRA Undulator at DESY Hamburg, *J. Sync. Rad.* 4 (1997) 1
- [347] A.R. Lang, Direct Observation of Individual Dislocations by X-Ray Diffraction, *J. Appl. Phys.* 29 (1958) 587
- [348] A.R. Lang, The projection topograph - a new method in X-ray diffraction microradiography, *Acta Cryst.* 12 (1959) 249
- [349] G.E. Ice, B.C. Larson, 3D X-Ray Crystal Microscope, *Adv. Eng. Mater.* 2 (2000) 643
- [350] R. Tanuma, T. Kubo, F. Togoh, T. Tawara, A. Saito, K. Fukuda, K. Hayashi, Y. Tsusaka, Three-dimensional topography using an X-ray microbeam and novel slit technique, *phys. stat. sol. (a)* 204 (2007) 2706
- [351] R. Negishi, T. Fukamachi, M. Yoshizawa, K. Hirano, T. Kawamura, Observation of interference fringes due to lattice distortion by resonant scattering X-ray topography, *phys. stat. sol. (a)* 204, (2007) 2694
- [352] J.K. Howard, P.J. Smith, Analysis of Defect Distribution in Transistor Structures with Reflection and Transmission X-Ray Topography, *IBM J. Res. Dev.* 15 (1971) 123
- [353] A.R. Lang, M. Polcarová, X-ray Topographic Studies of Dislocations in Iron-Silicon Alloy Single Crystals, *Proc. Roy. Soc. A* 285 (1965) 297
- [354] S. Suresh, Cyclic Deformation and Fatigue, in: H. Mughrabi, *Material Science and Technology Vol 6: Plastic Deformation and Fracture of Materials*, VCH, Weinheim (1993) pp.509
- [355] S.J. Basinski, Z.S. Basinski, A. Howie, Early stages of fatigue in copper single crystals, *Phil. Mag.* 19 (1969) 899
- [356] J.R. Hancock, J.C. Grosskreutz, Mechanisms of fatigue hardening in copper single crystals, *Acta. Met.* 17(1969) 77
- [357] T.L. Grobstein, S. Sivashankaran, G. Welsch, N. Panigrahi, J.D. McGervey, J.W. Blue, Fatigue damage accumulation in nickel prior to crack initiation, *Mater. Sci. Eng. A* 138 (1991) 138
- [358] F.C. Frank, W.T. Read, Multiplication Processes for Slow Moving Dislocations, *Phys. Rev* 79 (1950) 722
- [359] E. Orowan, *Symposium on Internal Stresses in Metals and Alloys*, Institute of Metals, London (1948) 451



- [360] P. Haasen, *Physikalische Materialkunde*, Springer, Berlin (1974)
- [361] D. Broek, *Elementary engineering fracture mechanics*, Kluwer Academic Publishers, Boston 1982
- [362] A.A. Griffith, The phenomena of rupture and flow in solids, *Phil. Trans. Roy. Soc. London A* 221 (1921) 163
- [363] S. Antolovich, An Introduction to Fracture Mechanics, in: J. Barsom et al. (eds.), *Fatigue and Fracture*, ASM Handbook Vol. 19, ASM International, Materials Park, OH, USA (1997) pp. 371
- [364] M. Haaks, K. Bennewitz, H. Bühr, U. Männig, C. Zamponi, K. Maier, Measurements on Cracktips in Stainless Steel AISI 321 by using a New Positron Microprobe, *Appl. Surf. Sci.* 149 (1999) 207
- [365] W. Egger, G. Kögel, P. Sperr, W. Triftshäuser, S. Rödling, J. Bär, H.J. Gudladt, Vacancy clusters close to a fatigue crack observed with the München scanning positron microscope, *Appl. Surf. Sci.* 194 (2002) 214
- [366] C. Salomon, Critical Machining Velocities, German Patent No. 523594 (1931)
- [367] D.G. Flom, R. Komanduri, M. Lee, High-Speed Machining of Metals, *Annu. Rev. Mater. Sci.* 14 (1984) 231
- [368] H. Schulz, *Hochgeschwindigkeitsbearbeitung*, C. Hanser Verlag (1996)
- [369] H. Tönshoff, R. Ben Amor, R. Clos, P. Veit, Predicting the HSC-Range on the Basis of the Material Properties, *Proc. of the Conf. of High Speed Machining*, Chicago (2001)
- [370] J. Plöger, *Randzonenbeeinflussung durch Hochgeschwindigkeitsdrehen*, Dissertation, Universität Hannover (2002)
- [371] A. Behrens, B. Westhoff, K. Kalisch, Application of the Finite Element Method at the Chip Forming Process under High Speed Cutting, in: H.K. Tönshoff, C. Hollmann (eds.), *Hochgeschwindigkeitsspanen*, Wiley-VCH, Weinheim (2005), pp. 112
- [372] K.M. Vernaza-Peña, J.J. Mason, M. Li, Experimental study of the temperature field generated during orthogonal machining of an aluminum alloy, *Exp. Mech.* 42 (2002) 221
- [373] R. Ben Amor, *Thermomechanische Wirkmechanismen und Spanbildung bei der Hochgeschwindigkeitszerspannung*, Dissertation, Universität Hannover (2003)
- [374] T. Adler, C.R. Houska, Simplifications in the X-ray line-shape analysis, *J. Appl. Phys.* 50 (1979) 3282
- [375] D.R. Black, C.J. Bechtoldt, R.C. Placious, M. Kuriyama, Three Dimensional Strain Measurements with X-Ray Energy Dispersive Spectroscopy, *J. Nondestruct. Eval.* 5 (1985) 21
- [376] D.R. Black, C.J. Bechtoldt, R.C. Placious, M. Kuriyama, Three Dimensional Strain Measurements with X-Ray Energy Dispersive Spectroscopy, *J. Nondestruct. Eval.* 5 (1985) 21
- [377] H.F. Poulsen, S. Garbe, T. Lorentzen, D. Juul Jensen, F.W. Poulsen, N.H. Andersen, T. Frello, R. Feidenhans'l, H. Graafsma, Applications of High-Energy Synchrotron Radia-

- tion for Structural Studies of Polycrystalline Materials, *J. Synchrotron Rad.* 4 (1997) 147
- [378] M.R. Daymond, P.J. Withers, A Synchrotron Radiation Study of Transient Internal Strain Changes During the Early Stages of Thermal Cycling in an Al/SiC MMC, *Scripta Mater.* 35 (1996) 1229
- [379] K. Balewski, W. Brefeld, U. Hahn, J. Pflüger, R. Rosmanith, An Undulator at PETRA II - A New Synchrotron Radiation Source at DESY, *Proc. 16th Int. Conf. High Energy Accel., Dallas, Texas, USA 1, (1995)* 275
- [380] J. Böhm, A. Wanner, R. Kampmann, H. Franz, K.D. Liss, A. Schreyer, H. Clemens, Internal stress measurements by high-energy synchrotron xray diffraction at increased specimen-detector distance. *Nucl. Instr. Meth. B* 200 (2003) 315
- [381] M. Haaks, I. Müller, A. Schöps, H. Franz, Spatially Resolved Deformation Studies on Carbon Steel employing X-rays and Positron Annihilation, *phys. stat. sol. (a)* 203 (2006) R31
- [382] A.P. Hammersley, S.O. Svensson, M. Hanfland, A.N. Fitch, D. Häusermann, Two Dimensional Detector Software: From Real Detector to Idealised Image or Two Theta Scan, *High Pressure Res.* 14 (1996) 248 und: A.P. Hammersley, Fit2d: An introduction and overview, *ESRF Internal Report, ESRF97HA02T* (1997)
- [383] W. Reimers, M. Broda, G. Bruschi, D. Dantz, K.-D. Liss, A. Pyzalla, T. Schmackers, 1 T. Tschentscher, Evaluation of Residual Stresses in the Bulk of Materials by High Energy Synchrotron Diffraction, *J. Nondestruct. Eval.* 17 (1998) 129
- [384] P. Dadras, Stress-Strain Behavior in Bending, in: H. Kuhn et al. (eds.), *Mechanical Testing and Evaluation*, ASM Handbook Vol. 8, ASM International, Materials Park, OH, USA (2000) pp.109
- [385] J. Liu, K. Kim, M. Golshan, D. Laundryb A.M. Korsunsky, Energy calibration and full-pattern refinement for strain analysis using energy-dispersive and monochromatic X-ray diffraction, *J. Appl. Cryst.* 38 (2005) 661
- [386] A. Le Bail, The Profile of a Bragg Reflection for Extracting Intensities, in: E. Dinnebier, J.L. Billinge (eds.), *Powder Diffraction - Theory and Practice*, RSC Publishing, Cambridge, UK (2008) pp. 134
- [387] A. Kern, Profile Analysis, in: A. Clearfield, J.H. Reibenspies, N. Bhuvanesh, *Principles and Applications of Powder Diffraction*, Wiley, Chichester, UK (2008) pp. 158
- [388] C.C. Murdock, The Form of the X-ray Diffraction Bands for Regular Crystals of Colloidal Size, *Phys. Rev.* 35 (1930) 8
- [389] I. Trockels, G. Lütjering, A. Gysler, Effect of Frequency on Fatigue Crack Propagation Behavior of the Aluminum Alloy 6013 in Corrosive Environment, *Mater. Sci. Forum* 217-222 (1996) 1599
- [390] K. Nocke, F. Bergner, H. Bersch, I. Haase, H. Worch, G. Tempus, E. Loechelt, Environment-sensitive fracture of aluminium alloy 6013, *Mater. Corros* 51 (2000) 628
- [391] Ch. Zamponi, Positronenspektroskopie an plastischen Zonen in Al-Legierungen und GaAs-Wafern, Dissertation, Universität Bonn (2002)

- [392] I. Haase, K. Nocke, H. Worch, G. Zouhar, G. Tempus, Untersuchungen zum Ermüdungsverhalten der Aluminiumlegierung AA 6013 T6 in korrosivem Medium, *Prakt. Metallogr.* 38 (2001) 119
- [393] H. Hjelmberg, Hydrogen chemisorption on Al, Mg and Na surfaces - calculation of adsorption sites and binding energies, *Surf. Sci.* 81 (1979) 539
- [394] H.E. Hansen, R.M. Nieminen, M.J. Puska, Computational analysis of positron experiments, *J. Phys. F* 14 (1984) 1299
- [395] S. Linderoth, H. Rajainmäki, R.M. Nieminen, [Defect recovery in aluminum irradiated with protons at 20 K, *Phys. Rev. B* 35 (1986) 5524
- [396] R.W. Balluffi, Vacancy Defect Mobilities and Binding Energies obtained from Annealing Studies, *J. Nuclear Mater.* 69/70 (1978) 197
- [397] R.W. Siegel, Vacancy Concentrations in Metals, *J. Nucl. Mater.* 69/70 (1978) 117
- [398] H. Kamoutsi, G.N. Haidemenopoulos, V. Bontozoglou, S. Pantelakis, Corrosion-induced hydrogen embrittlement in aluminum alloy 2024, *Corros. Sci.* 48 (2006) 1209
- [399] E. Charitidou, G. Papapolymerou, G.N. Haidemenopoulos, N. Hasiotis, V. Bontozoglou, Characterization of trapped hydrogen in exfoliation corroded aluminium alloy 2024, *Scr. Mater.* 41 (1999) 1327
- [400] H. Saitoh, Y. Iijima, K. Hirano, Behaviour of hydrogen in pure aluminium Al-4 mass% Cu and Al-1 mass% Mg<sub>2</sub>Si alloys studied by tritium electron microautoradiography, *J. Mater. Sci.* 29 (1994) 5739
- [401] R. Grötzschel, E. Hentschel, R. Klages, U. Kreissig, C. Neelmeijer, W. Assmann, R. Behrisch, Elemental analysis of thin layers by elastic heavy ion scattering, *Nucl. Instr. Methods B* 63 (1992) 77
- [402] B. Terreault, J.G. Martel, R.G.St.-Jacques, J. L'Ecuyer, Depth profiling of light elements in materials with high-energy ion beams, *J. Vat. Sci. Technol.* 14 (1977) 492
- [403] E. Brauer, R. Doerr, R. Gruner, F. Rauch, A nuclear physics method for the determination of hydrogen diffusion coefficients, *Corros. Sci.* 21 (1981) 449
- [404] A. Zeilinger, W.A. Pochman, Neutron radiographic measurement of the diffusion of H in  $\beta$ -Ti, V, Nb and Ta, *J. Phys. F* 7 (1977) 575
- [405] C.R. Cupp, P. Flubacher, An autoradiographic technique for the study of tritium in metals and its application to diffusion in zirconium at 149° to 240° C, *J. Nucl. Mater.* 6 (1962) 213
- [406] T.H. Quach-Kamimura, D. David, G. Beranger, A. Falanga, G. Lozes, The mutual interactions of oxygen and hydrogen in  $\alpha$ -titanium during heat treatment, *J. Less. Common Met.* 125 (1986) 59
- [407] J.J. Kearns, Diffusion Coefficient of Hydrogen in  $\alpha$ -Zirkonium, Zircaloy-2 and Zircaloy-4, *J. Nucl. Mater.* 43 (1972) 330
- [408] M. Hövel, Ortsaufgelöster Wasserstoffnachweis in technischen Legierungen, Diplomarbeit, Universität Bonn (2004)
- [409] C. Lenk, Wasserstoffeinlagerung an Ermüdungsrissen der Aluminiumlegierung 6013 unter korrosiver Umgebung, Dissertation, Universität Bonn (2009)

- [410] C. Lenk, M. Haaks, M. Hoevel, Th. Löwenhoff, K. Maier, Spatially Resolved Detection of Hydrogen in Fatigued Plastic Zones, in preparation (2009)
- [411] H. Wipf (ed.), Hydrogen in Metals III: Properties and Applications, Topics in Applied Physics Vol.73, Springer (1997)
- [412] P. Paufler, G. Wagner, K. Grosse, Defect Structure in Te-doped GaAs single Crystals after Plastic Deformation (I): Twins and Stacking Faults, Cryst. Res. Technol. 28 (1993) 3
- [413] T. Suzuki, T. Yasutomi, T. Tokuoka, I. Yonenaga, Plastic deformation of GaAs at low temperatures, Phil. Mag. A 79 (1999) 2637
- [414] P. Rudolph, M. Jurisch, Bulk growth of GaAs: An overview, J. Cryst. Growth 198/199 (1999) 325
- [415] F. Börner, S. Eichler, A. Polity, R. Krause-Rehberg, R. Hammer, M. Jurisch, Determination of the defect depth profile after saw cutting of GaAs wafers measured by positron annihilation, J. Appl. Phys. 84 (1998) 2255
- [416] E. Uhlmann, H. Engel, R. Hammer, C. Paesler, Single grain scratch tests on GaAs for the determination of relevant engaging parameters for a ductile material removal, Proc. 1st Euspen Int. Conf.: Precision Engineering - Nanotechnology, Shaker Verlag, Aachen (1999) pp. 424
- [417] J. Gebauer, F. Börner, R. Krause-Rehberg, T.E.M. Staab, W. Bauer-Kugelmann, G. Kögel, W. Triftshäuser, P. Specht, R. Lutz, E.R. Weber, M. Luysberg, Defect identification in GaAs grown at low temperatures by positron annihilation, J. Appl. Phys. 87 (2000) 8368
- [418] C. Zamponi, U. Männig, T.E.M. Staab, K. Maier, S. Eichler, R. Hammer, Point defects as result of surface deformation on a GaAs wafer, Appl. Phys. Lett. 83 (2003) 4128
- [419] H.S. Leipner, C.G. Hübner, T.E.M. Staab, M. Haugk, R. Krause-Rehberg, Positron annihilation at Dislocations and Related Point Defects in Semiconductors, Phys. Stat. Sol. A 171 (1999) 377
- [420] U. Männig, Defektuntersuchungen in Festkörpern mit der Bonner Positronen-Mikrosonde, Dissertation, Universität Bonn (2000)
- [421] A. Wöhler, Berichte über Versuche, welche auf der Königl. Niederschlesisch-Märkischen Eisenbahn mit Apparaten zum Messen der Biegung und Verdrehung von Eisenbahnachsen während der Fahrt aufgestellt wurden, Z. Bauwesen 8 (1858) 642
- [422] O.H. Basquin, The exponential law of endurance tests, Am. Soc. Testing Mater. 10 (1910) 625
- [423] N. Thompson, N.J. Wadsworth, Metal Fatigue, Adv. Phys. 7 (1958) 72
- [424] E. Gaßner, Festigkeitsversuche mit wiederholter Beanspruchung im Flugzeugbau, Luftwissen 6 (1939) 61
- [425] E. Gaßner, Betriebsfestigkeit, eine Bemessungsgrundlage für Konstruktionsteile mit statistisch wechselnden Betriebsbeanspruchungen, Konstruktion 6 (1954) 97
- [426] M.A. Miner, Cumulative damage in fatigue, J. Appl. Mech. 12 (1945) 159
- [427] A. Palmgren, Die Lebensdauer Von Kugellagern, Z. Ver. dt. Ing. (VDI) 68 (1924) 339

- [428] E. Haibach, The influence of cyclic material properties on fatigue life prediction by amplitude transformation, *Int. J. Fatigue* 1 (1979) 7
- [429] H. Zenner, A. Simbürger, J. Liu, On the fatigue limit of ductile metals under complex multiaxial loading, *Int. J. Fatigue* 22 (2000) 137
- [430] P. Johannesson, T. Svensson, J. de Maré, Fatigue life prediction based on variable amplitude tests—methodology, *Int. J. Fatigue* 27 (2005) 954
- [431] C. Fukuoka, Y.G. Nakagawa, Microstructural evaluation of cumulative fatigue damage below the fatigue limit, *Scr. Mater.* 34 (1996) 1497
- [432] Y. Kawaguchi, Y. Shirai, Fatigue Evaluation of Type 316 Stainless Steel Using Positron Annihilation Lineshape Analysis and  $\beta^+$ - $\gamma$  Coincidence Positron Lifetime Measurement, *J. Nucl. Sci. Technol.* 39 (2002) 1033
- [433] P. Asoka-Kumar, J.H. Hartley, R.H. Howell, P.A. Sterne, D. Akers, V. Shah, A. Denison, Direct observation of carbon-decorated defects in fatigued type 304 stainless steel using positron annihilation spectroscopy, *Acta Mater.* 50 (2002) 1761
- [434] U. Holzwarth, P. Schaaff, On the non-destructive detection of fatigue damage in industrial aluminium alloys by positron annihilation, *J. Mater. Sci.* 42 (2007) 5620
- [435] J. Dryzek, E. Dryzek, Application of positron annihilation studies of the subsurface zones beneath the surface exposed to normal loading, *Tribol. Lett.* 15 (2003) 309
- [436] P. Eich, M. Haaks, R. Sindelar, K. Maier, Spatially Resolved Defect Studies on Fatigued Carbon Steel, *phys. stat. sol. (c)* 4 (2007) 3465
- [437] P. Eich, Ortsaufgelöste Bestimmung der Schädigung an ermüdetem Karbonstahl, Diplomarbeit, Universität Bonn (2006)
- [438] A. Liu, Summary of Stress-Intensity Factors, in: N.D. DiMatteo, S.R. Lampman (eds.) *ASM Handbook Vol. 19, Fracture and Fatigue* (1997) pp. 981
- [439] P. Eich, M. Haaks, K. Maier, Predicting the lifetime of fatigued steels with positron as atomic probes, in preparation (2009)
- [440] M. Haaks, *Material Science with Positrons: From Doppler Spectroscopy to Failure Prediction*, *Adv. Sol. State Phys.* 47 (2008) 289
- [441] M. Wirtz, Untersuchung von Plastizität und Ermüdung technischer Aluminiumlegierungen mit Positronen, Diplomarbeit, Universität Bonn (2008)
- [442] M. Wirtz, P. Eich, M. Haaks, K. Maier, Non-destructive evaluation of plasticity and prediction of fatigue failure in industrial aluminum alloys with positrons, submitted to *phys. stat. sol. a* (2009)
- [443] F. Ostermann, *Anwendungstechnologie Aluminium*, Springer (2007)
- [444] [http://de.wikipedia.org/wiki/ICE-Unglück\\_von\\_Eschede](http://de.wikipedia.org/wiki/ICE-Unglück_von_Eschede)
- [445] N.N., Europäische Norm: DIN EN 13261, Bahnanwendungen - Radsätze und Drehgestelle - Radsatzwellen - Produktanforderungen, Beuth Verlag (2006)
- [446] P. Eich, Zerstörungsfreie Abschätzung der Restlebensdauer metallischer Werkstoffe, Dissertation, Universität Bonn (2009)
- [447] T. Löwenhoff, Mechanische Relaxation der plastischen Zone vor Rissspitzen in technischen Al-Legierungen, Diplomarbeit, Universität Bonn (2008)

- [448] Sidney Yip, *Handbook of Materials Modelling, Part A: Methods*, Springer, Dordrecht, Netherlands (2005)
- [449] G. Kresse, J. Furthmüller, Efficient iterative schemes for ab initio total-energy calculations using a plane-wave basis set, *Phys. Rev. B* 54 (1996) 11169
- [450] M.E. Tuckerman, G.J. Martyna, *Understanding Modern Molecular Dynamics: Techniques and Applications*, *J. Phys. Chem. B* 104 (2000) 159
- [451] F.F. Abraham, How fast can cracks move? A research adventure in materials failure using millions of atoms and big computers, *Adv. Phys.* 52 (2003) 727
- [452] F. Rösch, C. Rudhart, J. Roth, H.-R. Trebin, P. Gumbsch, Dynamic fracture of icosahedral model quasicrystals: A molecular dynamics study, *Phys. Rev. B* 72 (2005) 014128
- [453] R. Fournet, J.M. Salazar, *Computer Simulation on Dislocation Patterning*, *Sol. State Phenom.* 42-43 (1995) 205
- [454] F.R.N. Nabarro, *The Mathematical theory of stationary dislocations*, *Adv. Phys.* 1 (1952) 269
- [455] H.M. Zbib, M. Rhee, J.P. Hirth, On Plastic Deformation and the Dynamics of 3D Dislocations, *Int. J. Mech. Sci.* 40 (1998) 113
- [456] A. Nakatani, W.J. Drugan, E. Van Der Giessen, A. Needleman, Crack tip fields at a ductile single crystal-rigid material interface, *Int. J. Fracture* 122 (2003) 131
- [457] R. Hill, Continuum micro-mechanics of elastoplastic polycrystals, *J. Mech. Phys. Solids* 13 (1965) 89
- [458] J.L. Swedlow, Character of the equations of elasto-plastic flow in three independent variables, *Int. J. Nonlinear Mech.* 3 (1968) 325
- [459] D.L. McDowell, K. Gall, M.F. Horstemeyer, J. Fan, Microstructure-based fatigue modeling of cast A356-T6 alloy, *Eng. Fract. Mech.* 70 (2003) 49
- [460] R. Echle, G.Z. Voyiadjis, Simulation of damage evolution in a uni-directional titanium matrix composite subjected to high cycle fatigue, *Int. J. Fatigue* 21 (1999) 909
- [461] I.V. Putschkov, Y.M. Temis, A.L. Dowson, D. Damrit, Development of a finite element based strain accumulation model for the prediction of fatigue lives in highly stressed Ti components, *Int. J. Fatigue* 23 (2001) 467
- [462] J.Z. Zhang, J.Z. Zhang, S.Y. Du, Elastic-plastic finite element analysis and experimental study of short and long fatigue crack growth, *Eng. Fract. Mech.* 68 (2001) 1591
- [463] A. Fatemi, L. Yang, Cumulative fatigue damage and life prediction theories: a survey of the state of the art for homogeneous materials, *Int. J. Fatigue* 20 (1998) 9
- [464] T. Łagoda, Energy models for fatigue life estimation under uniaxial random loading. Part I: The model elaboration, *Int. J. Fatigue* 23 (2001) 467
- [465] J. Fingerhuth, *Entwicklung eines Modells zur Schadensvorhersage in zyklisch belasteten Werkstoffen*, Diplomarbeit, Universität Bonn 2006
- [466] F. Vollertsen, S. Vogler, *Werkstoffeigenschaften und Mikrostruktur*, Hanser, München (1989)
- [467] L.H. Friedman, D.C. Chrzan, Continuum analysis of dislocation pile-ups: Influence of sources, *Phil. Maga. A* 77 (1998) 1185

- [468] K. Tanaka, T. Mura, A Dislocation Model for Fatigue Crack Initiation, *J. Appl. Mech.* 48 (1981) 97
- [469] J. Fingerhuth, M. Haaks, G. Schütz, K. Maier, Simulation of the initial stages of fatigue based on cellular automata, *International Conference on the Fundamentals of Fracture VIII*, Hong Kong (2008)
- [470] J. Fingerhuth, Weiterentwicklung eines Modells zur Simulation der Materialermüdung in Metallen, *Dissertation, Universität Bonn* (2010)
- [471] J. Bretschneider, C. Holste, B. Tippelt, Cyclic plasticity of nickel single crystals at elevated temperatures, *Acta Mater.* 45 (1997) 3775
- [472] C. Buque, Dislocation structures and cyclic behaviour of [011] and  $[\bar{1}11]$ -oriented nickel single crystals, *Int. J. Fatigue* 23 (2001) 671
- [473] P. Li, Z.F. Zhang, X.W. Li, S.X. Li, Z.G. Wang, Effect of orientation on the cyclic deformation behavior of silver single crystals: Comparison with the behavior of copper and nickel single crystals, *Acta. Mater. corrected proofs* (2009)