



universität
wien

BACHELORARBEIT / BACHELORS' THESIS

Titel der Bachelorarbeit / Title of the Bachelor's Thesis

„Untersuchung der negativen Ionenausbeute von Berylliumoxid
in einer Sputterionenquelle“

verfasst von / submitted by

Denis Ibrahimovic

angestrebter akademischer Grad / in partial fulfilment of the requirements for the degree of
Bachelor of Science (BSc)

Wien, 2022 / Vienna, 2022

Studienkennzahl lt. Studienblatt /
degree programme code as it appears on
the student record sheet:

UA 033 676

Studienrichtung lt. Studienblatt /
degree programme as it appears on
the student record sheet:

Bachelor Physik

Betreut von / Supervisor:

Mag. Dr. Martin Martschini

Inhaltsverzeichnis

Abstract	i
1. Einleitung	1
2. VERA	3
2.1. Ionenquellen	3
2.2. Tandembeschleuniger	4
2.3. ^{10}Be -Detektor	4
2.4. <i>Bending Magnet</i> und Faraday-Cup	6
3. Erstes Experiment - Materialscreening	7
3.1. Vorbereitung	7
3.2. Ergebnisse	8
4. Zweites Experiment	11
4.1. Vorbereitung	11
4.2. Ergebnisse	14
4.3. Diskussion	19
Literaturverzeichnis	23
A. Danksagung	25

Abstract

In dieser Bachelorarbeit wurden zwei Experimente an Sputterionenquellen des Vienna Environmental Research Accelerator (VERA) durchgeführt, in welchen die Ionisationseffizienz nach einer beziehungsweise nach zwei Stunden für Berylliumoxidmessungen maximiert werden sollte. Hierfür wurden im ersten Experiment Mischungen aus Berylliumoxid (BeO) mit fünf Metallen auf den höchsten Ionenstrom und auf eine ^{10}Be -Kontamination untersucht, aus welchem sich Niob und Eisen als effizienteste herauskristallisierten. Um einen Vergleich zu früheren Messungen von Berylliumoxid zu erhalten (in welchen Kupfer als Mischmetall verwendet wurde), wird ebenfalls Kupfer im zweiten Experiment untersucht. Zur Vorbereitung wurden hier 27 Proben gepresst, in welchen jeweils Eisen, Niob und Kupfer mit Berylliumoxid in den Massenverhältnissen 2:1, 4:1 und 8:1 vermischt wurden. Es sind jeweils drei Proben für jedes Metall und Mischverhältnis untersucht worden, um zu überprüfen, ob die Reproduzierbarkeit und somit die Reliabilität der Messung gegeben ist. Für die Kathoden, in welchen Niob und Eisen im Massenverhältnis 2:1 und 4:1 mit Berylliumoxid vermengt wurde, wird die höchste gesammelte Ladung nach einer und nach zwei Stunden ermittelt. Die gesammelten Ladungen der Kupfermischungen liegen signifikant unter jenen der Niob- und Eisen-Mischungen, weshalb eine Umstellung zu Niob oder Eisen in Zukunft präzisere Beryllium-Messungen zur Folge hätten.

1. Einleitung

Mit Hilfe der Quelle 2 des Vienna Environmental Reserach Accelerator (VERA) soll die kumulative Ionenausbeute (*ionization yield*) von Berylliumoxid (BeO) innerhalb der ersten beziehungsweise der ersten beiden Stunden aus diversen Proben bestimmt werden. Diese Zeitintervalle wurden gewählt, da man die Beryllium-Messung so schnell wie möglich durchführen möchte. Würde der Strom erst nach diesen Zeitintervallen hoch werden, müsste man alle Proben mindestens so lange messen, das liegt aber nicht im Interesse der Forschungsgruppe.

Die Proben sind Pulverproben und sie setzen sich zusammen aus Berylliumoxid und verschiedenen Metallen, welche in unterschiedlichen Verhältnissen beigemischt wurden. Um die kumulative Ionenausbeute zu bestimmen, muss folgendes Verhältnis berechnet werden: Die nach einer gewissen Zeit gesammelten BeO⁻-Ionen im *Faraday-Cup* zu den BeO-Atomen in der Probe. Aus den jeweiligen Yields sollen die effizientesten Elemente und die besten Mischungsverhältnisse ermittelt werden. Es stehen fünf Metalle (Eisen, Niob, Kupfer, Chrom und Silber) zur Verfügung, aus denen im ersten Experiment über die Quelle 1 des Beschleunigers die drei mit den höchsten Ionenströmen innerhalb der ersten 4000s herausgefiltert werden. Außerdem wird untersucht, ob die Metallpulver eine ¹⁰Be-Kontamination aufweisen. Falls die drei Metalle mit den höchsten Ionenströmen kein ¹⁰Be enthalten, werden sie im zweiten Experiment dann genauer untersucht.

In der folgenden Arbeit wird zu Beginn die Beschleunigeranlage, vor allem die für die Messung wichtigen Teilbereiche, kurz präsentiert. Im Anschluss werden die Vorbereitungen für die jeweiligen Messungen erläutert, um darauf aufbauend die Ergebnisse der Experimente vorzustellen und zu diskutieren.

2. VERA

Der Vienna Environmental Research Accelerator (kurz VERA) ist ein 3-MV-Pelletron-Tandembeschleuniger, der insbesondere für Beschleuniger-Massenspektrometrie (*accelerator mass spectrometry*, kurz AMS) von der Forschungsgruppe Isotopenphysik der Universität Wien benutzt wird [1]. Abbildung 2.1 zeigt schematisch die gesamte Anlage. Für die erste Messung zur Bestimmung der drei effizientesten Elemente wird die Quelle 1 (*Source1*) verwendet. Des Weiteren sollen alle verwendeten Proben auf eine Kontamination von ^{10}Be untersucht werden. Dafür wird das Isotopenverhältnis $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ berechnet.

^{10}Be ist ein natürlich vorkommendes Radionuklid, welches in der Natur in Spuren vorkommt, während ^9Be das stabile Isotop ist und dementsprechend um viele Größenordnungen häufiger auftritt. Dennoch kann ^{10}Be nicht vernachlässigt werden. Dieses Isotop wird hauptsächlich durch kosmische Strahlung in der Erdatmosphäre oder in Gesteinen aus Stickstoff und Sauerstoff erzeugt (z.B. über den Prozess $^{14}\text{N}(n, p \alpha)^{10}\text{Be}$).

Für die zweite Messung zur Bestimmung des größten Ionenstroms innerhalb der ersten beiden Stunden aus den Mischungen mit diesen drei Metallen für verschiedene Mischungsverhältnisse wird die Quelle 2 (*Source2*) eingesetzt. Diese Zeitspanne von zwei Stunden ist wichtig, denn man möchte die Messung so schnell wie möglich durchführen und die Proben mit dem höchsten Strom innerhalb dieser Zeit herausfiltern.

2.1. Ionenquellen

Sowohl Quelle 1 als auch Quelle 2 sind MCSNICS (*Multi-Cathode Source of Negative Ions by Cesium Sputtering*) Quellen der Firma NEC (*National Electrostatics Corp.*). In diese Ionenquellen lassen sich Probenräder einbauen, die jeweils bis zu 40 Target-Kathoden (mit den verschiedenen Probenmaterialien) halten können (siehe Abbildung 3.1). Nachdem das Probenrad in die Ionenquelle eingebaut und die Quelle ordnungsgemäß eingeschaltet wird, werden durch Erhitzen eines Cäsium-Reservoir Cs-Atome an einer heißen Tantal-Oberfläche (*Ionizer*) ionisiert. Diese positiv geladenen Cs-Ionen werden aufgrund eines Potentialunterschieds von 5 kV zwischen Probenrad und Ionizer auf die Kathoden beschleunigt. Dort "zerstäuben" (engl. *sputter*) sie das Probenmaterial und ionisieren herausgeschlagene Atome/Moleküle (in diesem Experiment: BeO^-), welche anschließend die Quelle verlassen und nach Selektion mittels eines Massenspektrometers zum Tandembeschleuniger gelangen.

2. VERA

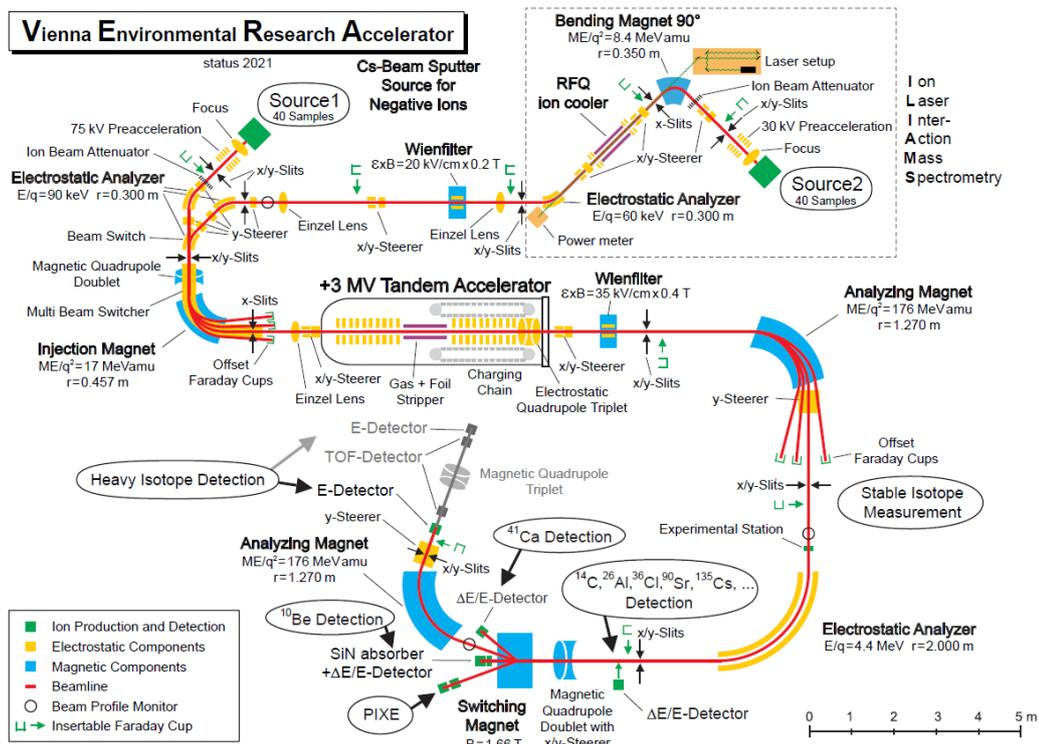


Abbildung 2.1.: Schematische Darstellung der gesamten Anlage VERA.

2.2. Tandembeschleuniger

Am Beschleuniger verlieren die BeO^- -Ionen durch das *Stripper*-Gas Elektronen und werden aufgebrochen [3]. Bei einer Spannung von 3 MV (die für Beryllium benötigt werden) werden die Bruchstücke der Moleküle beschleunigt und anschließend von einem Hochenergiemagneten nach Be^{2+} selektiert. Um einen Ionenstrom zu erhalten, werden die ${}^9\text{Be}^{2+}$ nach dem Hochenergiemagneten von einem Faraday-Cup aufgefangen und der Strom wird in Abhängigkeit von der Zeit ermittelt.

Die verwendeten Metallpulver müssen außerdem auf eine Kontamination von ${}^{10}\text{Be}$ überprüft werden. Dafür werden die ${}^{10}\text{Be}^{2+}$ -Ionen nach erneuter Massenseparation in einer Gasionisationskammer detektiert.

2.3. ${}^{10}\text{Be}$ -Detektor

Bei der Messung von ${}^{10}\text{Be}$ ergibt sich ein grundlegendes Problem: Das stabile und viel häufiger vorkommende Isobar ${}^{10}\text{B}$. Um dieses nun von ${}^{10}\text{Be}$ zu trennen wird sich dem Fakt bedient, dass Bor eine höhere Kernladungszahl Z hat ($Z_{\text{B}}=5$, $Z_{\text{Be}}=4$).

Aufgrund dieser Eigenschaft hat Bor in Materie einen höheren Energieverlust als Beryllium und das wird ausgenutzt, indem vor dem Detektor ein Stapel von Siliciumnitrid-Folien angebracht wird, in welchem die Bor-Ionen abgestoppt werden, während die Beryllium-Ionen zwar den Großteil ihrer Energie verlieren, aber dennoch in den Detektor gelangen können [3].

Der ^{10}Be -Detektor ist ein Zwei-Anoden Gas Ionisationsdetektor [3]. Darin befinden sich (wie der Name schon sagt) zwei Anoden und eine einzelne Kathode, welche sich über die gesamte Länge des Detektors erstreckt. Zwischen der Kathode und den Anoden ist eine Spannung angelegt. Ein positiv geladenes ^{10}Be -Ion verliert sowohl in dem einen als auch in dem anderen elektrischen Feld eine gewisse Energie und dieser Energieverlust wird in einem Diagramm aufgetragen, wobei auf der x-Achse der Energieverlust durch die erste Anode und auf der y-Achse der Energieverlust durch die zweiten Anode aufgetragen ist (siehe Abbildung 2.2). Normalerweise würde der Unterschied in der Kernladungszahl zwischen Beryllium und Bor ausreichen, um in diesem Diagramm ^{10}Be und ^{10}B voneinander zu trennen. Allerdings ist ^{10}B , wie oben schon erwähnt, ein viel häufiger vorkommendes Isotop als ^{10}Be und dementsprechend würde der ^{10}B -Strahl (ohne Siliciumnitrid-Folien) den Detektor überladen und man könnte kein sinnvolles Signal mehr erhalten [3].

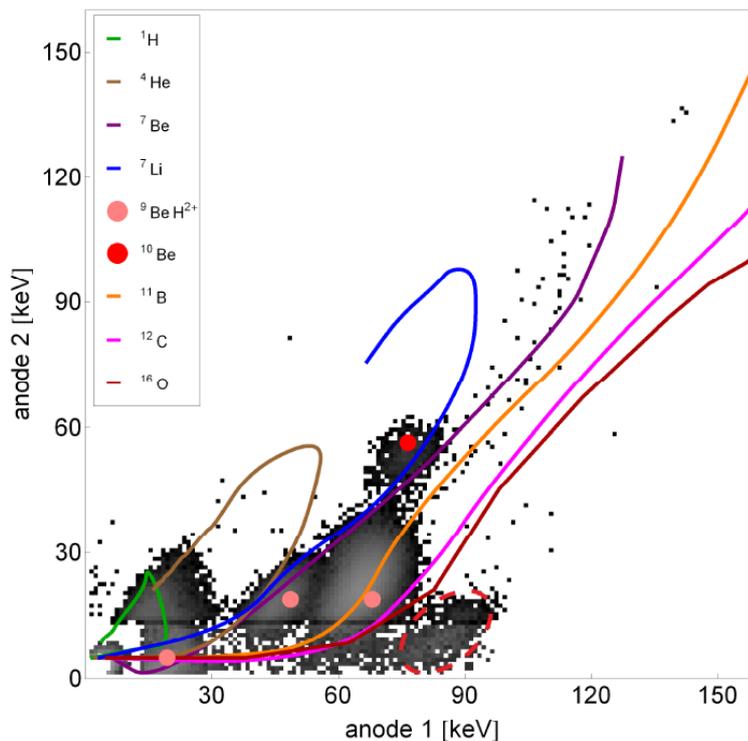


Abbildung 2.2.: Das Spektrum des Energieverlustes an der ersten Anode (anode 1) und an der zweiten Anode (anode 2) für drei Probenmaterialien ist in grau gezeigt. Die Kurven (Tails) und die Punkte in Farbe wurden mittels Simulationen bestimmt. Der rote Punkt zeigt die Position für $^{10}\text{Be}^{2+}$. [2]

2. VERA

Für verschiedene Isotope gibt es nun charakteristische Strukturen in solchen Plots (siehe Abbildung 2.2). ^{10}Be zum Beispiel hat ein "Feld" in diesem Diagramm, während zum Beispiel auch "Tails", also Kurven, sichtbar sein können, welche durch Kernreaktionen entstehen. So eine Kernreaktion wäre zum Beispiel $p(^{10}\text{Be}, \alpha)^7\text{Be}$, welche dadurch zustande kommt, dass Ionen die Siliciumnitrid-Folien treffen und das Isotop ^7Be in den Detektor gelangt [2].

Also besitzt ^{10}Be in solchen Plots ein charakteristisches Feld, aus welchem die Anzahl an ^{10}Be -Ionen, die im Detektor ankommen, bestimmt werden kann. Die Größe und Position dieses Feldes ist bekannt durch Standards.

Standards haben eine essenzielle Rolle in der AMS. Sie werden verwendet, um Relativmessungen von Isotopenverhältnissen zu ermöglichen, denn wenn man direkt das Isotopenverhältnis $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ bestimmen würde, indem man die Anzahl der im Detektor gezählten ^{10}Be -Ionen durch die Anzahl der im Faraday-Cup gezählten ^9Be -Ionen dividieren würde, würde das falsche Verhältnis herauskommen, denn entlang der Trajektorie des ^{10}Be - beziehungsweise des ^9Be -Strahls treten Verluste auf und diese Verluste zu quantifizieren ist extrem schwierig. Deshalb werden Standards verwendet, von welchen das Isotopenverhältnis bekannt ist. Wenn von dieser Probe ein anderes Verhältnis gemessen wird, müssen die zu untersuchenden Proben mit einem Korrekturfaktor multipliziert werden, um das richtige Verhältnis zu erhalten.

2.4. *Bending Magnet* und Faraday-Cup

Für die zweite Messung wird die Quelle 2 verwendet. Das Funktionsprinzip dieser Quelle ist dasselbe wie beim ersten Experiment. Nachdem die BeO^- -Ionen die Quelle verlassen, werden sie fokussiert und durch einen 90° -Ablenkmagneten wird der Ionenstrahl gemäß dem Verhältnis Impuls/Ladung in mehrere Ionenstrahlen aufgeteilt. Die jeweiligen Ströme können anschließend mit einem Faraday-Cup aufgefangen und analysiert werden, für die zweite Messung ist allerdings nur der $^9\text{BeO}^-$ -Strahl wichtig.

3. Erstes Experiment - Materialscreening

3.1. Vorbereitung

Die Vorbereitung für das erste Experiment wurde von Dipl.-Chem. Dr. Silke Merchel durchgeführt. Berylliumoxid (BeO) wurde in verschiedenen Verhältnissen mit den Metallen Niob (Nb), Kupfer (Cu), Eisen (Fe), Chrom (Cr) und Silber (Ag) gemischt und in Kupferkathoden gepresst. Tabelle 3.1 zeigt sowohl die Mischverhältnisse als auch die Menge (in mg) des Probenmaterials in den einzelnen Kathoden. Die gepressten Kathoden werden in das Kupfer-Probenrad (siehe Abbildung 3.1) eingebaut und anschließend in der Ionenquelle platziert, wo das Probenmaterial angesputtert wird.

Bevor die Ionenquelle eingeschaltet und die Messung gestartet werden kann, muss die Beschleunigeranlage auf das zu untersuchende Material "getuned" werden. Das bedeutet, dass die einzelnen Abschnitte (Fokussierungslinsen, Magnete, etc.) von VERA angepasst werden müssen, damit der ^{10}Be -Strahl so fokussiert wie möglich den Beryllium-Detektor und der ^9Be -Strom einen Offset-Faraday-Cup nach dem Tandembeschleuniger erreichen können.

Kathodeninhalt	Probenrad-Nummer	Verhältnis	BeO (mg)	Metall (mg)
BeO:Nb	13	1:4	0.28	1.10
BeO:Nb	14	1:10	0.31	3.10
BeO:Cu	15	1:4	0.29	1.27
BeO:Fe	16	1:4	0.26	0.98
BeO:Fe	17	1:9	0.24	2.08
BeO:Cr	18	1:4	0.21	0.85
BeO:Ag	19	1:4	0.32	1.3

Tabelle 3.1.: Inhalt und Probenrad-Nummer für die sieben benutzten Kathoden im ersten Experiment. Verhältnis von BeO zu den jeweiligen Metallen und die tatsächlich eingepresste Menge.

3. Erstes Experiment - Materialscreening



Abbildung 3.1.: Kupfer-Probenrad mit den Standards (5, 10, 25, 30, 35) und den zu untersuchenden Kathoden (13-19). An den Stellen 0-4 und 6-9 befinden sich Kathoden, welche nicht direkt Teil dieses Experiments sind.

Dieses Tunen hat im ersten Experiment einige Zeit gedauert, da der Tandembeschleuniger nicht auf die benötigten 3 MV geladen werden konnte, die für die Beryllium-Messung notwendig sind. Nach einigen Versuchen konnte die Anlage getuned werden und die Messung konnte gestartet werden.

3.2. Ergebnisse

Jede der sieben Kathoden wurde insgesamt zwischen 4000 und 4300s lang angesputtert. Abbildung 3.2 zeigt die nach dem Tandembeschleuniger in einem Offset-Faraday-Cup gemessenen ${}^9\text{Be}^{2+}$ -Ionenströme I in Ampere in Abhängigkeit der Sputterzeit t in Sekunden. Da alle Kathoden eine ähnliche Menge an Berylliumoxid enthalten (siehe Tabelle 3.1) kann aus der Grafik abgelesen werden, welche der sieben Kathoden den höchsten Ionenstrom (und daraus folgend die höchste kumulative Ionenausbeute nach circa einer Stunde) liefern.

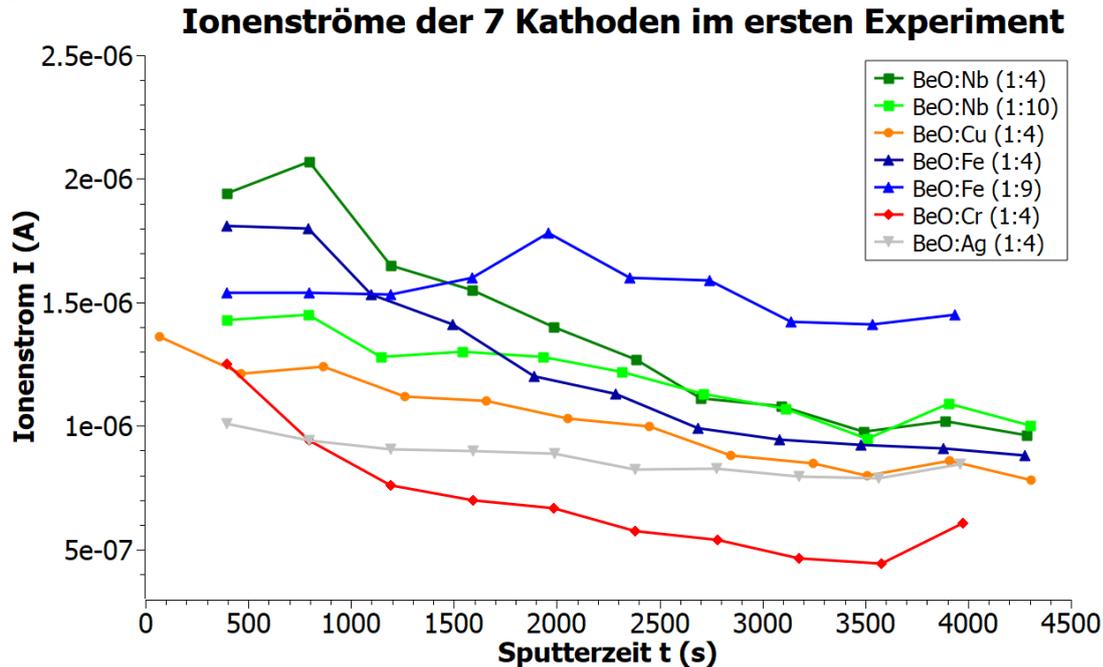


Abbildung 3.2.: ${}^9\text{Be}^{2+}$ -Ionenströme I in Ampere in Abhängigkeit der Sputterzeit t in Sekunden. Die grünen Datenpunkte sind die Niob-Mischungen, die blauen sind die Eisen-Mischungen. Orange, silber und rot sind die Kathoden, welche Kupfer, Silber und Chrom enthalten.

Aus der Grafik ist klar ersichtlich, dass sowohl die Niob-, als auch die Eisen-Mischungen höhere Ströme liefern, als die Kupfer-, Silber- und Chrom-Mischungen. Zu Beginn des Sputter-Prozesses haben die BeO:Nb/Fe-Kathode in dem Mischverhältnis 1:4 den höchsten Strom. Allerdings nimmt dieser bei beiden mit der Zeit deutlich ab und für Niob sind nach circa 1h die Ionenströme für die 1:9- und die 1:4-Kathode fast identisch. Bei Eisen hingegen übersteigt die 1:9-Kathode ziemlich schnell und eindeutig die 1:4-Kathode. Nach circa 1h ist der Strom dieser Kathode der höchste.

Neben dem ${}^9\text{Be}$ -Ionenstrom, den die Kathoden liefern, ist für die Messung auch wichtig, ob die Proben eine ${}^{10}\text{Be}$ -Kontamination aufweisen. Um dies zu untersuchen, werden die ${}^{10}\text{Be}$ -Ionen (wie in Kapitel 2.3 beschrieben) im ${}^{10}\text{Be}$ -Detektor gemessen und das Isotopenverhältnis ${}^{10}\text{Be}/{}^9\text{Be}$ bestimmt. Tabelle 3.2 zeigt dieses Verhältnis (samt Unsicherheit) für die sieben Kathoden. Hier ist zu beachten, dass das Verhältnis nicht das direkt gemessene ist, sondern die Daten bereits normiert auf einen Standard vorliegen.

3. Erstes Experiment - Materialscreening

Probe	$^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ (normiert, 10^{-15})
BeO:Nb (1:4)	(1.48 ± 0.31)
BeO:Nb (1:10)	(1.62 ± 0.35)
BeO:Cu (1:4)	(2.19 ± 0.46)
BeO:Fe (1:4)	(0.93 ± 0.27)
BeO:Fe (1:9)	(0.81 ± 0.25)
BeO:Cr (1:4)	(1.99 ± 0.55)
BeO:Ag (1:4)	(1.69 ± 0.55)

Tabelle 3.2.: Das auf einen Standard normierte Isotopenverhältnis $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ samt Unsicherheit für die sieben benutzten Kathoden im ersten Experiment.

Der am VERA verwendete Langzeit-Blank für ^{10}Be besitzt ein Isotopenverhältnis von $1.5 \cdot 10^{-15}$. Vergleicht man die Verhältnisse aus Tabelle 3.2 mit diesem Wert erkennt man, dass Niob, Eisen, Chrom und Silber (innerhalb der Unsicherheit) diesen Wert innehaben bzw. unter ebendiesem Wert liegen. Nur Kupfer hat selbst innerhalb der Unsicherheit ein etwas zu hohes Isotopenverhältnis. Diese Erhöhung ist aber nicht signifikant, weshalb angenommen werden kann, dass alle Metalle so wenig ^{10}Be enthalten, dass sie für die weitere Untersuchung verwendet werden können.

Allerdings gehen aus der Abbildung 3.2 die beiden Metalle Niob und Eisen als Mischmaterialien für Berylliumoxid hervor. Um einen Vergleich zu früheren Messungen zu erhalten, in denen Berylliumoxid mit Kupfer gemischt wurde, wird auch Kupfer im nächsten Experiment genauer untersucht.

4. Zweites Experiment

4.1. Vorbereitung

Mit der Unterstützung von Dipl.-Chem. Dr. Silke Merchel wird die Vorbereitung für die Hauptmessung durchgeführt. Dafür werden die drei ausgewählten Metalle in drei verschiedenen Massenverhältnissen mit Berylliumoxid gemischt. Diese drei Verhältnisse sind 1:2, 1:4 und 1:8, das bedeutet, dass ein Teil Berylliumoxid mit zwei, vier oder acht Teilen des entsprechenden Metalls vermengt wird. Anschließend wird das erhaltene Gemisch gedrittelt, um für jedes Metall und jedes Verhältnis drei Proben zu erhalten, und in Kathoden gepresst (siehe Abbildung 4.1). Dies wurde getan, um zu überprüfen, ob beim Pressen und beim Einbauen ins Probenrad alles ordnungsgemäß verlaufen ist, also ob die Reproduzierbarkeit und somit die Reliabilität der Messung gegeben ist. Damit stehen 27 Kathoden zur Verfügung, welche, wie im ersten Experiment, in ein Probenrad eingebaut und in der Ionenquelle angesputtert werden. An den Positionen 0 und 1 befinden sich alte C-14-Blanks und an der Position 35 ist eine Kathode mit Phenakit, welches kein beziehungsweise kaum ^{10}Be beinhaltet. "Kaum" bedeutet hier, dass das Isotopenverhältnis $^{10}\text{Be}/^9\text{Be} = 10^{-16}$ ist.



Abbildung 4.1.: Kupfer-Kathode, in welches das Probenmaterial (Berylliumoxid im Verhältnis 1:8 mit Niob) gepresst ist.

4. Zweites Experiment

Tabelle 4.1 zeigt neben den Positionen auch die Mischverhältnisse und die Menge (in mg) des Probenmaterials der einzelnen Kathoden samt Unsicherheit.

Kathodeninhalt	Position	Verhältnis	Probenmenge (mg)
BeO:Nb	2	1:2	(1.64 ± 0.05)
BeO:Nb	3	1:2	(1.37 ± 0.05)
BeO:Nb	4	1:2	(1.06 ± 0.05)
BeO:Nb	5	1:4	(2.25 ± 0.05)
BeO:Nb	6	1:4	(1.46 ± 0.05)
BeO:Nb	7	1:4	(0.97 ± 0.05)
BeO:Nb	8	1:8	(2.43 ± 0.05)
BeO:Nb	9	1:8	(1.41 ± 0.05)
BeO:Nb	10	1:8	(0.97 ± 0.05)
BeO:Cu	12	1:2	(1.71 ± 0.05)
BeO:Cu	13	1:2	(0.93 ± 0.05)
BeO:Cu	14	1:2	(1.09 ± 0.05)
BeO:Cu	15	1:4	(1.93 ± 0.05)
BeO:Cu	16	1:4	(1.58 ± 0.05)
BeO:Cu	17	1:4	(0.99 ± 0.05)
BeO:Cu	18	1:8	(2.38 ± 0.05)
BeO:Cu	19	1:8	(1.10 ± 0.05)
BeO:Cu	20	1:8	(0.93 ± 0.05)
BeO:Fe	22	1:2	(1.29 ± 0.05)
BeO:Fe	23	1:2	(1.99 ± 0.05)
BeO:Fe	24	1:2	(1.51 ± 0.05)
BeO:Fe	25	1:4	(1.78 ± 0.05)
BeO:Fe	26	1:4	(1.98 ± 0.05)
BeO:Fe	27	1:4	(1.11 ± 0.05)
BeO:Fe	28	1:8	(1.80 ± 0.05)
BeO:Fe	29	1:8	(1.56 ± 0.05)
BeO:Fe	30	1:8	(0.76 ± 0.05)

Tabelle 4.1.: Inhalt und Probenrad-Nummer für die 27 benutzten Kathoden im zweiten Experiment. Verhältnis von BeO zu den jeweiligen Metallen und die gesamt eingepresste Menge samt Unsicherheit.

Die Unsicherheit der benutzten Waage ist ± 0.02 mg, aber da die Probenmenge aus der Differenz der Kathode mit Inhalt und Kathode ohne Inhalt bestimmt wird, wird eine etwas höhere Unsicherheit der Probenmenge gewählt.

Wie in Kapitel 2 schon erwähnt wird für dieses Experiment die Quelle 2 von VERA verwendet. Hier wird gemessen, wie viel BeO^- im Faraday-Cup nach der Ionenquelle und einem Bending Magnet ankommt, also wird erneut der Ionenstrom gemessen. Aus der

Messung der Ionenströme und dem Wissen, wie viel BeO sich in jeder Kathode befindet, kann man die kumulative Ionenausbeute der Kathoden bestimmen. Diese ist abhängig von der Sputterzeit und gibt an, welcher Anteil von Berylliumoxid in der Kathode nach einer gewissen Zeit den Faraday-Cup erreicht hat. Allerdings ist für dieses Experiment nicht die Ionenausbeute, sondern die Ladung, die nach 1h beziehungsweise nach 2h im Faraday-Cup gesammelt wird, wichtig. Dennoch wird im folgenden kurz beschrieben, wie die kumulative Ionenausbeute bestimmt werden könnte.

Um die Anzahl an BeO-Moleküle in der Kathode N_K auszurechnen wird folgende Formel verwendet:

$$N_K = \frac{M * N_A}{m_{BeO}} \quad (4.1)$$

Hier ist M die Masse von Berylliumoxid in einer Kathode, N_A ist die Avogadro-Konstante ($N_A=6.022*10^{23} \text{ mol}^{-1}$) und m_{BeO} ist die Molmasse von Berylliumoxid ($m_{BeO}=25.0116 \text{ g/mol}$). Ebenso wird die Anzahl an BeO^- -Ionen benötigt, die am Faraday-Cup ankommen und einen Strom liefern. Diese Anzahl N_F wird folgendermaßen bestimmt:

$$N_F(t_s) = \frac{I * t_s}{e} \quad (4.2)$$

I bezeichnet den am Faraday-Cup gemessenen Strom während der Sputterzeit t_s und e ist die Elementarladung ($e=1.602*10^{-19} \text{ C}$). Um anschließend die Ionisations-Effizienz E zu bestimmen, welche von der Sputterzeit t_s abhängt, muss das Verhältnis $N_F(t_s)$ zu N_K berechnet werden.

Wie bereits erwähnt ist die insgesamt nach 1h beziehungsweise nach 2h gesammelte Ladung $Q(t_s)$ am Faraday-Cup wichtiger. Um diese zu bestimmen muss der gemessene Strom I mit der Sputterzeit t_s multipliziert werden. Somit ergibt sich, in Analogie zu Gleichung 4.2, folgende Formel:

$$Q(t_s) = I * t_s = N_F(t_s) * e \quad (4.3)$$

Die Zeitintervalle von einer beziehungsweise von zwei Stunden wurden gewählt, da die Forschungsgruppe Isotopenphysik die Messung so schnell wie möglich durchführen möchte und dafür will man den Ionenstrom innerhalb der ersten beiden Stunden optimieren. Würde der Strom beispielsweise erst nach drei Stunden hoch werden, müsste man alle Proben mindestens drei Stunden messen und das liegt nicht im Interesse der Forschungsgruppe.

Die 27 Kathoden werden nacheinander für eine gewisse Zeit T angesputtert. Der Sputterprozess innerhalb dieser Zeit T wird auch "Massenscan" genannt. Zuerst erfolgt ein Massenscan von der Kathode an der Position 2 im Probenrad, dann Position 3 usw. Wenn alle Kathoden einmal eine Zeit T angesputtert wurden, beginnt erneut ein Massenscan von der Kathode an der Position 2, dann Position 3 usw. Drei volle Umdrehungen (also drei Massenscans aller 27 Kathoden) ist ein sogenannter "Turn".

4. Zweites Experiment

4.2. Ergebnisse

Tabelle 4.2 zeigt für jede Kathode sowohl die am Faraday-Cup gezählten Ionen nach 3814.5s (circa 1h) und nach 7247.6s (circa 2h) Sputterzeit, als auch die Anzahl an BeO-Molekülen, welche vor dem Sputtern in der Kathode waren.

Kathode	Position	N_K (10^{19})	$N_F(3814.5s)$ (10^{16})	$N_F(7247.6s)$ (10^{17})
BeO:Nb (1:2)	2	(1.316 ± 0.040)	(6.359 ± 0.023)	(1.474 ± 0.010)
BeO:Nb (1:2)	3	(1.100 ± 0.040)	(6.278 ± 0.023)	(1.3443 ± 0.0094)
BeO:Nb (1:2)	4	(0.851 ± 0.040)	(6.774 ± 0.025)	(1.2393 ± 0.0086)
BeO:Nb (1:4)	5	(1.083 ± 0.024)	(6.927 ± 0.025)	(1.2878 ± 0.0090)
BeO:Nb (1:4)	6	(0.703 ± 0.024)	(6.480 ± 0.024)	(1.0546 ± 0.0074)
BeO:Nb (1:4)	7	(0.467 ± 0.024)	(5.491 ± 0.020)	(0.8015 ± 0.0056)
BeO:Nb (1:8)	8	(0.650 ± 0.013)	(5.725 ± 0.021)	(1.0229 ± 0.0071)
BeO:Nb (1:8)	9	(0.377 ± 0.013)	(4.968 ± 0.018)	(0.7120 ± 0.0050)
BeO:Nb (1:8)	10	(0.260 ± 0.013)	(4.690 ± 0.017)	(0.5727 ± 0.0040)
BeO:Cu (1:2)	12	(1.372 ± 0.040)	(1.8347 ± 0.0067)	(0.5309 ± 0.0037)
BeO:Cu (1:2)	13	(0.746 ± 0.040)	(2.5875 ± 0.0095)	(0.6841 ± 0.0047)
BeO:Cu (1:2)	14	(0.875 ± 0.040)	(2.6830 ± 0.0099)	(0.6719 ± 0.0047)
BeO:Cu (1:4)	15	(0.929 ± 0.024)	(5.304 ± 0.019)	(0.9890 ± 0.0069)
BeO:Cu (1:4)	16	(0.761 ± 0.024)	(5.310 ± 0.019)	(0.9460 ± 0.0066)
BeO:Cu (1:4)	17	(0.477 ± 0.024)	(3.148 ± 0.012)	(0.6282 ± 0.0044)
BeO:Cu (1:8)	18	(0.637 ± 0.013)	(2.0022 ± 0.0073)	(0.4072 ± 0.0028)
BeO:Cu (1:8)	19	(0.294 ± 0.013)	(3.213 ± 0.012)	(0.4654 ± 0.0032)
BeO:Cu (1:8)	20	(0.249 ± 0.013)	(3.511 ± 0.013)	(0.4505 ± 0.0031)
BeO:Fe (1:2)	22	(1.035 ± 0.040)	(6.982 ± 0.026)	(1.3737 ± 0.0096)
BeO:Fe (1:2)	23	(1.597 ± 0.040)	(7.263 ± 0.027)	(1.2689 ± 0.0089)
BeO:Fe (1:2)	24	(1.212 ± 0.040)	(6.233 ± 0.023)	(1.2883 ± 0.0090)
BeO:Fe (1:4)	25	(0.857 ± 0.024)	(5.965 ± 0.022)	(1.0521 ± 0.0073)
BeO:Fe (1:4)	26	(0.953 ± 0.024)	(5.739 ± 0.021)	(1.0725 ± 0.0075)
BeO:Fe (1:4)	27	(0.535 ± 0.024)	(5.455 ± 0.020)	(0.8078 ± 0.0056)
BeO:Fe (1:8)	28	(0.482 ± 0.013)	(5.074 ± 0.019)	(0.9127 ± 0.0064)
BeO:Fe (1:8)	29	(0.417 ± 0.013)	(5.424 ± 0.020)	(0.9388 ± 0.0065)
BeO:Fe (1:8)	30	(0.203 ± 0.013)	(3.959 ± 0.015)	(0.4727 ± 0.0033)

Tabelle 4.2.: Anzahl der BeO-Moleküle in der Kathode N_K und der am Faraday-Cup angekommenen BeO^- -Ionen $N_F(t_s)$ nach 3814.5s und 7247.6s Sputterzeit für alle 27 Kathoden samt Unsicherheit.

Die Unsicherheiten für N_K und $N_F(t_s)$ wurden mit Hilfe des Gaußschen Fehlerfortpflanzungsgesetz bestimmt, wobei M und t_s fehlerbehaftet sind. Die Sputterzeit T eines Massenscans ist von Turn zu Turn etwas unterschiedlich, weshalb hier ein Mittelwert gebildet wird: Es wurden die Turns 3-7 gewählt und aus jedem dieser Turns 13 Sputterzeiten T zufällig gewählt. Aus diesen 65 Zeiten wird der Mittelwert \bar{T} bestimmt:

$$\bar{T} = (381.45 \pm 0.14)\text{s}$$

Hierbei ist $\Delta\bar{T}$ die Standardabweichung des Mittelwerts ($\Delta\bar{T} = \frac{\sigma}{\sqrt{n}}$, σ ist die Standardabweichung der Einzelwerte und $n=65$). Somit ist $N_F(3814.5\text{s})$ die Anzahl an BeO^- -Ionen, die nach drei gesamten Turns und einem Massenscan ($t_s=10\bar{T}$) am Faraday-Cup ankommen. $N_F(7247.6\text{s})$ hingegen ist die Anzahl an BeO^- -Ionen nach sechs Turns und einem Massenscan ($t_s=19\bar{T}$).

Nach Multiplikation von $N_F(t_s)$ mit der Elementarladung e (gemäß Gleichung 4.3) ergeben sich die gesammelten Ladungen $Q(3814.5\text{s})$ und $Q(7247.6\text{s})$ der 27 Kathoden in Abbildung 4.2. Die Unsicherheit ΔQ wird mit dem Gaußschen Fehlerfortpflanzungsgesetz bestimmt, wobei $N_F(t_s)$, gemäß Tabelle 4.2, fehlerbehaftet ist.

Um einen besseren Vergleich zwischen den jeweiligen Metallen zu haben, sind in den Abbildungen 4.3, 4.4 und 4.5 ebenfalls die gesammelten Ladungen nach 1h und nach 2h gezeigt für die 1:2, 1:4 und 1:8 gemischten Kathoden.

Außerdem wird in Abbildung 4.6 Q in Abhängigkeit der Sputterzeit t_s innerhalb der ersten 2h gezeigt. Hier wird über die Kathoden gemittelt, welche das selbe Metall beinhalten und im selben Verhältnis mit BeO gemischt sind. An den Datenpunkten $Q(3814.5\text{s})$ und $Q(7247.6\text{s})$ für die 9 gemittelten Kurven sind die Unsicherheiten der gesammelten Ladung eingezeichnet. Diese sind, wie bei der Einzel-Sputterzeit \bar{T} , über die Standardabweichung des Mittelwerts gegeben. Damit die Grafik nicht zu unübersichtlich wird, wurden nur an den beiden Sputterzeiten $t_s=3814.5\text{s}$ und $t_s=7247.6\text{s}$ die Unsicherheiten gezeigt. Des Weiteren wird in Abbildung 4.7 ebenfalls die gesammelte Ladung Q in Abhängigkeit der Sputterzeit t_s gezeigt, allerdings nur innerhalb der ersten Stunde. Ebenso wie in Abbildung 4.6 ist an der Stelle $t_s=3814.5\text{s}$ die Unsicherheit eingezeichnet.

4. Zweites Experiment

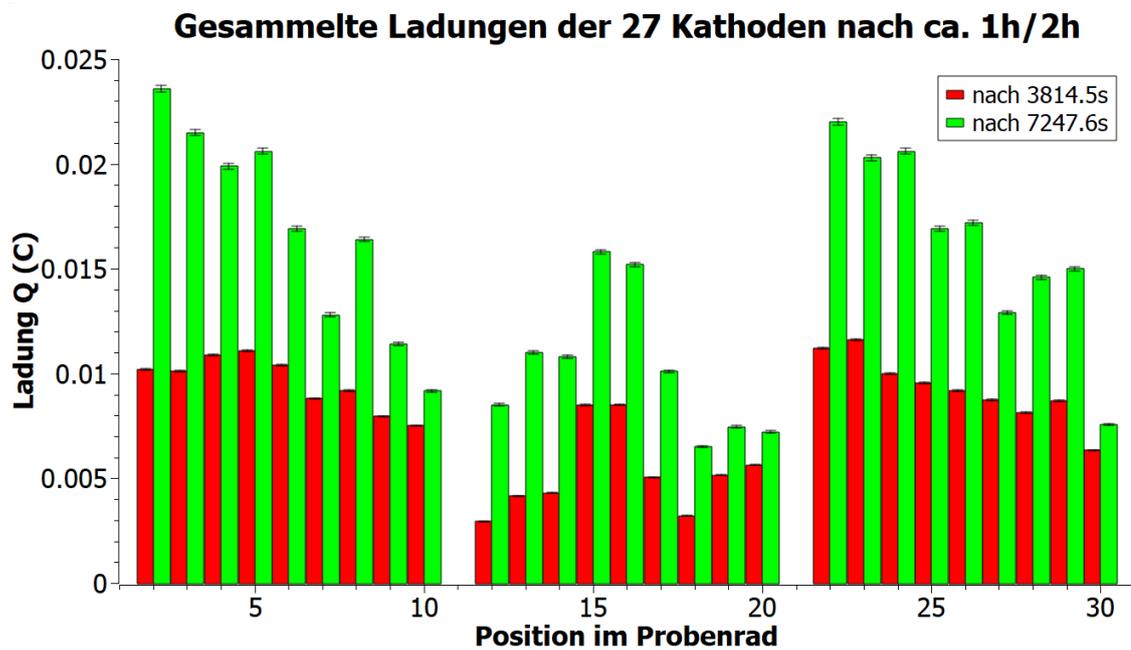


Abbildung 4.2.: Gesammelte Ladungen Q (samt Unsicherheit) aller 27 Kathoden nach 3814.5s und nach 7247.6s.

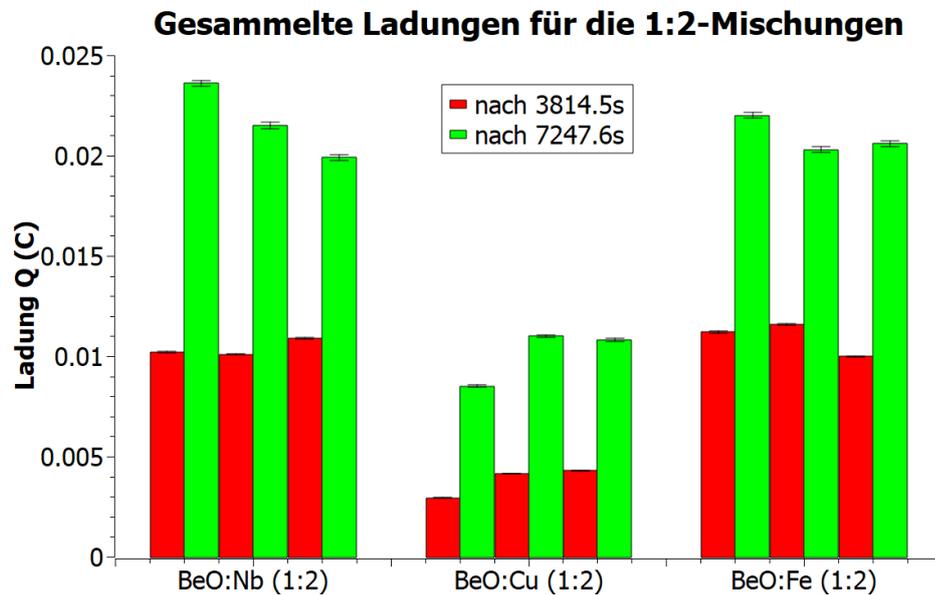


Abbildung 4.3.: Gesammelte Ladungen Q (samt Unsicherheit) der Kathoden mit dem Massenverhältnis 1:2 (BeO:Metall) nach 3814.5s und 7247.6s.

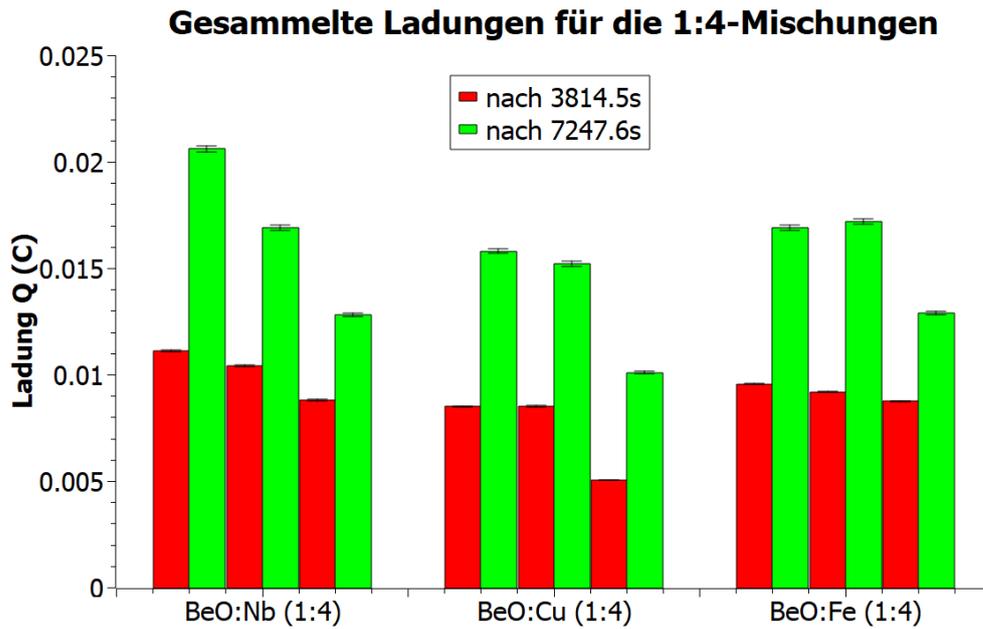


Abbildung 4.4.: Gesammelte Ladungen Q (samt Unsicherheit) der Kathoden mit dem Massenverhältnis 1:4 (BeO:Metall) nach 3814.5s und 7247.6s.

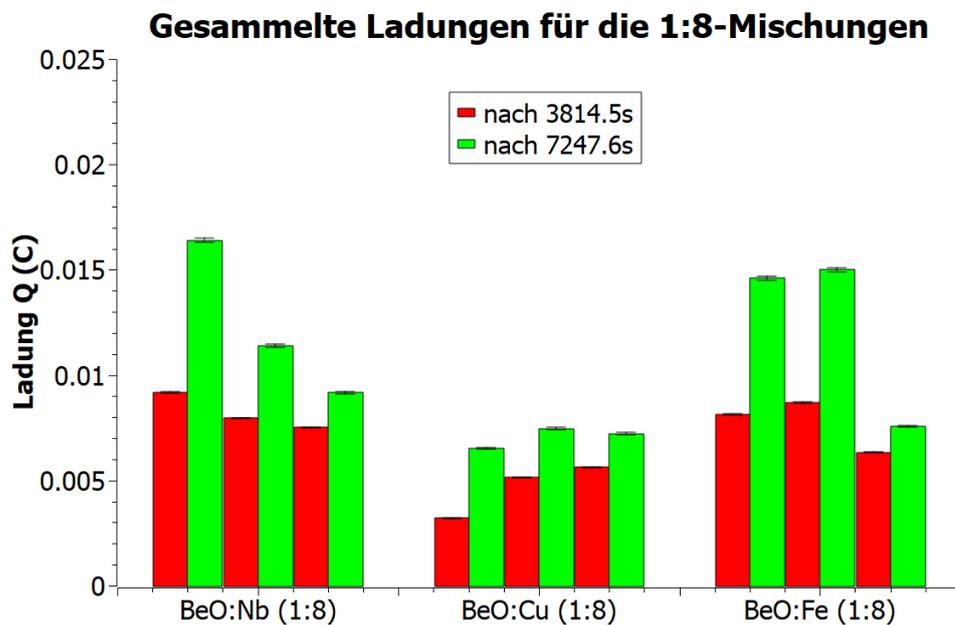


Abbildung 4.5.: Gesammelte Ladungen Q (samt Unsicherheit) der Kathoden mit dem Massenverhältnis 1:8 (BeO:Metall) nach 3814.5s und 7247.6s.

4. Zweites Experiment

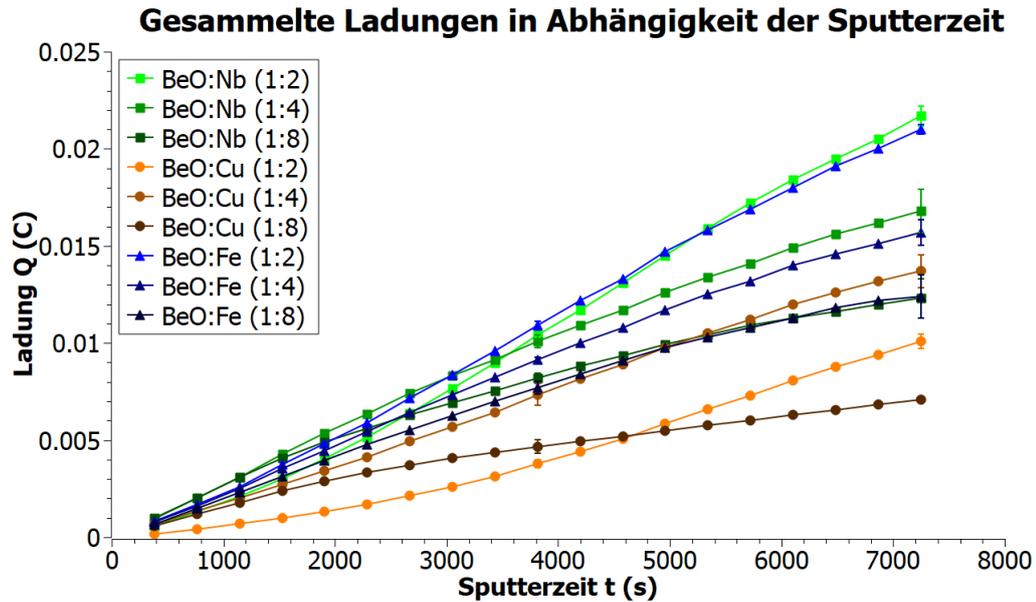


Abbildung 4.6.: Gesammelte Ladungen Q in Abhängigkeit der Sputterzeit t_s innerhalb der ersten zwei Stunden. Hier wurde für jede Kurve über die drei Kathoden mit gleichem Metall und Mischverhältnis gemittelt.

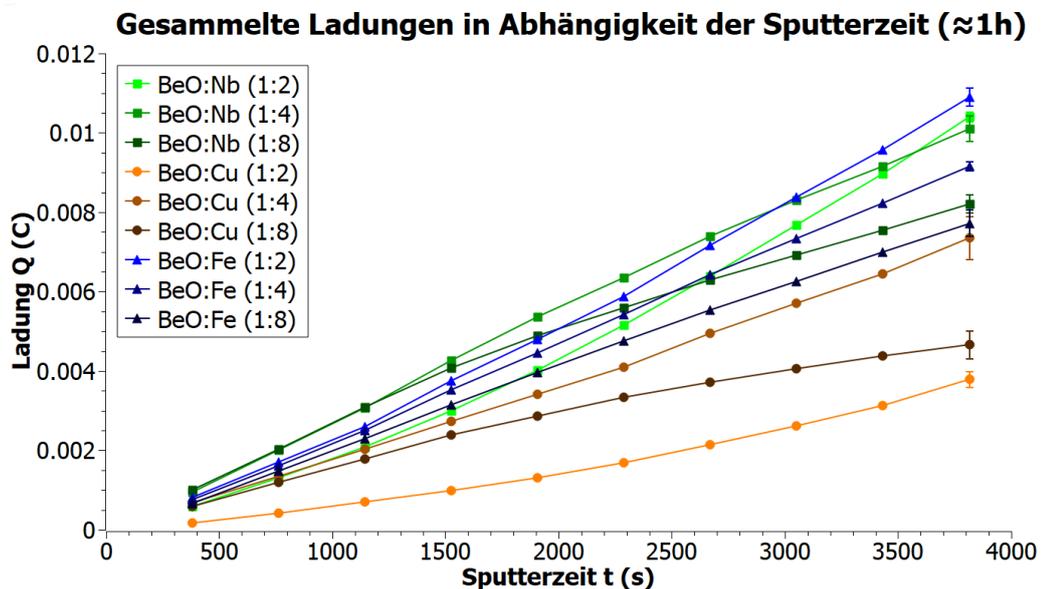


Abbildung 4.7.: Gesammelte Ladungen Q in Abhängigkeit der Sputterzeit t_s innerhalb der ersten Stunde. Hier wurde für jede Kurve über die drei Kathoden mit gleichem Metall und Mischverhältnis gemittelt.

4.3. Diskussion

Aus Abbildung 4.7 ist klar ersichtlich, dass nach einer Stunde (wenn man die Mittelwerte der drei Kathoden gleichen Inhalts) die Reihenfolge der höchsten gesammelten Ladung Q die Folgende ist:

1. BeO:Fe (1:2)
2. BeO:Nb (1:2)
3. BeO:Nb (1:4)
4. BeO:Fe (1:4)
5. BeO:Nb (1:8)
6. BeO:Fe (1:8)
7. BeO:Cu (1:4)
8. BeO:Cu (1:8)
9. BeO:Cu (1:2)

Das bedeutet, dass am Faraday-Cup die meisten BeO^- -Ionen von den Kathoden ankommen, in welchen Niob und Eisen im Verhältnis 2:1 mit Berylliumoxid gemischt sind. Nach circa einer Stunde liefern zwar die BeO:Nb-(1:4)-Kathoden innerhalb der Unsicherheit eine fast gleich große Ladung wie die BeO:Nb-(1:2)-Kathoden, allerdings übersteigt nach circa zwei Stunden die 1:2-Mischungen deutlich die 1:4-Mischungen (siehe Abbildung 4.6). Dasselbe ist bei Eisen beobachtbar, hier sind zwar die 1:2-Mischungen nach einer Stunde schon deutlich über den 1:4-Mischungen, aber mit der Zeit wird dieser Unterschied noch signifikanter.

Kathoden	\bar{Q} (mC)	$\bar{N}_F(3814.5s)$ (10^{16})	$\bar{N}_{10Be}(3814.5s)$
BeO:Fe (1:2)	(10.94 ± 0.23)	(6.83 ± 0.14)	(3142 ± 64)
BeO:Nb (1:2)	(10.37 ± 0.12)	(6.473 ± 0.075)	(2978 ± 35)
BeO:Nb (1:4)	(10.09 ± 0.32)	(6.30 ± 0.20)	(2898 ± 92)
BeO:Fe (1:4)	(9.16 ± 0.11)	(5.718 ± 0.069)	(2630 ± 32)
BeO:Nb (1:8)	(8.21 ± 0.23)	(5.12 ± 0.14)	(2355 ± 64)
BeO:Fe (1:8)	(7.72 ± 0.33)	(4.82 ± 0.21)	(2217 ± 97)
BeO:Cu (1:4)	(7.35 ± 0.54)	(4.59 ± 0.34)	(2110 ± 160)
BeO:Cu (1:8)	(4.66 ± 0.35)	(2.91 ± 0.22)	(1340 ± 100)
BeO:Cu (1:2)	(3.79 ± 0.20)	(2.37 ± 0.12)	(1090 ± 55)

Tabelle 4.3.: Gemittelte Ladung \bar{Q} , gemittelte Anzahl der am Faraday-Cup angekommenen BeO^- -Ionen $\bar{N}_F(3814.5s)$ und die gemittelte Anzahl an ^{10}Be -Ionen $\bar{N}_{10Be}(3814.5s)$, welche innerhalb von 3814.5s im ^{10}Be -Detektor gemessen werden würden, wenn die Probe ein Isotopenverhältnis von 10^{-13} aufweisen würde.

Tabelle 4.3 zeigt das Ergebnis der oben gezeigten Liste nochmal qualitativ.

4. Zweites Experiment

Hier beschreibt $\bar{N}_{10Be}(3814.5s)$ die Anzahl an ^{10}Be -Ionen, welche im ^{10}Be -Detektor gezählt werden würden, wenn die Probe ein Isotopenverhältnis von 10^{-13} aufweisen würde:

$$\bar{N}_{10Be}(t_s) = \bar{N}_F(t_s) * 10^{-13} * 0.46 \quad (4.4)$$

In dieser Gleichung wurde ebenfalls der ‘Verlustfaktor’ $V=0.46$ über die ganze Anlage miteinbezogen. Dieser bedeutet, dass am VERA ‘nur’ 46% der Atome, welche aus der Quelle kommen tatsächlich am Detektor gezählt werden.

In ähnlicher Weise lässt sich, gemäß Abbildung 4.6, eine Reihung der höchsten gesammelten Ladung Q bilden:

1. BeO:Nb (1:2)
2. BeO:Fe (1:2)
3. BeO:Nb (1:4)
4. BeO:Fe (1:4)
5. BeO:Cu (1:4)
6. BeO:Fe (1:8)
7. BeO:Nb (1:8)
8. BeO:Cu (1:2)
9. BeO:Cu (1:8)

Kathoden	\bar{Q} (mC)	$\bar{N}_F(7247.6s)$ (10^{17})	$\bar{N}_{10Be}(7247.6s)$
BeO:Nb (1:2)	(21.67 ± 0.51)	(1.353 ± 0.032)	(6220 ± 150)
BeO:Fe (1:2)	(20.99 ± 0.25)	(1.310 ± 0.016)	(6026 ± 74)
BeO:Nb (1:4)	(16.8 ± 1.1)	(1.049 ± 0.069)	(4830 ± 320)
BeO:Fe (1:4)	(15.66 ± 0.65)	(0.978 ± 0.041)	(4500 ± 190)
BeO:Cu (1:4)	(13.69 ± 0.85)	(0.855 ± 0.053)	(3930 ± 240)
BeO:Fe (1:8)	(12.4 ± 1.1)	(0.774 ± 0.069)	(3560 ± 320)
BeO:Nb (1:8)	(12.3 ± 1.0)	(0.768 ± 0.062)	(3530 ± 290)
BeO:Cu (1:2)	(10.08 ± 0.38)	(0.629 ± 0.024)	(2890 ± 110)
BeO:Cu (1:8)	(7.07 ± 0.13)	(0.4413 ± 0.0081)	(2030 ± 37)

Tabelle 4.4.: Gemittelte Ladung \bar{Q} , gemittelte Anzahl der am Faraday-Cup angekommenen BeO^- -Ionen $\bar{N}_F(7247.6s)$ und die gemittelte Anzahl an ^{10}Be -Ionen $\bar{N}_{10Be}(7247.6s)$, welche innerhalb von 7247.6s im ^{10}Be -Detektor gemessen werden würden, wenn die Probe ein Isotopenverhältnis von 10^{-13} aufweisen würde.

Im Vergleich der beiden Reihenfolgen ergibt sich, dass sowohl nach einer als auch nach zwei Stunden die Eisen- und Niob-Kathoden mit Mischungsverhältnis 1:2 und 1:4 die höchsten Ladungen liefern. Nach einer Stunde sind gemittelt die zwei Kupfer-Mischungen 1:2 und 1:8 deutlich unter den anderen, nur die Kupfer-1:4-Kathoden überschneiden sich innerhalb der Unsicherheit mit den Eisen-1:8-Kathoden.

Nach zwei Stunden übersteigt die Kupfer-1:4-Mischung die 1:8-Kathoden von Niob und Eisen, aber die 1:2- und 1:8-Kathoden von Kupfer unterliegen den anderen weiterhin deutlich.

Tabelle 4.4 zeigt (ebenso wie Tabelle 4.3) qualitativ die Ergebnisse aus der oben gezeigten Liste.

Diese Erkenntnisse sind auch aus Tabelle 4.2 und den Abbildungen 4.2, 4.3, 4.4 und 4.5 ablesbar, wobei darauf geachtet werden muss, dass die gesammelten Ladungen der Kathoden mit gleichem Inhalt und Verhältnis deutlich schwanken können (was in Abbildung 4.6 und 4.7 durch die Unsicherheit erkennbar ist). Dieser Unterschied in der gesammelten Ladung könnte einerseits daher kommen, dass Kathoden mit gleichem Inhalt und gleichem Mischverhältnis nicht dieselbe Anzahl an BeO-Moleküle N_K innehaben (siehe Tabelle 4.2). Andererseits könnten auch der Druck, mit welchem das Probenmaterial in die Kathode gepresst wurde, und das Einbauen in das Probenrad eine Rolle spielen, denn hier kann menschlicher Fehler nicht ausgeschlossen werden.

Dementsprechend liefert die Abbildung 4.6 den besten Überblick darüber, welche Metalle in welchen Verhältnissen mit Berylliumoxid gemischt werden müssen, damit man den höchsten Ionenstrom und daraus folgend die höchste gesammelte Ladung nach einer und nach zwei Stunden erhält. Aus dieser (und ebenso aus Abbildung 4.7) und den Tabellen 4.3 und 4.4 geht hervor, dass in Zukunft für die Beryllium-Messung BeO mit Eisen oder mit Niob im Massenverhältnis 1:2 gemischt werden soll, um den höchsten Strom zu erhalten und somit die meisten ^{10}Be -Ionen am Detektor zu erhalten. Die gesammelten Ladungen nach einer und nach zwei Stunden der Kupfermischungen liegen deutlich unter den Eisen- und Niob-1:2-Kathoden, weshalb mit der Umstellung zu Eisen und Niob in Zukunft eine präzisere Messung von ^{10}Be möglich ist.

Literaturverzeichnis

- [1] Robin Golser and Walter Kutschera. Twenty Years of VERA: Toward a Universal Facility for Accelerator Mass Spectrometry. *Nuclear Physics News*, 27(3):29–34, 2017.
- [2] Edith Schmidt. AMS detection of ^{10}Be with a SiN-foil stack. Masterarbeit, Universität Wien, 2013.
- [3] Peter Steier, Martin Martschini, Josef Buchriegler, Jenny Feige, Johannes Lachner, Silke Merchel, Leonard Michlmayr, Alfred Priller, Georg Rugel, Edith Schmidt, Anton Wallner, Eva Maria Wild, and Robin Golser. Comparison of methods for the detection of ^{10}Be with AMS and a new approach based on a silicon nitride foil stack. *International Journal of Mass Spectrometry*, 444:116175, 2019.

A. Danksagung

Ich möchte mich ganz herzlich bei dem Betreuer meiner Arbeit Mag. Dr. Martin Martschini für die Gelegenheit beim Teilchenbeschleuniger zu arbeiten und den Beistand beim Verfassen bedanken. Des Weiteren möchte ich einen großen Dank an Alexander Wieser B.Sc. B.Sc. M.Sc., Oscar Marchhart B.Sc. MSc., Dipl.-Chem. Dr. Silke Merchel und Michael Kern B.Sc. M.Sc. aussprechen, die mir bei der Vorbereitung, bei der Durchführung und beim Verfassen der Arbeit tatkräftig zur Seite standen und alle meine Fragen hilfreich und nachvollziehbar beantworten konnten.