

Off-Line Implantation von ^{77}Br am Bonner Isotopenseparator

Monika Risse

Diplomarbeit in Physik

Universität Bonn – 1996

Inhaltsverzeichnis

| | |
|--|-----------|
| Einleitung | 3 |
| 1 ^{77}Br als nukleare Sonde | 5 |
| 1.1 Meßmethoden | 6 |
| 1.1.1 Die Halleffektmeßmethode | 6 |
| 1.1.2 Die PAC-Methode | 7 |
| 1.2 Eigenschaften von ^{77}Br | 9 |
| 1.3 Einbringen der Sonde | 11 |
| 1.3.1 Rückstoßimplantation | 11 |
| 1.3.2 On-Line Ionenimplantation | 13 |
| 2 Off-Line Implantation | 16 |
| 2.1 Erzeugung von ^{77}Br durch Bestrahlung | 16 |
| 2.1.1 Targetmaterial | 17 |
| 2.1.2 Targetform | 19 |
| 2.2 Bestrahlung am Isochronzyklotron | 22 |
| 2.3 Trennung durch Destillation | 25 |
| 2.3.1 Destillationsanlage | 25 |
| 2.3.2 Chemische Vorgänge | 29 |
| 2.4 Substanz für den Isotopenseparator | 31 |
| 2.5 Implantation | 33 |

| | | |
|----------|---|-----------|
| 3 | Ergebnisse, Ausbeuten | 37 |
| 3.1 | Funktionsfähigkeit der Apparatur | 38 |
| 3.2 | Eindampfprozeß | 40 |
| 3.3 | Ausbeute der Implantation | 41 |
| 3.4 | Ausbeute des gesamten Verfahrens | 43 |
| 4 | Zusammenfassung und Ausblick | 45 |
| A | Zerfallsschema des ^{77}Br | 46 |
| B | Fehlerabschätzung | 48 |
| B.1 | Fehlerabschätzung bei Flüssigkeitsmessungen | 48 |
| B.2 | Fehlerabschätzung für ausgedehnte Körper | 50 |
| | Tabellenverzeichnis | 52 |
| | Abbildungsverzeichnis | 54 |
| | Literaturverzeichnis | 55 |

Einleitung

Die Halbleitertechnologie besitzt in vielen Bereichen eine hohe Bedeutung, die weiterhin stetig wächst. Den größten Einsatz für verschiedene Anwendungen erfährt dabei der Elementhalbleiter Silizium. In den vergangenen Jahren hat sich der III-V-Halbleiter Galliumarsenid (GaAs) für immer mehr Aufgaben etabliert, da er einige, auf physikalischen Unterschieden beruhende Vorteile gegenüber dem Silizium besitzt.

Ein großer Nachteil bei der Anwendung des GaAs liegt jedoch in der Schwierigkeit, Gitterfehler auszuheilen. Diese ergeben sich, wie auch beim Silizium, in vielen Verfahrensschritten der Fertigung. Aus diesem Grund ist es notwendig, die in GaAs vorhandenen Defekte genauer zu untersuchen und zu verstehen.

Zur Untersuchung der mikroskopischen Strukturen von Halbleitern, hierzu gehören auch die Defekte, werden Methoden der nuklearen Festkörperphysik erfolgreich angewandt. Dazu zählen das Emissions-Channeling sowie die Hyperfeinwechselwirkungstechniken Mößbauer-Spektroskopie und gestörte Winkelkorrelation (TDPAC time differential perturbed angular correlation, im folgenden kurz PAC genannt) [Scha92]. Diese Verfahren setzen radioaktive Isotope als Sonden ein und gewinnen Informationen durch die Spektroskopie der beim Zerfall der Kerne emittierten Strahlung.

Außerdem werden integrale Methoden zur Charakterisierung von Halbleitern eingesetzt, wie klassische Halleffektmessungen, deep level transient spectroscopy (DLTS) und Photolumineszenz-Messungen (PL). Diese zuletzt genannten Methoden benötigen keine radioaktiven Sonden. Werden dennoch solche Sonden eingesetzt, kann die beim radioaktiven Zerfall auftretende Elementumwandlung beobachtet werden. Die ursprünglich „chemisch blinden“ Techniken werden so zusätzlich auf den Elementcharakter sensitiv [Rohr96]. Mit ihnen können die elektrischen Eigenschaften untersucht werden.

Eine in Bonn zur Untersuchung der III-V-Halbleiter eingesetzte Methode ist die PAC. Ein möglicher radioaktiver Sondenkern, der dafür häufig genutzt wird, ist das Bromisotop ^{77}Br . Es kann bei einigen Materialien durch Kernreaktion direkt eingebracht werden. So kann z.B. in GaAs durch die Reaktion $^{75}\text{As} (\alpha, 2n) ^{77}\text{Br}$ die Sonde direkt im Material erzeugt werden. Dieses Einbringen der Sonde durch

Rückstoßimplantation ist in der Vergangenheit häufig am Bonner Isochronzyklotron durchgeführt worden. Außerdem kann ^{77}Br durch Ionenimplantation eingebracht werden. So sind bereits mehrmals Implantationen am On-Line Isotopenseparator ISOLDE (Isotope Separator On-Line) der Forschungsanlage CERN (Centre Europeen de la Recherche Nucleaire) durchgeführt worden.

An dem in Bonn vorhandenen Isotopenseparator ist es bisher nicht möglich gewesen, ^{77}Br zu implantieren. Im Rahmen dieser Diplomarbeit sollten daher die Voraussetzungen für die Erzeugung und Implantation dieses Isotops mit den in Bonn vorhandenen Großgeräten (Isochronzyklotron, Isotopenseparator) geschaffen werden.

Dazu wird am Isochronzyklotron über die Kernreaktion $^{75}\text{As} (\alpha, 2n) ^{77}\text{Br}$ in Arsen trioxid (As_2O_3) das ^{77}Br erzeugt. Nach einer chemischen Trennung des ^{77}Br vom As_2O_3 kann dann das ^{77}Br mit Hilfe des Isotopenseparators in verschiedene Wirtsmaterialien implantiert werden. Die notwendige Trennung erfolgt auf radiochemischem Wege durch eine Destillationsanlage, die ebenfalls aufzubauen und zu erproben war.

Kapitel 1

^{77}Br als nukleare Sonde

^{77}Br wird als Sondenkern für PAC-Messungen an III-V-Halbleitern, insbesondere an Galliumarsenid (GaAs), gerne verwendet. Dabei werden Defekte untersucht, die bislang noch nicht völlig verstanden sind. Dazu gehören der sogenannte EL2- und der DX-Defekt [Wehn95, Wehn96, Frie94]. Durch die dabei gewonnenen Erkenntnisse sollen vorhandene theoretische Modelle bestätigt oder gegebenenfalls widerlegt werden.

Ein solches Modell ist das Vacancy-Interstitial (V-I)-Modell [Dabr92, Chad88], in dem das Verhalten des EL2-Defektes beschrieben wird. Dabei wird angenommen, daß es sich beim EL2-Defekt um einen sogenannten Antisite-Defekt handelt, bei dem sich im GaAs -Kristall ein Arsen (As) Atom auf einem Gallium (Ga) Platz befindet (As_{Ga}). Das Gruppe V Element As befindet sich also auf einem Platz eines Gruppe III Elementes (Ga) und verhält sich dort als Doppeldonor.

Wenn sich Brom (Br) als Gruppe VII Element auf einem As Platz im GaAs -Kristall einlagert (Br_{As}), so verhält es sich ebenfalls als Doppeldonor. Auch für diesen Defekt könnte aufgrund von theoretischen Berechnungen [Dabr92] das V-I-Modell gültig sein, so daß sich mit der Untersuchung dieses Zustandes eine Möglichkeit bietet, Informationen über den EL2-Defekt und das V-I-Modell zu gewinnen.

Ein Blick auf den entsprechenden Ausschnitt des Periodensystems der Elemente (Abbildung 1.1) veranschaulicht den Doppeldonorcharakter von As und Br bei der Einlagerung auf Ga- bzw. As-Gitterplätzen, also As_{Ga} und Br_{As} .

Beim radioaktiven Zerfall des Sondenatoms ^{77}Br wandelt sich das Brom in Selen (^{77}Se) um (Abschnitt 1.2). Dieses ist als Gruppe VI Element ein Einfachdonator auf dem Platz des Gruppe V Elementes.

Die „klassische“ PAC-Sonde ^{111}In ist für Untersuchungen in III-V-Halbleitern ungeeignet. Da die Defektreaktionen in Halbleitern wesentlich durch den Ladungszustand der Einzeldefekte bestimmt sind, tritt eine Anlagerung von Sondenkernen

| Hauptgruppen | | | | |
|--------------|----|----|----|-----|
| III | IV | V | VI | VII |
| | | | | He |
| B | C | N | O | F |
| Al | Si | P | S | Cl |
| Ga | Ge | As | Se | Br |
| In | Sn | Sb | Te | J |
| Tl | Pb | Bi | Po | At |

Abbildung 1.1: Ausschnitt aus dem Periodensystem der Elemente mit Kennzeichnung des Sondenisotopes Br und des III-V Halbleiters GaAs.

an Defekte vor allem dann auf, wenn sie Donator- oder Akzeptorcharakter aufweisen. Da Indium als Gruppe III Element isovalent zum Ga ist (siehe Abb. 1.1), kommt es hier nicht zu einer Anlagerung an die Defekte.

Nachfolgend werden die in der Einleitung angesprochenen Untersuchungsverfahren PAC und die klassische Halleffektmethode sowie ihre Anforderungen an die Sondenkerne näher erläutert. In Abschnitt 1.2 werden dann die Eigenschaften der Sonde ^{77}Br ausführlich diskutiert. Am Ende des Kapitels in Abschnitt 1.3 folgt eine Beschreibung der bisher zur Verfügung stehenden Möglichkeiten zur Einbringung des Sondenkerns.

1.1 Angewandte Meßmethoden und ihre Anforderungen an die Sonden

1.1.1 Die Halleffektmeßmethode

Mit der Halleffektmeßmethode können unter anderem die Ladungsträgerkonzentration, die Majoritätsladungsträger und der elektrische Flächenwiderstand der untersuchten Probe bestimmt werden. Es handelt sich dabei immer um ein kombiniertes Meßverfahren, bestehend aus einer Messung der Hallkonstanten mittels des Halleffektes und einer Messung des elektrischen Flächenwiderstands mittels Strom-Spannungsmessung. Aus der Kombination der beiden Ergebnisse werden dann die Ladungsträgerkonzentration sowie die Art der Majoritätsladungsträger (d.h. ob p- oder n-leitendes Material vorliegt) bestimmt.

Bei der Betrachtung von radioaktiven Sondenatomen können sich die entsprechenden Meßgrößen mit der Zeit ändern. Aus dieser zeitlichen Entwicklung lassen

sich dann Informationen über die Dotierungswirkung eines Elements gewinnen. Eine ausführliche Beschreibung der Meßmethode und verschiedene Untersuchungen können [Rohr96] entnommen werden.

Die an die Kerneigenschaften der eingebrachten Sonde gestellten Anforderungen sind, im Gegensatz zu den kernphysikalischen Methoden, weniger einschränkend, da wie erwähnt lediglich die Elementumwandlung beim Zerfall von Bedeutung ist. Notwendig ist eine genügend große Halbwertszeit, da die Probenpräparation ein bis zwei Tage in Anspruch nehmen kann. Die Halbwertszeit darf aber auch nicht zu lang sein, da die Messung über mehrere Halbwertszeiten laufen muß. Die Halbwertszeit des ^{77}Br liegt mit 57 h im günstigen Bereich.

Weitere Anforderungen richten sich nicht an die Eigenschaften des Sondenkerns, sondern an seinen Einbau in das Probenmaterial. Da es sich bei den Messungen um Vergleichsmessungen handelt, das heißt es wird ein Effekt auf einem Untergrund betrachtet, muß dieser Untergrund möglichst klein sein. Deshalb wird z.B. bei einer Implantation die Forderung nach einer geringen Kontamination mit Fremdatomen gestellt. Fremdatome sind Nachbarisotope des gleichen Elements aber auch andere Elemente mit gleicher Masse. So ist z.B. bei der Implantation von ^{111}In , welcher ein gängiger Sondenkern ist, immer eine Beimischung von ^{111}Cd enthalten. Die Isotopenreinheit muß erheblich höher sein als bei den kernphysikalischen Methoden, denn die Isotope können nicht unterschieden werden.

Außerdem darf die Rückstoßenergie beim Zerfall des eingebrachten Sondenkerns nicht größer als die Verlagerungsenergie der Kristallatome sein, da sonst ein Platzwechsel beim Zerfall erfolgen kann. Das gilt natürlich für alle Untersuchungsmethoden.

Die bei den Messungen angewandte sogenannte *van der Pauw Methode* setzt zusätzlich die Einlagerung in einer dünnen Schicht voraus. Eine breite Tiefenverteilung ist für die elektrischen Messungen aufgrund der daraus resultierenden Veränderung des Verlaufs der elektrischen Feldlinien nachteilig.

Die Implantationsdosis darf nicht oberhalb der Amorphisierungsdosis des zu untersuchenden Materials liegen, da sonst ein Ausheilen der Implantationsschäden sehr problematisch ist. Gleichzeitig darf die Konzentration aber auch nicht zu gering sein, da sonst keine meßbaren Änderungen der Meßgrößen im zeitlichen Verlauf auftreten.

1.1.2 Die PAC-Methode

Bei der ebenfalls eingesetzten PAC-Methode sind die Anforderungen an den Sondenkern wesentlich größer. Um zu zeigen, daß ^{77}Br auch hier ein geeigneter Sondenkern ist, wird kurz auf die Methode eingegangen. Eine ausführliche Beschreibung der Methode ist z.B. in [Frau65] und [Scha92] gegeben.

In Experimenten mit der PAC-Methode wird die Hyperfeinwechselwirkung eines elektrischen Feldgradienten (EFG) mit dem Kernquadrupolmoment (Q) des Zwischenniveaus einer $\gamma\gamma$ -Kaskade beobachtet. Infolge der Wechselwirkung wird die räumliche Emissionswahrscheinlichkeit zweier, beim Zerfall des Sondenkerns korreliert ausgesandter γ -Quanten zeitabhängig gestört. Mit Szintillations-Dektoren, die in einer Ebene um die Probe angeordnet sind, kann dieses in einem zeitlich veränderlichen Koinzidenzspektrum beobachtet werden.

Die Koinzidenzspektren zeigen den exponentiellen Zerfall des Zwischenniveaus der $\gamma\gamma$ -Kaskade. Dabei sind sie mit einer Störfunktion der Quadrupolwechselwirkungsfrequenz $\nu_Q = \frac{eQV_{zz}}{h}$ moduliert¹. Aus dem Verlauf der Störfunktion kann die Größe, die Symmetrie und die Orientierung des EFG-Tensors bestimmt werden. Üblicherweise wird der EFG durch seine Maximalkomponente V_{zz} und dem Asymmetrieparameter $\eta = \frac{V_{xx}-V_{yy}}{V_{zz}}$ beschrieben. Außerdem kann aus der relativen Amplitude der Störfunktion der Anteil der Probenkerne auf Plätzen mit verschiedenem EFG bestimmt werden.

Der auf den Sondenkern wirkende EFG ergibt sich z.B. aus der Störung der regelmäßigen Gitterstruktur durch Defekte in der Umgebung (z.B. Leerstellen, Atome im Zwischengitter,...). Es kann auch die Wechselwirkung zwischen dem magnetischen Dipolmoment (μ) des Zwischenniveaus und im Festkörper auftretenden Magnetfeldern beobachtet werden.

Daher ist die Methode sensitiv auf die mikroskopische Gitterumgebung eines Sondenkerns. Durch die starke radiale Abhängigkeit des EFG ($\sim r^{-3}$) ist die Wechselwirkung auf die direkte Umgebung des Sondenkerns beschränkt [Frau65].

An die PAC-Sonde werden folgende Bedingungen gestellt:

- Auftreten einer $\gamma\gamma$ -Kaskade, die über ein isomeres Zwischenniveau führt und einen nicht zu kleinen Anisotropiekoeffizienten besitzt,
- genügend lange Lebensdauer des Zwischenniveaus, damit eine Wechselwirkung zwischen Q und EFG beobachtbar ist,
- ausreichend großes Quadrupolmoment des isomeren Zustandes ($\geq 0,1$ barn [Scha92]), um in Verbindung mit den im Festkörper auftretenden typischen EFG eine beobachtbare Wechselwirkungsfrequenz (ν_Q) zu erzeugen sowie ein ausreichendes magnetisches Dipolmoment ($\geq 1\mu_N$ [Scha92]), falls die magnetische Wechselwirkung untersucht werden soll,
- die Halbwertszeit des Mutterisotops sollte nicht zu kurz sein, um ein ausführliches Meßprogramm zu ermöglichen, gleichzeitig ist eine zu lange Lebensdauer unerwünscht, da dann die Aktivität der Probe und somit die Anzahl der detektierten Zerfallsereignisse zu gering ist.

¹ mit: e = Elementarladung, h = Planck-Konstante

Für eine PAC-Messung ist eine Anzahl von circa 10^{11} Sondenkernen notwendig. Das Tiefenprofil ihrer Verteilung sollte, im Gegensatz zu den Halleffektmessungen, recht gleichmäßig sein, da dann die örtliche Dosis geringer ist und die Sondenkerne keinen Effekt untereinander bewirken. Die Verteilung der implantierten Kerne ist von der Methode und der Implantationsenergie abhängig, bei der die Sondenkerne eingebracht werden. In den Abschnitten 1.3 und 2.5 sind verschiedene Tiefenprofile gezeigt, die sich aus den unterschiedlichen Implantationsbedingungen ergeben.

1.2 Physikalische und chemische Eigenschaften von ^{77}Br

Natürliches Brom besteht aus den Isotopen ^{79}Br (50,69%) und ^{81}Br (49,31%) [Holl85]. Neben Quecksilber ist es das einzige Element, das bei Zimmertemperatur flüssig ist. Sein Schmelzpunkt liegt bei $-7,25^\circ\text{C}$ und der Siedepunkt bei $58,78^\circ\text{C}$. Es stellt eine tiefbraune, erstickend riechende Flüssigkeit dar. Bei 20°C beträgt die Dichte $3,14\text{ g/cm}^3$. In Wasser ist Brom mäßig löslich (siehe Kapitel 2.3.2).

Brom gehört als Element der Gruppe VII zu den Halogenen, die eine s^2p^5 Valenzschalen-Konfiguration besitzen. Daher hat es eine hohe Tendenz, die Oktettkonfiguration in der äußeren Schale zu erreichen. Diese Tatsache zeigt sich in der vermehrten Bildung von Salzen.

In Alkalimetallverbindungen wie z.B. KBr , dies spielt in der Destillation eine wichtige Rolle (siehe Kapitel 2), liegt eine ionische Bindung vor. Bei Verbindungen mit Metallen wie z.B. Beryllium und Aluminium ist der Bindungscharakter stark kovalent.

Das radioaktive Isotop ^{77}Br zerfällt über Elektroneneinfang (EC) und β^+ -Zerfall mit einer Halbwertszeit von $t_{1/2} = 57\text{ h}$ in ^{77}Se . Das komplette Zerfallschema ist in Anhang A gezeigt. Ein Spektrum ist z.B. in Abbildung 2.6 gezeigt. Verschiedene Produktionsmöglichkeiten von ^{77}Br sind in Kapitel 2.1 angegeben.

Wie in Abschnitt 1.1.2 bereits erwähnt, ist für die Anwendung der PAC-Methode eine $\gamma\gamma$ -Kaskade notwendig, die über ein isomeres Zwischenniveau führt. Beim $^{77}\text{Br}(^{77}\text{Se})$ gibt es eine solche Kaskade mit $E(\gamma_1) = 755\text{ keV}$ und $E(\gamma_2) = 250\text{ keV}$. Durch sie geht ein angeregter $3/2^-$ -Zustand über den $5/2^-$ -Zustand schließlich in den $1/2^-$ -Grundzustand des ^{77}Se über. Das Zwischenniveau besitzt eine Lebensdauer von $t_{1/2} = 9,68\text{ ns}$. Gemessen an der typischen Zeitauflösung einer PAC-Apparatur ($\sim 1\text{ ns}$) ist diese Lebensdauer lang genug, um eine Wechselwirkung mit dem Quadrupolmoment beobachten zu können, aber auch kurz genug, um die Zahl der zufälligen Koinzidenzen gering zu halten.

Der für die PAC-Messungen wesentliche Ausschnitt des Zerfallschemas ist in Abbildung 1.2 dargestellt.

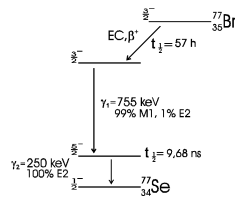


Abbildung 1.2: Ausschnitt aus dem Zerfallsschema des ^{77}Br mit der $\gamma\gamma$ -Kaskade für die PAC. [Fire96]

Das Zwischenniveau besitzt mit $Q = 1,1(5)$ barn außerdem ein für die Wechselwirkung mit dem EFG ausreichendes Quadrupolmoment. Ebenso ist das magnetische Dipolmoment ausreichend für eine Wechselwirkung mit im Festkörper vorhandenen Magnetfeldern. Jedoch findet das magnetische Verhalten bei der Untersuchung der Halbleiter nur geringes Interesse. Einen Gesamtüberblick gibt Tabelle 1.1, in der alle für die PAC wichtigen Eigenschaften angegeben sind.

| | | |
|---|--|----------|
| Mutterisotop | : $^{77}_{35}\text{Br}$ | |
| Tochterisotop | : $^{77}_{34}\text{Se}$ | |
| Halbwertszeit Mutterisotop | : 57 h | [Fire96] |
| Halbwertszeit Zwischenniveau | : 9,7 ns | [Fire96] |
| Spin und Parität des Zwischenniveaus | : $5/2^-$ | [Fire96] |
| Quadrupolmoment des Zwischenniveaus | : 1,1(5) barn | [Fire96] |
| magnetisches Dipolmoment des Zwischenniveaus | : $1,12(2) \mu_N$ | [Fire96] |
| Energien und Multipolaritäten der Kaskade | : γ_1 : 755 keV, 99%M1 1%E2 γ_2 : 250 keV, 100%E2 | [Fire96] |
| Anisotropiekoeffizient der Kaskade | : $A_{22} = -0,454(9)$ | [Mohs88] |
| Sternheimer - Korrekturfaktor ($1 - \gamma_\infty$) | : 88 für Se^{2-} | [Frie94] |

Tabelle 1.1: Eigenschaften des Sondenkerns $^{77}\text{Br}(^{77}\text{Se})$

Ein Blick auf das komplette Zerfallsschema zeigt, daß nur ein geringer Anteil der Zerfälle dem für die PAC wichtigen Zerfallskanal angehören. Nur $\sim 1,1\%$ aller Zerfälle laufen über die Kaskade. Alle anderen von den Detektoren registrierten Zerfälle führen zu zufälligen Koinzidenzen, so daß die Messungen mit einem großen prompten Untergrund behaftet sind.

1.3 Einbringen der Sonde

Bisher sind in Bonn für die Untersuchung der III-V-Halbleiter, wie in der Einleitung bereits beschrieben, zwei verschiedene Möglichkeiten zur Einbringung des Sondenkerns ^{77}Br eingesetzt worden. Zum einen ist durch die Rückstoßimplantation (Abschnitt 1.3.1) aufgrund einer Kernreaktion ^{77}Br direkt im Material erzeugt worden. Zum anderen ist ^{77}Br on-line implantiert worden. Dies geschah am On-Line Isotopenseparator ISOLDE am CERN (Abschnitt 1.3.2). In den beiden nachfolgenden Abschnitten werden diese bisher eingesetzten Methoden kurz erläutert, um einen Vergleich mit der neu entwickelten Methode zu ermöglichen. Sie wird dann in dem folgenden Kapitel besprochen.

1.3.1 Rückstoßimplantation

Die häufig am Bonner Zyklotron durchgeführte Rückstoßimplantation [Wehn93] basiert auf einer Kernreaktion, bei der das gewünschte ^{77}Br erzeugt wird. Es handelt sich dabei um die $^{75}\text{As}(\alpha,2n)^{77}\text{Br}$ Reaktion.

Es wird dazu das Material — in den meisten Fällen GaAs — im Hochstromplatz des Isochronzyklotrons (siehe dazu auch Kapitel 2.2) mit α -Teilchen der Energie 33 MeV bestrahlt. Bedingt durch die Massenverhältnisse bei der Kernreaktion kommt es zur Rückstoßimplantation der Sonde in das Gitter mit einer Energie von einigen 100 keV. Eine genaue Bestimmung der Rückstoßenergie beinhaltet eine sehr umfangreiche und komplizierte Rechnung, so daß der angegebene Wert nur eine grobe Abschätzung ist. Zusammen mit der relativ großen Reichweite der α -Teilchen im GaAs von etwa 300 μm (siehe Abbildung 1.3) führt dieses zu einer in etwa homogenen Verteilung der Sondenatome im Kristall.

Für den Fall der Bestrahlung von GaAs mit 33 MeV α -Teilchen ist die Verteilung der α -Teilchen in Abbildung 1.3 gezeigt, die mit Hilfe des Simulationsprogramms TRIM92 [Bier80] bestimmt worden ist. Dabei sind, wie auch bei den noch folgenden Rechnungen, 15000 Ereignisse simuliert worden.

Die Abbremsung der α -Teilchen erfolgt beim Eintritt in den Kristall zunächst hauptsächlich durch Streuung an den Elektronen der Targetatome (elektronisches Bremsen). Dabei werden in vielen schwach inelastischen Stößen die Atome angeregt oder ionisiert. Bei Energien unterhalb von 1MeV/Nukleon (im Fall der α -Teilchen also bei unter 4MeV) tritt dann auch das sogenannte nukleare Bremsen auf, dabei werden die Projektilteilchen an den Targetatomen durch Rutherford-Streuung gestreut [Scha92].

Gitterschäden entstehen beim nuklearen Bremsen. Wenn die Energie, die bei den elastischen Stößen übertragen wird, oberhalb der Verlagerungsenergie des Kristalls liegt, verläßt das getroffene Atom seinen Gitterplatz und hinterläßt eine

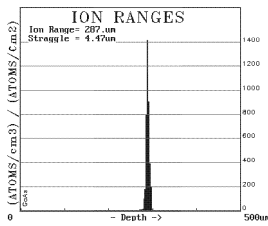


Abbildung 1.3: Tiefenprofil der α -Teilchen bei Bestrahlung des GaAs mit 33 MeV

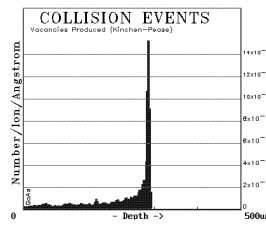


Abbildung 1.4: Tiefenprofil der entstandenen Leerstellen bei Bestrahlung des GaAs mit 33 MeV α -Teilchen

Leerstelle. Das herausgeschlagene Atom bewegt sich dann im Zwischengitter weiter. Wenn seine kinetische Energie ausreicht, besteht auf dem Weg durch den Kristall die Möglichkeit zu weiteren Stößen und es kann so eine ausgedehnte Kaskade entstehen. Da die Stoßpartner meist ähnliche Massen haben, kommt es so zu Ersetzungsstoßfolgen.

Die im Zwischengitter befindlichen Atome rekombinieren meist mit anderen Leerstellen. So kommt es im Innern der Stoßkaskade zu leerstellenreichen und weiter außen zu zwischengitterreichen Zonen. Die Anzahl der pro implantiertem Ion im Mittel erzeugten Gitterdefekte läßt sich nach einem Modell von Kinchen und Pease [Kinc55] berechnen.

Da für die Kernreaktion Energien oberhalb etwa 20 MeV benötigt werden (siehe Abb. 2.5), liegt der Bereich, in dem das nukleare Bremsen überwiegt, und somit die Gitterfehlstellen erzeugt werden, in größerer Tiefe als die erzeugten Sondenkerne. In Abbildung 1.4 ist die Tiefenverteilung der Leerstellen gezeigt, die für den vorliegenden Fall (33 MeV α -Teilchen auf GaAs) ebenfalls mit TRIM92 ermittelt worden ist.

Für die PAC-Methode, die ja nur sensitiv auf die nächste Umgebung des Sondenkerns ist, ist dies von Vorteil. Es wirkt sich jedoch nachteilig auf Halleffektmessungen aus, da es sich hier um eine integrale Methode handelt, bei der auch der Einfluß elektrisch aktiver Gitterdefekte mitgemessen wird. Durch die vorhandenen Gitterfehlstellen werden die elektrischen Eigenschaften der Probe geändert.

Es gibt jedoch auch bei der PAC einige Nachteile bei der Rückstoßimplantation. So ist es aufgrund der ausgenutzten Kernreaktion nur in arsenhaltigen Materialien möglich, ^{77}Br direkt zu erzeugen. Für andere III-V-Halbleiter wie z.B. Galliumantimonid (GaSb), Indiumantimonid (InSb) oder Galliumnitrid (GaN)

ist dieses Verfahren natürlich nicht einsetzbar.

Weiter ist es nicht möglich, die Tiefe der eingebrachten ^{77}Br Atome zu verändern, bzw. nur in sehr geringem Maße durch Variation der α -Energie. Die Energie kann jedoch nicht stark verändert werden, da bei zu geringen Energien der Wirkungsquerschnitt der Reaktion nicht mehr ausreichend ist und bei größeren Energien die Produktionsrate der $(\alpha,3n)$ Reaktion zu groß wird. Der Wirkungsquerschnitt ist in Abbildung 2.5 dargestellt. In Kapitel 2.2 ist die Energiewahl für die $^{75}\text{As}(\alpha,2n)^{77}\text{Br}$ Reaktion ausführlich diskutiert.

1.3.2 On-Line Ionenimplantation

Die Ionenimplantation von ^{77}Br erfolgte bisher immer am On-Line Isotopenseparator ISOLDE am CERN. Dabei werden (je nach Betriebsmodus) ^{87}Rb (Rubidium), ^{77}Kr (Krypton) und ^{77}Br oder nur ^{77}Kr in das Probenmaterial implantiert [Marq96]. Das ^{87}Rb wandelt sich mit einer Halbwertszeit von 3,9 min in ^{77}Kr um, welches wiederum mit einer Halbwertszeit von 1,24 h in ^{77}Br zerfällt.

Die Produktion der radioaktiven Nuklide erfolgt durch Bombardement eines Targets mit einem gepulsten 1 GeV Protonenstrahl². Dabei kommt es zu Spallation, Fragmentierung oder Spaltung. Der Protonenstrahlstrom kann dabei bis zu 0,2 A betragen. Als Target wird für die Produktion von ^{77}Br in den meisten Fällen Niob verwandt. Durch thermische Diffusion erfolgt über ein Transferrohr der Transport der Isotope aus dem Targetbehälter in die Ionenquelle. Es handelt sich dabei um eine Heiße-Plasma-Quelle die auf einem Potential von 60 keV liegt und in der dann die Ionisierung erfolgt.

Wird das Transferrohr geheizt („hot transferline“), ist der Hauptbestandteil des Strahles ^{77}Br neben ^{87}Rb und ^{77}Kr . Wenn kein Heizen erfolgt („cold transferline“), können nur Edelgase in die Ionenquelle gelangen; und man erhält einen ^{77}Kr Strahl. Die typische Ausbeute kann dabei mit $3 \cdot 10^9$ Atome/s angegeben werden.

Durch einen Analysatormagneten werden die Isotope dann nach ihrer Masse separiert. Der Ionenstrahl kann durch ein System von elektrostatischen Deflektoren und Linsen auf mehrere Strahlplätze in der Experimentierhalle verteilt werden. So auch auf einen in der Nähe des Eintritts in die Experimentierhalle befindlichen Implantationsplatz, an dem die Ionen dann mit der Energie von 60 keV in verschiedene Wirtsmaterialien implantiert werden.

Von anderen Gruppen sind bereits erste Experimente mit einer neuen, noch nicht völlig fertiggestellten Hochspannungsplattform durchgeführt worden, bei der dann die Ionen mit einer Energie von bis zu 310 keV implantiert werden können [Lind95]. Es können dort jedoch nur Ionen mit kurzer Lebensdauer implantiert werden, da sich der Strahlplatz sehr weit in der Experimentierhalle be-

² Der Protonenstrahl wird vom Proton Synchrotron Booster (PSB) des CERN geliefert.

findet und bei langlebigen Isotopen die Kontamination des Strahlrohres zu groß wäre.

Von der Erzeugung des Isotops bis zur Implantation in der Probe vergehen nur wenige Millisekunden. Daher spricht man in diesem Fall von einer On-Line Implantation.

Bei der Ionenimplantation dominiert durch die geringe Implantationsenergie von 60 keV der in Abschnitt 1.3.1 beschriebene Prozeß des nuklearen Bremsens. Daher sind in diesem Fall die Strahlenschäden wesentlich höher als bei der Rückstoßimplantation.

Die implantierten Ionen befinden sich hier in einer Schicht nur wenige 100 Å unter der Oberfläche. Auch hier sind mit Hilfe des Simulationsprogramms TRIM92 für den Fall von 60 keV ^{77}Br -Ionen in GaAs die in Abbildung 1.5 dargestellte Tiefenverteilung der ^{77}Br Ionen und in Abbildung 1.6 die der Leerstellen bestimmt worden.

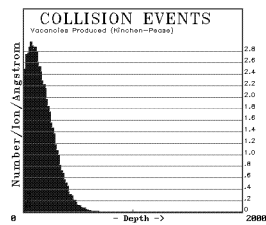
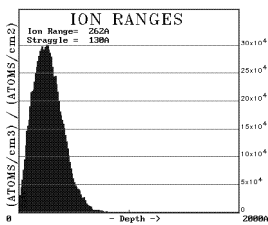


Abbildung 1.5: Tiefenprofil der implantierten ^{77}Br Ionen bei Implantation mit 60 keV in GaAs

Abbildung 1.6: Tiefenprofil der entstandenen Leerstellen bei Implantation von ^{77}Br mit 60 keV in GaAs

Bei Ionenimplantationen erhält man also eine wesentlich schmalere Zone mit implantiertem ^{77}Br als im Fall der Rückstoßimplantation³. Das wirkt sich bei PAC-Messungen negativ aus, denn dort muß (wie in Abschnitt 1.1.2 beschrieben) eine bestimmte Dosis an Sondenkernen eingebracht werden. Durch die schmale Tiefenverteilung ist diese auf einen kleinen Bereich beschränkt, der dann eine für PAC-Messungen zu hohe Konzentration an Sondenkernen aufweisen kann, weil die Sondenkerne beginnen, sich gegenseitig zu beeinflussen.

³ Man beachte die unterschiedlichen Achseneinteilungen. Im Fall der Rückstoßimplantation (Abb. 1.3 und 1.4) ist ein Bereich von 500 μm dargestellt. Dagegen sind im Fall der On-Line Implantation (Abb. 1.5 und 1.6) nur 2000 Å dargestellt.

Für Implantationen mit höheren Energien ergibt sich eine vorteilhaftere, breitere Tiefenverteilung. Dazu ist in Abbildung 2.13 eine ebenfalls mit TRIM92 bestimmte Verteilung für die Implantation von ^{77}Br Atomen bei einer Energie von 160 keV dargestellt. Das ist die Energie, bis zu der am Bonner Isotopenseparator implantiert werden kann. In Abbildung 2.14 ist die zugehörige Verteilung der Leerstellen gezeigt.

Die vielfältige Einsetzbarkeit des Isotopenseparators ISOLDE⁴, die vielen verschiedenen Benutzern unterschiedlicher Forschungsrichtungen den Einsatz ermöglicht, führt dazu, daß nur recht selten (etwa ein- bis zweimal im Jahr) eine Strahlzeit erhalten werden kann. Das gestaltet systematische Untersuchungen sehr problematisch.

⁴Es können circa 600 Isotope von 68 verschiedenen Elementen produziert werden [Home96].

Kapitel 2

Off-Line Implantation

Neben den in Kapitel 1.3 angegebenen Möglichkeiten zur Einbringung von ^{77}Br in die zu untersuchenden Proben bietet sich durch die in Bonn vorhandenen Großgeräte (Isochronzyklotron und Isotopenseparator) eine weitere Variante an. Bei dieser wird im Isochronzyklotron das ^{77}Br erzeugt und dann im Isotopenseparator implantiert. Es war bisher nicht möglich, am Bonner Isotopenseparator ^{77}Br zu implantieren. Jedoch ist die Halbwertszeit des ^{77}Br für eine Off-Line Implantation ausreichend.

Im vorliegenden Kapitel wird die Realisation des Verfahrens beschrieben. Dazu muß zunächst eine Reaktion ausgewählt werden, mit der das ^{77}Br erzeugt werden kann. Dann muß das zugehörige Targetmaterial für die Bestrahlung im Zyklotron ausgesucht werden, beides wird in Abschnitt 2.1 beschrieben. Auf die Bestrahlung selbst wird in Abschnitt 2.2 genauer eingegangen. Desweiteren muß das erhaltene ^{77}Br in eine Form gebracht werden, in welcher es in den Isotopenseparator zur Separation und Implantation eingebracht werden kann, dieses wird in den Abschnitten 2.3 und 2.4 geschildert. Die Implantation selbst wird dann im Abschnitt 2.5 beschrieben.

2.1 Erzeugung von ^{77}Br durch Bestrahlung

Es gibt verschiedene Kernreaktionen, die zur Erzeugung des gewünschten Bromisotopes genutzt werden können [Jans79]. In Tabelle 2.1 ist eine Übersicht gegeben über die am häufigsten in der Literatur angegebenen Produktionskanäle.

Die Auswahl der in dieser Arbeit verwandten Reaktion erfolgt durch Vergleich der Energieabhängigkeit des Wirkungsquerschnitts verschiedener Reaktionen mit dem Angebot durch das Zyklotron [ISKP93], welches in Tabelle 2.2 dargestellt ist.

| Reaktion | Projektil | Energie des maximalen Wirkungsquerschnitts | |
|---|--------------------|--|---------------|
| $^{75}\text{As} (\alpha, 2n) ^{77}\text{Br}$ | α -Teilchen | 28 MeV | ~ 950 mb |
| $^{77}\text{Se} (\text{p}, \text{n}) ^{77}\text{Br}$ | Protonen | 9 MeV | ~ 200 mb |
| $^{78}\text{Se} (\text{p}, 2\text{n}) ^{77}\text{Br}$ | Protonen | 20 MeV | ~ 600 mb |
| $^{80}\text{Se} (\text{p}, 4\text{n}) ^{77}\text{Br}$ | Protonen | 43 MeV | ~ 200 mb |
| $^{79}\text{Br} (\text{p}, 3\text{n}) ^{77}\text{Kr} \xrightarrow{\beta^+, \text{EC}} ^{77}\text{Br}$ | Protonen | 35 MeV | ~ 400 mb |
| $^{79}\text{Br} (\text{d}, 4\text{n}) ^{77}\text{Kr} \xrightarrow{\beta^+, \text{EC}} ^{77}\text{Br}$ | Deuteronen | 50 MeV | ~ 200 mb |

Tabelle 2.1: Reaktionen zur Erzeugung von ^{77}Br

| Teilchenart | Energiebereich | Maximalstrom |
|-------------|----------------|-------------------|
| α 's | 28 - 56 MeV | $3,5 \mu\text{A}$ |
| Protonen | 7 - 14 MeV | $10 \mu\text{A}$ |
| Deuteronen | 14 - 28 MeV | $5 \mu\text{A}$ |

Tabelle 2.2: Leistungsbereich des Bonner Zyklotron

Der Vergleich der beiden Tabellen zeigt, daß mit dem Bonner Zyklotron die Produktion durch die Reaktion $^{75}\text{As} (\alpha, 2n) ^{77}\text{Br}$ am geeignetsten ist (der Verlauf des sehr hohen Wirkungsquerschnitts als Funktion der Energie für diese Reaktion ist in Abbildung 2.5 gezeigt). Diese Reaktion hat auch den höchsten Wirkungsquerschnitt. Durch die am Zyklotron nicht verfügbaren hohen Energien der Protonen und Deuteronen scheidet ^{79}Br als Ausgangsmaterial für die Produktion aus. Gleiches gilt auch für ^{78}Se und ^{80}Se . Bei der angegebenen Reaktion mit ^{77}Se als Ausgangsmaterial ist es nachteilig, daß dafür hochangereichertes Material verwandt werden muß, da natürliches Selen aus den Isotopen ^{74}Se (0,9%), ^{76}Se (9,0%), ^{77}Se (7,6%), ^{78}Se (23,5%), ^{80}Se (49,8%) und ^{82}Se (9,2%) besteht. Demgegenüber ist natürliches Arsen monoisotop, das heißt es besteht zu 100% aus ^{75}As .

2.1.1 Targetmaterial

Zur Produktion von ^{77}Br durch die $^{75}\text{As} (\alpha, 2n) ^{77}\text{Br}$ Reaktion sind aus der Literatur (z.B. [Noza78]) verschiedene arsenhaltige Materialien bekannt. Diese unterscheiden sich in ihrer Beschaffenheit, ihrem Verhalten bei der Bestrahlung, ihrer Handhabung und der notwendigen Weiterverarbeitung nach der Bestrahlung.

Die am häufigsten angegebenen Materialien und ihre wichtigsten Eigenschaften sind:

Metallisches Arsen und Arsenlegierungen: Metallisches Arsen ist die sehr spröde, graue Form des Arsens und weist den höchsten Gehalt an As auf. Jedoch hat es den Nachteil, daß es in fast allen üblichen Säuren unlöslich ist. Daher ist eine anschließend Trennung von ^{77}Br und dem bestrahlten Material sehr aufwendig. Die Trennung ist jedoch für eine erfolgreiche Separation notwendig (siehe Kapitel 2.3). Außerdem dampft bei der Bestrahlung bereits ein Teil des erzeugten ^{77}Br aus. Dies zeigt sich im Vergleich der theoretisch bestimmten Ausbeute für die Bestrahlung mit dem experimentell erhaltenen Wert, dies ist in Tabelle 2.3 gezeigt. Es werden daher auch Arsenlegierungen verwandt, wie z.B. eine Kupfer Arsen Legierung (Cu_3As - Legierung) [Bles82], da diese eine höhere Wärmeleitfähigkeit besitzen, wodurch sich das Ausdampfen reduziert.

Arsenpentoxid As_2O_5 : Liegt als weiße, feinpulvrige, an feuchter Luft zerfließliche, hygroskopische Masse vor [Holl85]. Sie kann daher nur sehr schwer wasserfrei gehalten werden. Beim Erhitzen geht sie unter Abgabe von H_2O in As_2O_3 über. Das Wasser löst dann das restliche, gut wasserlösliche As_2O_5 auf und bildet eine sehr aggressive Mischung, die dann unter Bildung von Arsenwasserstoff (AsH_3) das umgebende Targetmaterial angreifen kann. Dies führt dann bei einer Bestrahlung zu einem Druckaufbau im Target und erschwert den Umgang mit As_2O_5 [Nunn75].

Arsentrioxid As_2O_3 („Arsenik“): Liegt in verschiedenen Modifikationen vor; im Handel leicht erhältlich ist eine amorphe Form, die aus kleinen, farblosen, glasigen Kriställchen besteht [Holl85]. Es ist nur sehr schwer wasserlöslich, dafür aber gut in Chromschwefelsäure löslich. Es ist stark giftig und erfordert einen vorsichtigen Umgang.

Eine Zusammenstellung der Produktion von ^{77}Br aus den drei verschiedenen arsenhaltigen Materialien findet sich in [Nunn75] und ist in Tabelle 2.3 wiedergegeben. Nunn und Walters haben dort die Ausbeuten für ^{77}Br berechnet. Dabei wurde der „thick target yield“ bestimmt, das heißt der gesamte Strahl der α -Teilchen wird im Target gestoppt. Es sind hier Rechnungen für 32 MeV α -Teilchen durchgeführt worden. Das ist die Energie, bei der auch die experimentellen Ausbeuten, die ebenfalls angegeben sind, bestimmt wurden. Die Rechnungen basieren auf bekannten, experimentell bestimmten Werten der Wirkungsquerschnitte für die verschiedenen betrachteten Reaktionen.

Es zeigt sich, daß As_2O_3 die günstigste experimentelle Produktionsrate hat. In Verbindung mit seiner relativ einfachen Handhabung hat das zu der Entscheidung geführt, es als Ausgangsmaterial für die Bestrahlung zu verwenden.

| Targetmaterial | metallisches Arsen | As_2O_5 | As_2O_3 |
|---|---------------------------------|---------------------------------|---------------------------------|
| theoretische Ausbeute | 498 $\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$ | 216 $\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$ | 293 $\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$ |
| experimentelle Ausbeute, vor der Chemie | 171 $\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$ | 160 $\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$ | 290 $\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$ |

Tabelle 2.3: Vergleich von berechneten und experimentell bestimmten Ausbeuten an ^{77}Br bei Bestrahlung verschiedener arsenhaltiger Targetmaterialien mit 32 MeV α -Teilchen, die vollständig im Target gestoppt werden [Nunn75].

2.1.2 Targetform

Die Form des Targethalters, in welchem das As_2O_3 am Isochronzyklotron bestrahlt wird, hängt in seinen äußeren Dimensionen von den Beschaffenheiten des am Zyklotron vorhandenen Hochstromplatzes ab, an dem die Bestrahlung abläuft. Deshalb ist der Hochstromplatz mit seinen relevanten Bestandteilen in Abbildung 2.1 dargestellt. Weitere Einzelheiten zum Hochstromplatz und den verwendbaren Targethaltern sind in [Wehn93] enthalten.

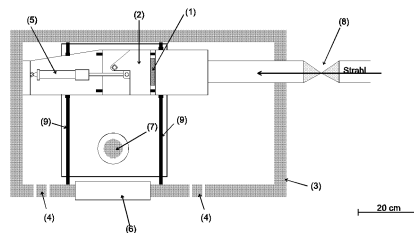


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung des Hochstromplatzes mit den wichtigsten Bestandteilen, von oben gesehen. (1) Klappe mit einliegendem Target, (2) drehbarer Targethalterkopf mit Wasserkühlung, (3) Bleiabschirmung, (4) Hand- und Manipulatoreingriffe, (5) Preßluftzylinder zum An- und Abflanschen des Targetkopfes, (6) Bleiglasfenster, (7) Bodenöffnung zum Targetausbau, (8) Ventil zwischen Strahlensystem und Hochstromplatz, (9) Führungsschienen auf denen der Targethalterkopf zum Targetausbau zur Bodenöffnung gefahren werden kann.

Der drehbare Targethalterkopf ist mit einer Wasserkühlung (2,5 l/min) ausgestat-

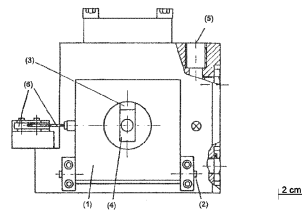


Abbildung 2.2: Targethalterkopf mit Wasserkühlanlage, von vorne gesehen. (1) Klappe, (2) Welle, um die die Klappe drehbar gelagert ist, (3),(4) Kühlwasserzuleitung, (5) Kühlwasserrückleitung, (6) Sicherungsschalter für Wasserkühlung

tet. Er besitzt eine Klappe, in die ein runder Targethalter mit 38 mm Durchmesser und 3,5 mm Außenhöhe eingelegt werden kann. Näheres zur Kühlung ist aus Abbildung 2.2 ersichtlich. Die sonstige Form des Targethalters kann individuell je nach Anforderung gefertigt werden. Die Targethalter werden aus Aluminium gefertigt. Der zur As_2O_3 Bestrahlung verwandte Halter ist in Abbildung 2.3 dargestellt.

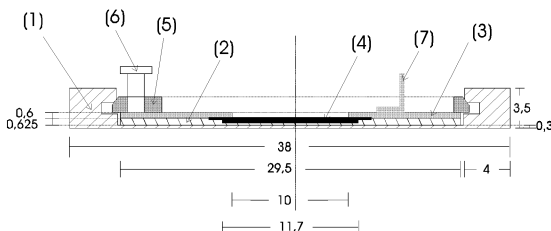


Abbildung 2.3: Target für Bestrahlung am Hochstromplatz des Zyklotron, mit (1) Targethalter, (2) As_2O_3 -Halteblech, mit 125 μm Rückwand (3) Abdeck-Aluminiumscheibe, (4) in Aluminiumfolie eingeschlagenes As_2O_3 , (5) Klemmring, (6) Stifte des Klemmrings, (7) Aluminiumstreifen zur Herausnahme von Teil (3). (alle Angaben in mm)

Um das As_2O_3 ¹ in den Targethalter einzubringen, wird in diesen (Abb. 2.3 (1))

¹ Riedel de Haën 31123 Arsen(III)-oxid für Analyse

ein As_2O_3 -Halteblech (Abb. 2.3 (2)) hineingelegt. Dieses besitzt in der Mitte eine $500\ \mu\text{m}$ Vertiefung mit $11,7\ \text{mm}$ Durchmesser. Sie ist so dimensioniert, daß eine Menge von $150\ \text{mg}$ As_2O_3 eingebracht werden kann.

Das Einbringen des As_2O_3 erfolgt mit Hilfe einer Presse und ist in Abbildung 2.4 gezeigt. Zunächst wird in die Grundplatte der Presse das As_2O_3 -Halteblech eingelegt (Abb. 2.4 (2), (1)) und darüber eine $15\ \mu\text{m}$ Aluminiumfolie gelegt (Ø $29\ \text{mm}$) (Abb. 2.4 (3)). In eine Einfüllhilfe (Abb. 2.4 (4) Aluminiumscheibe Ø (außen) $29,5\ \text{mm}$ Ø (innen) $10\ \text{mm}$, $1,7\ \text{mm}$ Dicke), die auf das so vorbereitete As_2O_3 -Halteblech gelegt wird, erfolgt das Einschütten der abgewogenen Menge As_2O_3 . Das Einpressen in das Halteblech geschieht dann mit einem Druck von $50\ \text{kN}$.

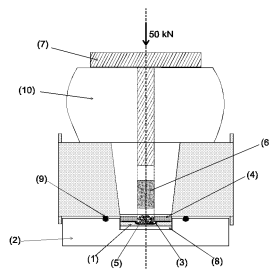


Abbildung 2.4: Einpressvorrichtung in vorhandener Presse, (1) As_2O_3 -Halteblech, (2) Grundplatte, (3) $15\ \mu\text{m}$ Aluminiumfolie, (4) Einfüllhilfe, (5) As_2O_3 , (6) Presszylinder, (7) Presstift, (8) Aluminiumunterlage, (9) O-Ring, (10) Gummipuffer

Nach der Herausnahme aus der Presse wird die über der Vertiefung in dem As_2O_3 -Halteblech überstehende Aluminiumfolie so über das As_2O_3 geschlagen, daß es vollständig bedeckt und somit gegen Herausfallen geschützt ist (Abb. 2.3 (4)).

Das beschriebene Einpressen erfolgt, da im Hochstromplatz das im Targethalter befindliche Material möglichst fest an die Rückwand gepreßt sein muß, um so die vorhandene Wasserkühlung effektiv nutzen zu können. Um das As_2O_3 -Halteblech optimal an die Rückwand des Targethalters anzupressen, wird darüber eine Aluminiumscheibe (Abb. 2.3 (3)) gelegt und mit einem Klemmring (Abb. 2.3 (5)) beides an den Targethalterrückenden angepreßt.

Die Aluminiumscheibe dient außerdem als Herausfallschutz des As_2O_3 , da sie einen kleineren Innendurchmesser (in der Größe des Zyklotronstrahles) als die

Vertiefung im As_2O_3 -Halteblech besitzt.

Der Klemmring ist mit zwei Stiften (Abb. 2.3 (6)) versehen, die mit einer dafür modifizierten Zange ein einfaches Einsetzen und Auslösen der bestrahlten Probe aus dem Targethalter ermöglichen. Das ist besonders beim Ausbau nach der Bestrahlung von Vorteil, denn zum Lösen des so geformten Klemmrings ist ein Manipulatorwerkzeug in der Bleiburg vorhanden.

Nach der Bestrahlung und dem Ausbau aus dem Hochstromplatz wird das As_2O_3 in folgender Weise aus dem Targethalter ausgebaut: Zunächst wird der Klemmring mit dem passenden Werkzeug gelöst. Dann wird die obere Aluminiumscheibe mit Hilfe einer Zange herausgenommen, dazu ist ein Aluminiumstreifen (Abb. 2.3 (7)) auf der Aluminiumscheibe aufgeklebt. Dann kann mit einer Pinzette das in die Aluminiumfolie eingeschlagene As_2O_3 als Ganzes aus dem As_2O_3 -Halteblech herausgenommen werden.

Es wurde so eine Möglichkeit geschaffen, mit möglichst geringer Strahlenbelastung des Experimentators den Ausbau des Targets vorzunehmen. Alle Ausbauarbeiten können in einem Bleiarbeitsplatz durchgeführt werden. In Abschnitt 2.3 wird dann noch ein weiterer Vorteil des so gestalteten Targets deutlich werden.

Erste Versuche mit in Pillenform gepreßtem As_2O_3 , welches dann durch eine überliegende Aluscheibe mit dem Klemmring in den Targethalter angepreßt worden ist, haben sich als wenig geeignet gezeigt, da es notwendig war, eine wesentlich größere Menge Material zu verwenden, um eine stabile Pille zu erhalten. Das hat eine schlechte Kühlung zur Folge und verringert den zulässigen Strahlstrom. Außerdem ist das Auslösen aus dem Targethalter nicht so einfach möglich, denn das As_2O_3 ist zum Teil an dem umgebenden Material festgebacken.

2.2 Bestrahlung am Isochronzyklotron

Das in Abschnitt 2.1.2 beschriebene Target wird am Hochstromplatz des Zyklotrons mit α -Teilchen der Energie 33 MeV bestrahlt. Diese Energie wird gewählt, da dann nach Durchqueren der über dem As_2O_3 liegenden Aluminiumfolie die Energie noch oberhalb 27 MeV (maximaler Wirkungsquerschnitt) liegt. In 15 μm Aluminium verlieren 33 MeV α -Teilchen etwa 0,6 MeV ihrer Energie. Gleichzeitig wird ^{76}Br nur in geringem Maße produziert (Abbildung 2.5).

^{76}Br wird durch die Reaktion $^{75}\text{As}(\alpha,3n)^{76}\text{Br}$ erzeugt und hat eine Halbwertszeit von $t_{\frac{1}{2}} = 16,0$ h. Es handelt sich hierbei um einen starken β^+ -Strahler ($E_{\beta}^{\text{max}} = 3,9$ MeV), daher ist es von Interesse, nur einen geringen Anteil an ^{76}Br zu erzeugen. Außerdem ergeben sich durch einen hohen Anteil an ^{76}Br bei der Implantation Probleme, die sich in einem stärkeren Untergrund äußern, denn die beiden Isotope können radiochemisch nicht getrennt werden.

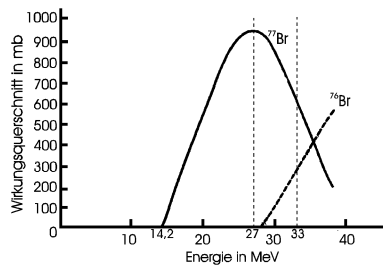


Abbildung 2.5: Anregungskurven der Reaktionen $^{75}\text{As}(\alpha,2n)^{77}\text{Br}$ und $^{75}\text{As}(\alpha,3n)^{76}\text{Br}$ [Noza78]

Eine Liste mit den wichtigsten bei der Bestrahlung erzeugten Elementen, die sich durch Reaktionen der α -Teilchen mit den Elementen des Targetmaterials (Arsen und Sauerstoff) und dem Aluminium des Halters ergeben, ist in Tabelle 2.4 angegeben. Dabei muß berücksichtigt werden, daß natürliches Arsen zu 100% aus dem Isotop ^{75}As , natürliches Aluminium zu 100% aus dem Isotop ^{27}Al und natürlicher Sauerstoff aus den Isotopen ^{16}O (99,76%), ^{17}O (0,038%) und ^{18}O (0,200%) besteht.

| Reaktion | Zerfallsart | Tochterkern | Halbwertszeit |
|--|-------------------------------|----------------------------------|---------------|
| $^{75}\text{As}(\alpha,2n)^{77}\text{Br}$ | β^+, EC | ^{77}Se | 57 h |
| $^{75}\text{As}(\alpha,3n)^{76}\text{Br}$ | β^+ | ^{76}Se | 16,0 h |
| $^{75}\text{As}(\alpha,4n)^{75}\text{Br}$ | β^+ | ^{75}Se | 1,6 h |
| $^{75}\text{As}(\alpha, n)^{78}\text{Br}$ | β^+ | ^{78}Se | 6,46 min |
| $^{75}\text{As}(\alpha, \alpha n)^{74}\text{As}$ | $\beta^+, \text{EC}; \beta^-$ | $^{74}\text{Ge}; ^{74}\text{Se}$ | 17,7 d |
| $^{16}\text{O}(\alpha, \text{pn})^{18}\text{F}$ | β^+ | ^{18}O | 109,7 min |
| $^{16}\text{O}(\alpha, 3n)^{17}\text{Ne}$ | β^+ | ^{17}F | 109,2 ms |
| $\quad \hookrightarrow ^{17}\text{F}$ | β^+ | ^{17}O | 64,8 s |
| $^{16}\text{O}(\alpha, 2n)^{18}\text{Ne}$ | β^+ | ^{18}F | 1,67 s |
| $^{16}\text{O}(\alpha, n)^{19}\text{Ne}$ | β^+ | ^{19}F | 17,22 s |
| $^{27}\text{Al}(\alpha, 3n)^{28}\text{P}$ | β^+ | ^{28}Si | 268 ms |
| $^{27}\text{Al}(\alpha, 2n)^{29}\text{P}$ | β^+ | ^{29}Si | 4,1 s |
| $^{27}\text{Al}(\alpha, n)^{30}\text{P}$ | β^+ | ^{30}Si | 2,50 min |

Tabelle 2.4: Erzeugte Elemente bei der Bestrahlung von As_2O_3 im Aluminium-Halter.

Wie man sieht, erzeugt die Bestrahlung insgesamt nur wenige unerwünschte Reaktionsprodukte. Nach Abklingen der kurzlebigen Isotope sind nur noch ^{77}Br , ^{76}Br und ^{74}As vorhanden. Dazu ist ein Germaniumdetektor-Spektrum der γ -Energien eines bestrahlten Targets in Abbildung 2.6 gezeigt.

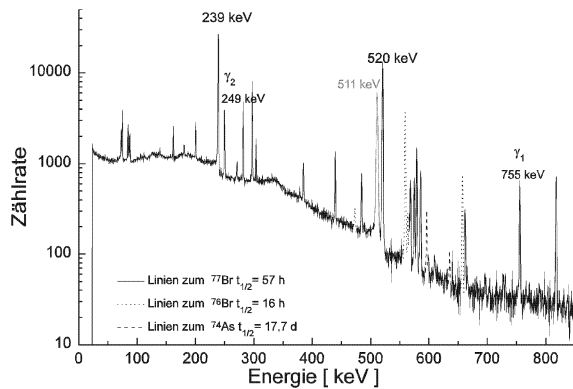


Abbildung 2.6: γ Energiespektrum des gesamten bestrahlten As_2O_3 Targets aufgenommen mit einem Germaniumdetektor, Bestrahlung 33 MeV α 's, 30 min, 200 nA, Messung 22 Stunden nach Strahlende, Meßzeit 15 min

Im Spektrum sind neben den Linien des ^{77}Br (das zugehörige Zerfallschema ist im Anhang A angegeben) nur noch die des ^{76}Br und ^{74}As zu sehen. Es ist eine starke 511 keV Linie enthalten, da es sich bei allen Isotopen um β^+ Strahler handelt. Das dabei abgestrahlte Positron zerstrahlt mit einem Elektron zu zwei γ 's der Energie 511 keV.

Gesondert gekennzeichnet sind im Spektrum die beiden stärksten Linien des ^{77}Br (239 keV (23,4 %), 520 keV (22,4%)), die zu Aktivitäts- und Ausbeutemessungen herangezogen wurden (Kapitel 3). Außerdem sind die beiden Linien der $\gamma\gamma$ Kaskade für die PAC Untersuchungen eingezeichnet.

Die Aufnahme wurde 22 Stunden nach Strahlende durchgeführt, um die kurzlebigen Isotope abklingen zu lassen. Das Auslösen des Targets erfolgt immer nach angemessener Abklingzeit für die kurzlebigen Isotope.

Bei den meisten durchgeführten Tests wurde mit einem Strahlstrom von 200 nA bestrahlt, aus Tabelle 2.2 ist jedoch zu entnehmen, daß wesentlich höhere Strahlströme im Zyklotron erzeugt werden können. Die Targetkonstruktion ist auch in der Lage, höhere Ströme auszuhalten. Dazu ist ein Target getestet worden, das mit 2 μ A eine halbe Stunde lang bestrahlt worden ist. Bei dem Target war keine Veränderung gegenüber den Targets mit geringerem Strahlstrom zu erkennen.

Es ist bisher nur ein geringer Strahlstrom verwandt worden, da zu den Testmessungen nur geringe Aktivitäten benötigt worden sind.

2.3 Trennung durch Destillation

Das durch die Bestrahlung erzeugte ^{77}Br , welches nun in Spuren im As_2O_3 enthalten ist, muß zur Separation mit anschließender Implantation in den Isotopenseparator eingebracht werden. Es ist nicht möglich, das bestrahlte As_2O_3 direkt in den Ofen der Ionenquelle (siehe Abschnitt 2.5) einzubringen, da durch die große Menge an As ein sogenannter Blockadeffekt auftreten würde. Darunter versteht man, daß das As sehr leicht verdampft und so die Emission der erheblich geringeren Menge an ^{77}Br unterdrückt.

Es ist also notwendig, das ^{77}Br vom As_2O_3 zu trennen. Im Rahmen dieser Arbeit ist ein chemisches Verfahren mittels Destillation gewählt worden [Nunn75, Helu70].

2.3.1 Destillationsanlage

Der Aufbau der Destillationsanlage ist in Abbildung 2.7 dargestellt, die wichtigsten Grundelemente sind der Destillationsdrehhalskolben und die zweite und dritte Waschflasche.

Im linken Seitenhals des Drehhalskolben befindet sich ein Gaseinlaßrohr, im Mittelhals ein Thermometer und im rechten Seitenhals das Verbindungsrohr zur Gaswaschflasche. Durch den Mittelhals wird — nachdem zunächst das Thermometer herausgenommen worden ist — das in die Aluminiumfolie eingeschlagene As_2O_3 (siehe Kapitel 2.1.2) eingebracht. Dann wird mit Hilfe eines Trichters Chromschwefelsäure zugegeben (siehe Kapitel 2.3.2) und das Thermometer wieder eingesetzt.

Die Chromschwefelsäure besteht aus 30 ml H_2O und 30 ml handelsüblicher Chromschwefelsäure². Es wird zuerst das destillierte Wasser und dann die Chromschwefelsäure eingebracht. Durch die dabei entstehende Reaktionswärme erwärmt sich das Gemisch bereits auf eine Temperatur von etwa 100°C. Die Aluminiumfolie

² MERCK Chromschwefelsäure zum Reinigen von Glasgeräten, 2499

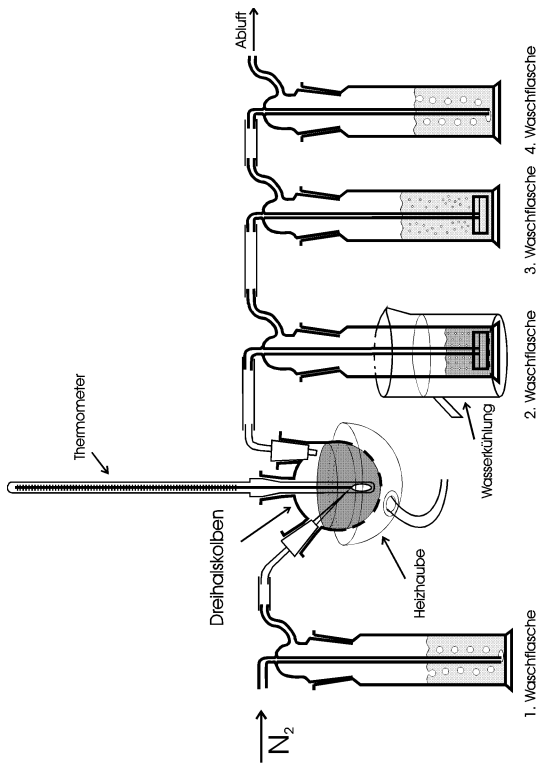


Abbildung 2.7: Destillationsaufbau zur Trennung des ^{77}Br von bestrahltem As_2O_3

löst sich direkt auf, was sich durch die Bildung von Bläschen in der Flüssigkeit zeigt. Das As_2O_3 löst sich bei diesen Temperaturen noch nicht auf, sondern erst bei Temperaturen oberhalb etwa 140°C .

In diesem Prozeß liegt auch der weitere Vorteil des in Abschnitt 2.1.2 beschriebenen Targets. Das As_2O_3 muß nicht aus der Aluminiumfolie gelöst werden, sondern kann auf diese sehr einfache Art direkt mit ihr in den Dreihalskolben eingebracht werden. Die Mitnahme des Aluminiums wirkt sich nicht negativ auf das Destillationsergebnis aus. Dies zeigt ein Vergleich mit ebenfalls durchgeführten Experimenten, in denen nur das As_2O_3 eingebracht worden war.

Um die zur Auflösung benötigten Temperaturen zu erreichen, wird der Dreihalskolben mit einer Heizhaube³ erwärmt. Diese besitzt drei verschiedene Heizstufen. Nach dem Einbringen des in der Aluminiumfolie eingeschlagenen As_2O_3 und der Säure wird mit der Heizhaube auf Stufe 3 geheizt. Man kann bei Temperaturen oberhalb der erwähnten 140°C , die nach etwa 10 min erreicht werden, ein Auflösen des As_2O_3 beobachten. Dies wird durch ein leichtes Schäumen in der Flüssigkeit angezeigt. Das freiwerdende ^{77}Br dampft aus und wird dann in die Vorlage der zweiten Waschflasche eingewaschen.

In der zweiten Waschflasche befindet sich als Vorlage eine wässrige Kaliumbromidlösung, bestehend aus 30 ml destilliertem Wasser und 3 mg Kaliumbromid⁴ (KBr). Diese Vorlage wird im Hinblick darauf verwandt, daß das ^{77}Br mit einem Träger in den Ofen der Ionenquelle gegeben werden muß, näheres dazu im Abschnitt 2.4.

Das Einwaschen kann durch ein hinter der zweiten Waschflasche positioniertes Geiger-Müller-Zählrohr beobachtet werden. Dieses besitzt eine Bleiabschirmung, um die direkte Strahlung aus dem Dreihalskolben abzuschirmen. Löst sich das As_2O_3 , was das Ausdestillieren des ^{77}Br zur Folge hat, erkennt man direkt einen Anstieg der gemessenen Impulse am Zählrohr. Ein typisches Meßprotokoll eines Destillationsverlaufs, welches das geschilderte Verhalten wiedergibt, ist in Tabelle 2.5 angegeben.

Der Zusammenhang zwischen der Temperatur der Destillationsflüssigkeit im Dreihalskolben und den am Geiger-Müller-Zählrohr gemessenen Impulsen ist außerdem in Abbildung 2.8 dargestellt. Dort ist ebenfalls deutlich der rasche Anstieg der Zählrate bei Erreichen von etwa 140°C zu erkennen.

In der dritten Waschflasche befinden sich 50 ml einer 0,5 %igen Kalilauge (KOH). Diese dient als Sicherheit, um eventuell noch vorhandenes ^{77}Br , welches nicht in der Kaliumbromidlösung eingewaschen worden ist, zu binden. Die zweite und dritte Waschflasche besitzen einen Glasfilter, der ein sehr feines Einperlen in die Vorlage bewirkt und somit ein besseres Einwaschen als ohne Filter erzielt.

³ Heraeus-Wittmann-Heidelberg, Typ PILZ, 220 Volt, 80 Watt

⁴ Riedel de Haën Kaliumbromid für Analyse, 30206

| Zeit in min | Heizhaubenstellung | Temperatur in °C | Impulse pro s |
|-------------|--------------------|------------------|---------------|
| 0 | aus | Einbringen | der Probe |
| 3 | 3 | 90 | 3 |
| 6 | 3 | 100 | 3 |
| 8 | 3 | 110 | 3 |
| 12 | 3 | 135 | 3 |
| 15 | 3 | 140 | 5 |
| 18 | 3 | 144 | 7 |
| 21 | 3 | 147 | 10 |
| 24 | 2 | 148 | 12 |
| 36 | 2 | 151 | 14 |
| 48 | 2 | 155 | 15 |
| 63 | 2 | 160 | 15 |
| 64 | aus | 160 | 15 |
| 105 | aus | 71 | Ausbau |

Tabelle 2.5: Meßprotokoll einer typischen Destillation

Nachteilig bei den Filtern ist jedoch, daß die im Filter befindliche Restmenge der Flüssigkeit nicht ohne größeren Aufwand herausgebracht werden kann.

Um zu verhindern, daß das ^{77}Br aus der Kaliumbromidlösung der zweiten Waschflasche wieder ausdestilliert, wird diese wassergekühlt. Dies ist notwendig, da durch den Gasstrom eine große Wärmemenge aus dem Dreihalskolben in die zweite Waschflasche überführt wird und so die darin enthaltene Flüssigkeit aufgeheizt wird.

Durch die Apparatur strömt während des gesamten Experiments Stickstoff⁵, welcher als Transportgas dient und das in elementarer Form freiwerdende ^{77}Br in die zweite Waschflasche einwäscht. Damit die Wechselwirkung zwischen durchgeleitetem Gas und der Vorlage ausreichend ist, darf die Strömungsgeschwindigkeit nicht größer als 10 l/h sein. Das entspricht bei einer 5 - 6 mm weiten in Wasser eintauchenden Rohröffnung, wie sie bei der ersten und vierten Waschflasche vorhanden sind, 10 Blasen pro Sekunde.

Die Strömungsgeschwindigkeit wird mit einem Durchflußregler, der sich hinter dem Gasflaschendruckminderer der Stickstoffflasche befindet, eingestellt und durch die Blasenentwicklung in der ersten Waschflasche kontrolliert. Durch Vergleich der Blasenentwicklung in dieser Waschflasche und der vierten, am Ende des Aufbaus befindlichen, kann außerdem die Dichtigkeit der Apparatur überprüft werden.

⁵ N₂; Reinheitsgrad 5.0

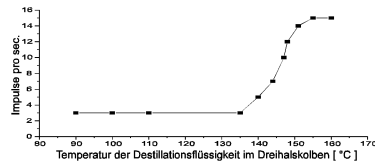


Abbildung 2.8: Aktivität der KBr-Lösung als Funktion der Temperatur, gemessen mit einem Geiger-Müller-Zählrohr, nach Meßprotokoll in Tabelle 2.5.

Die Grundbestandteile, welche mit der Radioaktivität in Berührung kommen — Dreihalskolben, zweite und dritte Gaswaschflasche —, sind auf einer Grundplatte mit Stativstangen befestigt. Die Schlauchverbindungen, die mit dem ^{77}Br in Berührung kommen — zwischen Dreihalskolben und zweiter und dritter Gaswaschflasche —, bestehen aus bromresistentem Teflonschlauch. Die übrigen Schläuche sind Siliconschläuche.

Die Durchführungen am Dreihalskolben für den Gaseinlaß und den Übergang zur zweiten Gaswaschflasche sind aus Siliconstöpseln gefertigt, in die passende Löcher für die Glasteile eingestanzte wurden. Die übrigen Verbindungen sind alle Schliffverbindungen, die mit Schliffett⁶ gedichtet werden.

Der gesamte Aufbau — außer der Stickstoffflasche — befindet sich in einem chemischen Abzug, die Grundplatte ist hinter einer Wand aus Bleiziegeln aufgestellt. Die Durchführung der Destillation erfolgt in einem radiochemischen Labor.

2.3.2 Chemische Vorgänge

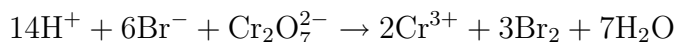
In diesem Abschnitt werden die ablaufenden chemischen Vorgänge, die bei der Destillation eine Rolle spielen, kurz beschrieben. Dazu gehören der Auflösungsprozeß des As_2O_3 und der Aluminiumfolie in der Chromschwefelsäure, das dabei freiwerdende Br und der Einwaschprozeß in die beiden Flüssigkeiten der zweiten und dritten Waschflasche. An allen Prozessen ist dabei natürlich nicht nur das ^{77}Br beteiligt, sondern auch das ebenfalls bei der Bestrahlung erzeugte ^{76}Br .

Auflösen des As_2O_3 : As_2O_3 ist in Wasser mäßig löslich [Holl85] aber gut in Chromschwefelsäure [Nunn75], letzteres gilt ebenso für die Aluminiumfolie⁷, da Dichromate/Chromate eine stark oxidierende Wirkung haben. Das hat auch zur

⁶ borer chemie: glisseal Laborfett, Hochvakuumqualität $-40^\circ\text{C} - +320^\circ\text{C}$

⁷ $14\text{H}^+ + 2\text{Al} + \text{Cr}_2\text{O}_7^{2-} \rightarrow 2\text{Al}^{3+} + 2\text{Cr}^{3+} + 7\text{H}_2\text{O}$

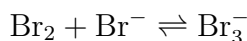
Folge, daß das Brom in elementarer Form als Br_2 aus der Destillationsflüssigkeit frei wird.



Die Reaktion bewirkt, daß das freiwerdende ^{77}Br nicht in Form von HBr ausdestilliert sondern als Br_2 .

Einwaschen des Br_2 in die KBr -Lösung: In Wasser ist die Löslichkeit von Brom sehr gering, bei 25°C lösen sich $0,21 \text{ mol/l}$ in Wasser [Holl85], das entspricht in 30 ml Wasser etwa $0,5 \text{ g}$ Brom. Für die unwägbareren Mengen an ^{77}Br , die bei der Bestrahlung erzeugt werden, wäre diese Löslichkeit völlig ausreichend. Außerdem wird die Löslichkeit durch die Wasserkühlung noch weiter erhöht.

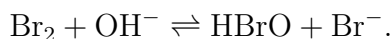
Da für die Eingabe in den Isotopenseparator jedoch ein Träger erforderlich ist, wird Kaliumbromid (siehe Abschnitt 2.4) zugesetzt. Das Einwaschen erfolgt dort auf Grund der Tribromidreaktion [Klei60]:



Das Gleichgewicht der Reaktion liegt mit einer Gleichgewichtskonstanten⁸ von $K = 18$ [Holl85] knapp auf der rechten Seite, läuft aber sehr schnell ab. Daher ist durch den Überschuß der stabilen Bromisotope (^{79}Br und ^{81}Br) gegenüber dem ^{77}Br nach einiger Zeit der überwiegende Teil des ^{77}Br im KBr gebunden.

Dies sei an einem Beispiel erläutert. Das Br_2 bestehe aus zwei ^{77}Br Atomen und das Br^- sei ein ^{81}Br . Bei der Rückreaktion bildet sich aus dem Br_3^- ein Br^- , das dann mit einem K^+ das KBr bildet. Mit einer Wahrscheinlichkeit von $\frac{2}{3}$ handelt es sich bei dem Br^- um ein ^{77}Br . Bei der nächsten Hinreaktion wird das jetzt aus einem ^{77}Br und einem ^{81}Br bestehenden Br_2 wieder mit einem ^{81}Br oder einem ^{79}Br als Br^- reagieren. Denn es liegt ein großer Überschuß der stabilen Isotope gegenüber dem ^{77}Br vor. Stellt man sich diesen Vorgang immer weiter fortgesetzt vor, so ergibt sich dann, daß sich nach einiger Zeit der überwiegende Anteil an ^{77}Br im KBr befindet.

Einwaschen des ^{77}Br in die Kalilauge: Der Einwaschvorgang erfolgt auf Grund des Vorhandenseins der OH^- Ionen in der Lauge durch die Reaktion

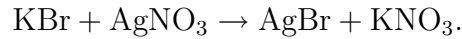


Das Gleichgewicht der Reaktion liegt auf der rechten Seite, $K = 4 \cdot 10^{10}$ [Klei60]⁸.

Vor Beginn der Experimente mit bestrahltem As_2O_3 ist die Destillationsanlage mit einer Destillation inaktiver Substanzen getestet worden. Zu diesem Zweck ist in den Dreihalskolben zusätzlich eine Menge von 60 mg KBr zugesetzt worden. In die vierte Waschflasche, die normalerweise zum Dichtigkeitsstest eingesetzt wird, sind ebenfalls 50 ml einer $0,5 \%$ igen Kalilauge eingegeben worden.

⁸ Für die Gleichgewichtskonstante K einer Reaktion $\text{A} + \text{B} \rightleftharpoons \text{C} + \text{D}$ gilt aus dem Massenwirkungsgesetz: $K = \frac{c(\text{C}) \cdot c(\text{D})}{c(\text{A}) \cdot c(\text{B})}$, wobei $c(\text{X})$ die Konzentration des Stoffes X bezeichnet.

Nach der Destillation sind die beiden KOH-Lösungen mit einer Silbernitratlösung⁹ getestet worden, da mit Silbernitrat durch Ausfällung von Silberbromid Brom nachgewiesen werden kann. Dies erfolgt über die Reaktion



Um sicher zu sein, daß es sich bei der ausgefällten Substanz um AgBr handelt, wird die feste Substanz in Schwefelsäure (H_2SO_4) gegeben. Löst sie sich darin nicht auf, so ist sichergestellt, daß es sich bei der ausgefällten Substanz um AgBr handelt.

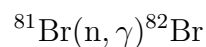
Ob in die Kaliumbromidlösung Brom eingewaschen wird, kann mit diesem Test nicht überprüft werden, da dort ja schon Brom vorhanden ist. Das zeigt sich dann im Fall der aktiven Destillation. Was aber getestet werden kann, ist die Sicherheit der Apparatur, d.h. ob noch Brom hinter der ersten mit KOH gefüllten Waschflasche vorhanden ist.

Der Test hat ergeben, daß kein Brom in der zweiten KOH Lösung vorhanden ist, wohl aber etwas in der ersten Lösung, d.h. es ist Brom ausdestilliert worden. Dabei ist auf Grund der — im Vergleich zum aktiven Fall — großen Menge nicht alles in die Kaliumbromidlösung eingewaschen worden.

Die Destillationsapparatur arbeitet im inaktiven Fall also sicher, die Arbeitsweise und Ausbeute im aktiven Fall wird in Kapitel 3 näher diskutiert.

2.4 Substanz für die Ionenquelle des Isotopen-separators

Die Probenart, die in den Ofen der Ionenquelle gegeben wird, begründet sich auf langjährige Erfahrungen mit Implantationen von radioaktivem ^{82}Br . Das ^{82}Br wird durch Bestrahlung von Kaliumbromid im Reaktor¹⁰ über die Reaktion



erzeugt. Das Kaliumbromid kann dann direkt in den Ofen der Ionenquelle eingebracht werden. Es ist aus KBr erfolgreich Brom separiert worden.

Daher ist in der Destillationsanlage als Vorlage in der zweiten Waschflasche wässrige Kaliumbromidlösung gewählt worden. Die Wahl des Trägers ist nicht einfach, denn bereits früher durchgeführte Versuche, ^{77}Br am Bonner Isotopenseparator zu separieren, sind gescheitert, da das ^{77}Br nicht aus dem gewählten Träger ausdampfte [Frei96].

⁹ MERCK, 0,1 N Lösung Silbernitrat ($16,987 \text{ AgNO}_3 = 0,1 \text{ N Äquivalent}$), aus Tritisol Art. 9990

¹⁰ Forschungszentrum Jülich, DIDO

Um das Kaliumbromid in trockener Form in den Ofen einbringen zu können, wird die wässrige Lösung eingedampft. Als Unterlage zum Eindampfen wird eine $15\ \mu\text{m}$ Goldfolie gewählt, da das Gold als Edelmetall keine thermisch beständigen Verbindungen eingeht. Um die 30 ml KBr-Lösung auf die Goldfolie aufdampfen zu können, wird die Flüssigkeit zunächst in einen Teflontiegel (Abbildung 2.9) eingefüllt und mit Hilfe eines Oberflächenverdampfers auf wenige $100\ \mu\text{l}$ eingengt. Der Tiegel wurde in der Feinmechanikwerkstatt gefertigt und besitzt eine besonders glatte Oberfläche, damit keine Benetzung durch das KBr erfolgt.

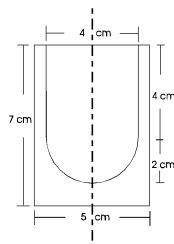


Abbildung 2.9: Großer Teflontiegel zur Einengung der wässrigen Kaliumbromidlösung auf wenige $100\ \mu\text{l}$.

Nach der Einengung wird die gesamte Restmenge in die Spitze eines Transferpipettors aufgenommen. Es muß die gesamte Menge auf einmal aufgenommen werden, da sonst die Restmenge durch die Restwärme im Tiegel eindampft und sich in dem Tiegel absetzt. Mit Hilfe des Transferpipettors werden nun jeweils 1-2 Tropfen auf die Goldfolie gegeben und ebenfalls unter dem Oberflächenverdampfer eingedampft.

Es hat sich als günstig erwiesen, die Goldfolie in runder Form auszuschneiden ($\varnothing = 12\ \text{mm}$) und dann über einer abgerundeten Spitze zu einem Kegel zu formen. Die Goldfolie wird dann auf eine Teflonunterlage gelegt, in der sich in der Mitte eine kegelförmige Vertiefung mit gleichem Winkel befindet, dies ist in Abbildung 2.10 dargestellt.

Der Eindampfprozeß dauert etwa vier Stunden. Er findet ebenfalls hinter einer Wand aus Bleiziegeln statt. Zum weiteren Strahlenschutz sind an den Teflonteilen für eine bessere Handhabung Verlängerungsstangen angebracht.

Auf die Ausbeute bei dem Eindampfprozeß wird ebenfalls in Kapitel 3 eingegangen. Dort wird auch gezeigt, daß die ^{77}Br Aktivität beim Eindampfen in dem KBr verbleibt und nicht als Br_2 frei wird.

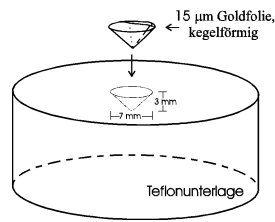


Abbildung 2.10: Goldfolie zum Aufdampfen der Restmenge des Kaliumbromid zur Übergabe an den Isotopenseparator. Die Folie ist rund ausgeschnitten ($\varnothing = 12$ mm) und zu einem Kegel geformt.

2.5 Implantation

Es kann im Rahmen dieser Diplomarbeit nicht in allen Einzelheiten auf den Aufbau und die Wirkungsweise des Isotopenseparators eingegangen werden; für ausführliche Informationen sei auf weitere Literatur verwiesen [Frei77, ISKP69, Rohr96]. Hier sollen nur die wichtigsten und für die Bromimplantation relevanten Bestandteile beschrieben werden. In Abbildung 2.11 ist der schematische Aufbau des Isotopenseparators gezeigt.

Prinzipiell läuft jede Separation so ab, daß zunächst das Material verdampft und dann ionisiert wird, dies geschieht in der Ionenquelle. Die gleichgeladenen Ionen werden dann beschleunigt und im Magnetfeld je nach der Masse abgelenkt und durch eine Blende auf verschiedene Wirtsmaterialien beschleunigt.

Bei der Bromimplantation wird eine Ionenquelle mit negativer Oberflächenionisation verwandt. Unter dem Prozeß versteht man, daß das zu separierende Material in einen Ofen eingebracht wird, der mit einer Düse verschlossen ist. Das Material wird durch eine Schleuse in die Ionenquelle eingeführt. Die Verdampfung der Substanz erfolgt durch Heizen des Ofens auf circa 1000°C . Die austretenden Atome werden dann, bevor sie in die Beschleunigungsstrecke extrahiert werden, an einer Lanthanhexaboridpille vorbeigeführt. Dabei erfolgt die negative Ionisation, indem von der Pille Elektronen abgegeben und von den Atomen aufgenommen werden.

Die $^{77}\text{Br}^{-}$ Ionen werden im Magnetfeld des Separationsmagneten von den Ionen anderer Massenzahl getrennt und mit ihrer Vorbeschleunigungsenergie von 80 keV durch eine 8 mm Blende in das am Kollektor befindliche Wirtsmaterial

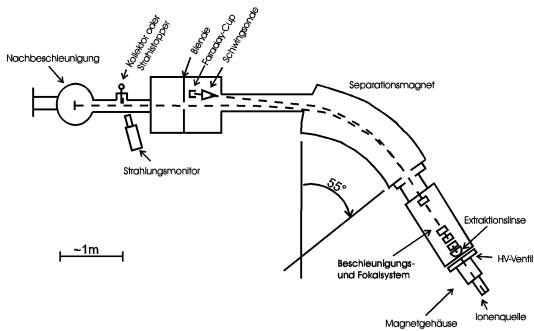


Abbildung 2.11: Schematischer Aufbau des Bonner Isotopenseparators

eingeschossen. Mit Hilfe der vorhandenen Nachbeschleunigung ist eine Beschleunigung bis auf 160 keV möglich.

Die Isotope, die nicht implantiert werden sollen, werden durch zwei Blechstreifen, die von den Seiten neben die Blende geschoben werden, aufgefangen. Zur Strahlkontrolle stehen eine Schwingsonde und eine Meßtasche in Form eines Faradaycups zur Verfügung. Mit Hilfe der Schwingsonde kann das Strahlprofil der stabilen Nachbarmasse ausgemessen werden. Durch die bekannte Dispersion D (siehe Abbildung 2.12) können die Blende und die Meßtasche so justiert werden, daß das gewünschte radioaktive Isotop durch die Blende fällt und ein stabiles Nachbarisotop, das zur Strahlstabilisierung verwandt wird, in die Meßtasche gelangt.

Die intensive Massenlinie des stabilen Nachbarisotopes (hier ^{79}Br) fällt dort auf die auf -50 V vorgespannte Strom-Meßtasche. Es wird der $(1 + \eta)$ -fache Ionenstrom integriert und somit die aufgefangene Ladung an ^{79}Br Ionen ($Q_{^{79}\text{Br}}$) bestimmt. Für den Sekundärelektronenfaktor wird $\eta = 3$ angesetzt.

Die Effizienz der Separation (ε) ist durch das Verhältnis der an der Blende angelangten, separierten Masse Broms zu der in den Ofen eingebrachten Masse an KBr (m_{KBr}) gegeben. Die separierte Masse wird über die aufgefangene Ladung ($Q_{^{79}\text{Br}}$), die Elementarladung (e), den Elementanteil des aufgefangenen Isotopes (hier 0,5 für das Isotop ^{79}Br) und die Massenzahl der separierten Masse ($M_{^{79}\text{Br}}$

in u) bestimmt.

$$\varepsilon = \frac{\text{nach Separation aufgefangene Masse}}{\text{in Ofen eingebrachte Masse}} = \frac{Q_{79\text{Br}}/e \cdot 2 \cdot M_{79\text{Br}}}{m_{\text{KBr}} \cdot a}$$

Durch den Faktor 2 wird der Elementanteil des ^{79}Br berücksichtigt. Der Faktor a berücksichtigt den im KBr befindlichen Anteil an Kalium¹¹.

Der große Vorteil der negativen Oberflächenionisation liegt in ihrer Elementselektivität, denn diese Ionisation erfolgt nur bei den Halogenen. Daher ist die Implantation untergrundfrei was die Verunreinigung durch andere Elemente betrifft. Die Kontamination durch die Nachbarlinien der stabilen Bromisotope (^{79}Br , ^{81}Br) ist ebenfalls recht gering, da ^{77}Br zwei Massenzahlen entfernt ist.

Die Massenauflösung $M/\Delta M$ beträgt beim Bonner Isotopenseparator circa 1000 - 2000. Sie ist bestimmt von Faktoren wie Strahlformierung, Vakuum und Justierung. Die Auflösung steht hierbei in Konkurrenz zu einer möglichst hohen Effizienz. Der Überlapp benachbarter Massen ist in Abbildung 2.12 gezeigt. Im Fall der ^{77}Br Implantation müssen jedoch die Massen M (79) und M-2 (77) verglichen werden, so daß der durch die Nachbarisotope verursachte Untergrund für die ^{77}Br Implantation noch erheblich kleiner ist.

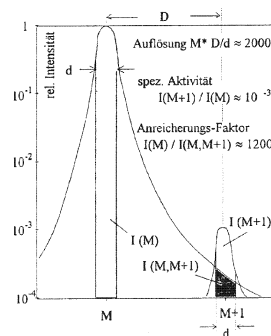


Abbildung 2.12: Überlapp der benachbarten Massen M (stabiles Isotop) und M+1. Im Fall der ^{77}Br Implantation liegt das zu implantierende radioaktive Isotop mit Masse M-2 noch weiter außerhalb (entnommen aus [Rohr96]).

¹¹ $a = \frac{M_{79\text{Br}}}{M_{39\text{K}} + M_{79,81\text{Br}}} = \frac{79}{39+80} = 0,66$

Bei den bisher durchgeführten ^{77}Br Implantationen ist eine neue vergrößerte Ionenquelle¹² verwandt worden, mit der noch wenig Erfahrung gesammelt worden ist. Deshalb treten einige Einstellungs- und Justierungsprobleme auf. So ist die Kathodenhochspannungsversorgung noch nicht dafür geeignet, die nun benötigten hohen Ströme (um 1mA) zu liefern. Daher kann die benötigte Temperatur nicht konstant gehalten werden. Es müssen noch einige Tests mit der neuen Quelle durchgeführt und weitere Verbesserungen vorgenommen werden. Dann ist auch die Effizienz der Separation steigerungsfähig ebenso wie die Massenauflösung. Die Effizienz bei der durchgeführten Implantation von ^{77}Br ist in Kapitel 3 ausführlich diskutiert.

Ein Vorteil bei der Implantation am Bonner Isotopenseparator gegenüber der in Kap 1.3 beschriebenen Implantation an der ISOLDE am CERN (mit 60 keV) ist die Möglichkeit, hier, wie bereits geschildert, mit bis zu 160 keV zu implantieren. Es wird dann ein gleichmäßigeres Tiefenprofil erhalten.

Dazu ist in Abbildung 2.13 das Tiefenprofil der implantierten ^{77}Br Ionen für eine Implantation mit 160 keV angegeben. Die Berechnung der Daten erfolgte auch hier mit dem Simulationsprogramm TRIM92. Beim Vergleich mit der in Abbildung 1.5 gezeigten Verteilung für Ionen die mit 60 keV implantiert werden, sieht man durch die gleichgewählte Skalierung der x-Achse deutlich die breitere Verteilung im Fall der Implantation mit 160 keV. Die lokale Konzentration ist im Fall der Implantation mit 60 keV etwa einen Faktor 2,5 größer als bei der 160 keV Implantation.

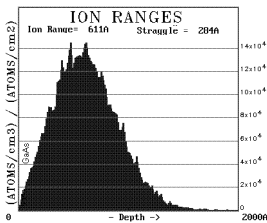


Abbildung 2.13: Tiefenprofil der implantierten ^{77}Br Ionen bei Implantation mit 160 keV in GaAs

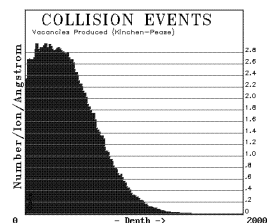


Abbildung 2.14: Tiefenprofil der entstandenen Leerstellen bei Implantation von ^{77}Br mit 160 keV in GaAs

Diese Verbreiterung in der Verteilung erkennt man ebenso für die Leerstellen. Dazu ist in Abbildung 2.14 die Tiefenverteilung für die Implantation mit 160 keV gezeigt. Für die Implantation mit 60 keV ist diese in Abbildung 1.6 gezeigt.

¹² Der Innendurchmesser des Ofens ist von 2 mm auf 4 mm vergrößert worden.

Kapitel 3

Ergebnisse, Ausbeuten

Im vorliegenden Kapitel werden die Ergebnisse der Experimente dargestellt, die nach der in Kapitel 2 angegebenen Beschreibung durchgeführt worden sind. Zu den dabei durchgeführten Messungen müssen zunächst einige, für die Durchführung allgemeingültige Aussagen getroffen werden.

Um die Ausbeute bei der Destillation, dem Eindampfen und der Implantation bestimmen zu können, sind γ -Energiesmessungen der dabei auftretenden, unterschiedlichen Komponenten mit einem Germaniumdetektor¹ durchgeführt worden. Damit ein Vergleich der verschiedenen Messungen durchgeführt werden kann, werden in allen aufgenommenen Spektren die Netto-Zählraten in der starken 520 keV Linie des ⁷⁷Br bestimmt. Zur Bestimmung der Netto-Zählraten wird ein linearer Untergrund unter dem Peak abgezogen.

Ein Problem, das sich bei den Messungen ergeben hat, ist der Vergleich von Proben unterschiedlicher Konsistenz und Ausdehnung. Dabei handelt es sich um die Flüssigkeiten aus dem Destillationsaufbau (Chromschwefelsäure aus dem Dreihalskolben, KBr-Lösung aus der zweiten Waschflasche, Kalilauge aus der dritten Waschflasche), das gesamte Target, die Goldfolie mit dem aufgedampften KBr (inclusive Eindampfbereich: großer Teflontiegel, Teflonunterlage und Pipettorspitzen) sowie die implantierten Folien aus dem Isotopenseparator.

Bei den Flüssigkeiten ergeben sich durch Selbstabsorption Verluste. Die gemessene Zählrate ist daher zu gering. Eine Abschätzung des daraus resultierenden Fehlers ist in Anhang B.1 diskutiert. Dort wird ein Korrekturfaktor (k_{sa}) bestimmt, der die Selbstabsorption berücksichtigt.

¹ Ortec; Modell No. GEM-15180, CFG SL-GEM, Basisspannung +2500 V

Außerdem ist der Abstand vom Detektor zur Aktivität bei den ausgedehnten Objekten, wie z.B. dem Eindampfzubehör nicht genau festlegbar. Anders sieht es bei den konzentrierteren Proben wie dem Target, der Goldfolie mit KBr und den implantierten Proben aus. Eine Abschätzung des daraus resultierenden Fehlers erfolgt in Anhang B.2. Die Abschätzung erfolgt dort für die verschiedenen Substanzen in den unterschiedlichen eingesetzten Behältern. Als solche sind Kunststofffläschchen verwandt worden.

Teilweise ist bei den verschiedenen Messungen der Abstand zwischen der Probe und dem Detektor den vorliegenden Aktivitäten angepaßt worden. Sind unterschiedliche Abstände innerhalb einer Meßreihe verwandt worden, so sind die dargestellten Zählraten auf eine Entfernung umgerechnet worden. Außerdem sind alle Zählraten mit Hilfe der Halbwertszeit des ^{77}Br auf den Zeitpunkt der ersten durchgeführten Messung umgerechnet worden, um so einen Vergleich zu ermöglichen.

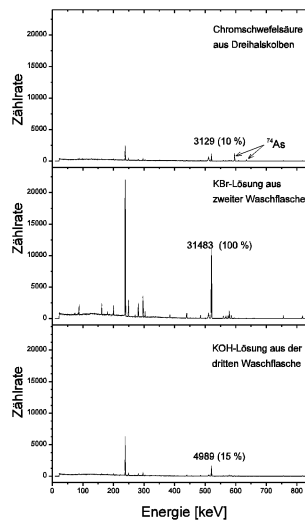
3.1 Funktionsfähigkeit der Apparatur

Um zu testen, ob die Destillationsanlage wie gewünscht arbeitet, das heißt ob aus der Destillationsflüssigkeit im Dreihalskolben ^{77}Br ausdestilliert und in die KBr-Lösung der zweiten Waschflasche eingewaschen wird, wurden die Chromschwefelsäure, die KBr-Lösung und die KOH-Lösung untersucht. Im dargestellten Fall befanden sich alle Flüssigkeiten in Fläschchen mit $\varnothing = 3,5$ cm.

Bei dieser Messung sind die Zählraten nicht mit den im Anhang B.1 angegebenen Korrekturfaktoren (k_{sa}) verrechnet worden. Eine Verringerung des Meßfehlers durch die Selbstabsorption kann durch das Eindampfen der Flüssigkeiten erreicht werden. Da dies aber lange Zeit in Anspruch nimmt, und dadurch eine unnötige Strahlenbelastung zur Folge hat, sind die KOH-Lösung und die Chromschwefelsäure nicht eingedampft worden. Für einen besseren Vergleich ist hier ebenfalls die uneingedampfte KBr-Lösung gezeigt.

Zunächst wird eine Messung gezeigt, in der die Wirkungsweise der Destillationsanlage überprüft worden ist. Sie dient nicht zur quantitativen Betrachtung der Ausbeute, diese wird dann mit den Ausbeuten der anderen, an der Gesamtdurchführung beteiligten Prozesse, in Abschnitt 3.4 diskutiert.

In der nebenstehenden Abbildung sind die Spektren der Chromschwefelsäure, der KBr-Lösung und der KOH-Lösung nach Abschluß der Destillation gezeigt. Die Netto-Zählraten der 520 keV-Linien sind in den Spektren eingetragen. Außerdem sind die relativen Anteile im Vergleich zur KBr-Lösung angegeben.



Bei der Darstellung der Spektren sind zum besseren Vergleich die gleichen Achseneinteilungen gewählt.

Direkt ist erkennbar, daß der überwiegende Teil des ^{77}Br in der KBr-Lösung enthalten ist. Das bedeutet also, es wird ^{77}Br aus der Destillationsflüssigkeit ausdestilliert und in die KBr-Lösung eingewaschen.

Dort wird dann auch fast alles ^{77}Br gebunden, was sich an der recht geringen Zählrate in der KOH-Lösung zeigt. In der Chromschwefelsäure ist nur noch ein kleiner Rest an ^{77}Br vorhanden.

Abbildung 3.1: Messungen zur Wirkungsweise des Destillationsaufbaus

Außerdem zeigen sich im Spektrum der Chromschwefelsäure die Linien des ^{74}As , ebenso wie in dem bereits gezeigten Spektrum des gesamten Targets (Abb. 2.6). Jedoch sind diese Linien in den Spektren der beiden anderen Flüssigkeiten nicht mehr enthalten. Das heißt, es wird nur Brom ausdestilliert, nicht jedoch das Arsen.

Es fällt auf, daß entgegen den Erwartungen nicht alles ^{77}Br in der KBr-Lösung eingewaschen ist, sondern auch in der KOH-Lösung. Dies ist darauf zurückzuführen, daß bei dieser ersten Destillation noch keine Wasserkühlung an der zweiten Waschflasche angebracht war. In den nachfolgenden Destillationen ist die im Destillationsaufbau gezeigte Wasserkühlung eingefügt worden. Dadurch

ergibt sich bei den weiteren Messungen in der KOH-Lösung höchstens 10 % der Zählrate der KBr-Lösung.

Als erstes wichtiges Ergebnis hat sich also herausgestellt, daß die Destillationsanlage wie gewünscht arbeitet. Das Brom wird aus der Destillationsflüssigkeit ausdestilliert und in die KBr-Lösung eingewaschen.

3.2 Eindampfprozeß

Zur Untersuchung des Eindampfverfahrens und zur Überprüfung ob ^{77}Br dabei freigesetzt wird, wurden alle beim Eindampfprozeß beteiligten Komponenten vermessen. In Tabelle 3.1 ist der Vergleich der Summe der erhaltenen Zählraten aus den einzelnen Komponenten mit der Zählrate aus der KBr-Lösung gezeigt. Die untersuchten Komponenten sind die Goldfolie mit dem aufgedampften KBr, der große Teflontiegel, die Teflonunterlage und die Pipettorspitze des Transferpipettors.

| vermessene Probe | Zählraten in der 520 keV Linie | |
|---------------------|-----------------------------------|-----------------------------|
| KBr -Lösung | 3345 (100 %) | $Z_{\text{kor}} = 3947$ |
| KBr auf Goldfolie | 1881 (56 %) | Summe der Zählraten 6063 |
| großer Teflontiegel | 1348 (40 %) | |
| Teflonunterlage | 1483 (44 %) | |
| Pipettorspitze | 1324 (39 %) | |

Tabelle 3.1: Tabelle zum Eindampfprozeß. Dabei sind alle Zählraten untergrundkorrigiert und auf den Meßzeitpunkt der Messung der KBr-Lösung bezogen. Die Zählrate der KBr-Lösung ist außerdem mit dem Korrekturfaktor $k_{\text{sa}} = 1,18$, der die Selbstabsorption bei der Flüssigkeitsmessung korrigiert, multipliziert.

Die Summe der Zählraten der an dem Eindampfprozeß beteiligten Bestandteile ist um einen Faktor 1,5 größer als die der KBr-Lösung. Betrachtet man das Verhältnis mit der unkorrigierten Zählrate für die KBr-Lösung, so liegt dieser Faktor sogar bei 1,8. Durch die Einrechnung des Korrekturfaktors, der den Fehler der Flüssigkeitsmessung berücksichtigt, ist die Diskrepanz zwischen der Zählrate der KBr-Lösung und der Summe der anderen Messungen also verringert, jedoch ist diese noch immer überraschend hoch.

Es gibt zwei mögliche Ursachen für diesen großen Unterschied. Zum einen ist die Bestimmung des Korrekturfaktors mit einem Fehler behaftet. Dieser ergibt sich

aus der Abschätzung durch Mittelwertbildung (siehe Anhang B.1). Eine andere Ursache liegt in der Bestimmung des Abstandes zwischen Detektor und Aktivität bei den ausgedehnten Proben. Denn bei den Messungen müssen natürlich Messungen in gleichem Abstand verglichen werden.

Die Größe dieser beiden Fehlerquellen sind in Anhang B.1 und B.2 abgeschätzt. Für den Korrekturfaktor ergibt sich dort ein maximaler Fehler von 20 %. Eine realistische Abschätzung des Fehlers für den Abstand liegt zwischen 20 und 30 %.

Bei der Betrachtung der Tabelle 3.1 wird ein Problem des Eindampfprozesses ersichtlich. Es ist ein großer Anteil der Aktivität, also von der KBr-Lösung, beim Eindampfen im Teflontiegel und der Pipettorspitze verblieben und ebenso auf die Teflonunterlage gelangt. In dem Teflontiegel kann KBr eintrocknen und somit ^{77}Br verbleiben, wenn der richtige Zeitpunkt zur Übernahme der KBr-Lösung in den Transferpipettor verpaßt wird. Wenn das KBr wieder eingewässert wird, kann dann der Fall eintreten, daß das KBr nicht vollständig abgelöst wird. Ebenso kann dann beim Auftropfen der KBr-Lösung auf die Goldfolie etwas KBr-Lösung auslaufen.

Diese Verteilung der Aktivität auf die verschiedenen Komponenten ist auf technische Probleme beim Eindampfprozeß zurückzuführen. Der hier vorgestellte Eindampfprozeß ist bei einem der ersten Experimente aufgenommen worden. Bei den nachfolgenden Versuchen ist dieses Eindampfen deutlich verbessert worden. Hier ist jedoch dieser Versuch dargestellt, da bei den übrigen Experimenten nicht alle am Eindampfprozeß beteiligten Komponenten vermessen worden sind.

Aus der Messung ist jedoch deutlich ersichtlich, daß alles ^{77}Br im KBr gebunden bleibt und nicht als Gas frei wird. Dies entspricht der im Kapitel 2.3.2 angegebenen Tribromidreaktion.

3.3 Ausbeute der Implantation

Die Separation ist wie in Kapitel 2.5 beschrieben durchgeführt worden. Im folgenden wird gezeigt, ob sie wie gewünscht abgelaufen ist, daß heißt ob das Brom aus dem auf der Goldfolie aufgetrockneten KBr im Ofen der Ionenquelle ausdampft und so die Separation möglich wird.

Dazu ist die Stopperfolie des Isotopenseparators vermessen worden, da in diese das ^{77}Br implantiert worden. Das Spektrum der Stopperfolie ist in Abbildung 3.2 gezeigt.

Im Spektrum sind deutlich die starken Linien des ^{77}Br bei 239 keV und 520 keV erkennbar. Folglich sind die Separation und Implantation des ^{77}Br erfolgreich durchgeführt worden.

Die Ausbeute der Implantation wird auf zwei verschiedene Weisen bestimmt, zum einen auf die in Kapitel 2.5 angegebene Weise direkt am Isotopenseparator

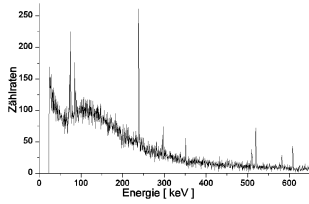


Abbildung 3.2: Energiespektrum der Stopperfolie aus dem Isotopenseparator, in die das ^{77}Br implantiert ist. Die Messung erfolgte 91 Stunden nach Bestrahlungsende, Meßdauer 1 Stunde.

über den Massenvergleich (eingebrachtes KBr (m_{KBr}) und in der Blendenebene erhaltenes ^{79}Br). Zum anderen wird die totale Ausbeute aus dem Vergleich der gemessenen Aktivitäten auf der Goldfolie und der implantierte Folie ermittelt.

Aus dem Massenvergleich wurde eine Ausbeute von 0,4 - 0,6 % für die ^{77}Br Implantation erhalten, aus den Aktivitätsmessungen ergaben sich 0,2 %. Diese zuletzt genannte Ausbeute ist im nachfolgenden Abschnitt mit den auf gleiche Weise bestimmten Ausbeuten der anderen am Gesamtprozeß beteiligten Teilprozesse (Destillation, Eindampfprozeß) zusammengefaßt und so ist dann die Gesamtausbeute ermittelt.

Um die Effizienz mit denen anderer Implantationen, z.B. der häufig durchgeführten ^{82}Br Implantation, vergleichen zu können, müssen die auf der Massenbetrachtung beruhenden Werte verglichen werden. Diese Bestimmung hat jedoch einen relativ großen Fehler. Zum einen in der Menge des eingebrachten KBr (m_{KBr}), denn dort werden 3 mg angegeben². Im vorherigen Abschnitt ist jedoch schon deutlich geworden, daß beim Eindampfprozeß nicht quantifizierbare Verluste an KBr auftreten können, so daß die tatsächlich eingebrachte Menge nicht bekannt ist. Außerdem wird vor der Durchführung der Separation der Isotopenseparator eingestellt. Dabei werden in den Ofen der Ionenquelle einige Körner KBr eingebracht. Der dabei im Ofen verbleibende Rest an KBr ist unbekannt.

Bisher ist die Effizienz, die man bei den oft durchgeführten ^{82}Br Implantationen (mit der alten Quelle) erreicht hat, noch nicht wieder erreicht worden. Bei ^{82}Br wurden Effizienzen einer großen Schwankungsbreite von 0,8 bis 3 % erhalten. In den zwei bisher erfolgreich durchgeführten ^{77}Br Implantationen sind, wie bereits erwähnt, elementspezifische Effizienzen von 0,4 - 0,6 % erreicht worden.

² 3 mg ist die in der zweiten Waschflasche befindliche Menge an KBr .

Da es bislang keinen Anlaß zu der Annahme gibt, daß sich das ^{77}Br bei der Implantation anders verhält als das ^{82}Br , ist das Leistungsvermögen des Isotopenseparators bisher also noch nicht ausgeschöpft. Im Vergleich dazu ist auch die Effizienz für die sehr häufig durchgeführte Indiumimplantation mit ^{111}In zu sehen, die ebenfalls eine hohe Schwankungsbreite im Bereich von 2 bis 4 % hat.

Ursache der geringen Ausbeute bei der ^{77}Br Implantation sind die technischen Probleme mit der neuen Ionenquelle, die bereits in Kapitel 2.5 erwähnt worden sind. Nach mehreren Tests im Umgang mit der neuen Quelle und weiteren Verbesserungen sollten daher im günstigsten Fall Effizienzen von bis zu 10 % erreichbar sein. Auf jeden Fall dürfte aber eine Steigerung auf 1 % erreicht werden.

Die beiden bisher durchgeführten Implantationen sind außerdem vorzeitig beendet worden. Bei der ersten Implantation war es das Ziel zu sehen, ob eine Separation überhaupt möglich ist. Da die Implantationen mit einem recht großen Zeitaufwand verbunden sind (beim Zeitpunkt des Abbruchs, lief die Separation schon 10 Stunden), wurde vor Erreichen der maximalen Ausbeute die Implantation beendet. Die zweite Implantation mußte leider aufgrund eines technischen Defektes der Ionenquelle abgebrochen werden.

3.4 Ausbeute des gesamten Verfahrens

Die gesamte Ausbeute der ^{77}Br Implantation setzt sich aus den Komponenten Destillationsausbeute, Eindampfausbeute und Implantationsausbeute zusammen. In der untenstehenden Tabelle 3.2 sind die Ausbeuten für typische Messungen dargestellt.

| Prozeß | typische erreichte Ausbeute |
|--|-----------------------------|
| Destillation ($\text{As}_2\text{O}_3(^{77}\text{Br}) \longrightarrow \text{KBr-Lösung}$) | 50 % |
| Eindampfprozeß ($\text{KBr-Lösung} \longrightarrow \text{KBr auf Goldfolie}$) | 50 % |
| Implantation ($\text{KBr auf Goldfolie} \longrightarrow \text{implantierte Folie}$) | 0,2 % |
| Gesamtprozeß ($\text{As}_2\text{O}_3(^{77}\text{Br}) \longrightarrow \text{implantierte Folie}$) | 0,05 % |

Tabelle 3.2: Tabelle der typischen Ausbeuten in der gesamten Durchführung. Die Werte der einzelnen Prozesse ergeben sich jeweils aus Vergleich der Energiespektren, wie sie in den vorherigen Abschnitten geschildert sind.

Deutlich erkennt man in der Tabelle, daß die Gesamtausbeute von der Implantationsausbeute dominiert wird. Daher ist es zur Steigerung der Gesamtausbeute notwendig, diesen Teil des Gesamtprozesses entscheidend zu verbessern. Daß dieses möglich sein sollte, ist bereits in Abschnitt 3.3 diskutiert worden.

Durch eine weitere Verbesserung des Eindampfprozesses und der Destillation hingegen läßt sich die Gesamtausbeute nur in geringem Maße vergrößern. Der Verlust der Ausbeute in der Destillation ergibt sich nicht dadurch, daß bei der Destillation nicht alles ^{77}Br ausdestilliert. Er erklärt sich zum einen durch den Prozeß, daß sich das Brom gerne an das in der Glasverbindung befindliche Wasser anlagert. Aus dem Grunde ist die Verbindung zwischen Destillationskolben und der zweiten Waschflasche auch möglichst kurz gehalten. Zum anderen kann die in dem Glasfilter der zweiten Waschflasche befindliche KBr-Lösung nicht einfach ausgeschüttet werden. Aufgrund der Strahlenbelastung sind auch keine größeren Auslösearbeiten durchführbar. Eine Möglichkeit, diesen Verlust zu verringern, liegt darin, keine Glasfilter zu verwenden und ein schlechteres Einwaschen in Kauf zu nehmen. Diese Möglichkeit ist bislang nicht getestet worden, da die daraus resultierende Verbesserung keine deutliche Steigerung der Gesamtausbeute zur Folge hat. Das Hauptaugenmerk sollte auf der Verbesserung der Implantation liegen, da hier die Gesamtausbeute um eine Größenordnung gesteigert werden kann.

Kapitel 4

Zusammenfassung und Ausblick

Es ist im Rahmen dieser Diplomarbeit zum ersten Mal gelungen, am Bonner Isotopenseparator ^{77}Br zu implantieren. Dabei ist durch die Auswahl der Träger-substanz Kaliumbromid ein Material gewählt worden, das eine Separation des Brom ermöglicht.

Die Produktion des ^{77}Br ist erfolgreich am Bonner Isochronzyklotron durch die Reaktion $^{75}\text{As} (\alpha, 2n) ^{77}\text{Br}$ realisiert worden. Dabei ist durch die Wahl, Arsen-trioxid als Targetmaterial zu verwenden, ein Material ausgewählt worden, das eine Trennung von ^{77}Br und As_2O_3 durch Destillation erlaubt.

Die dazu aufgebaute Destillationsanlage ist getestet worden und zeigt im Betrieb eine zufriedenstellende Ausbeute. Das nach der Destillation in einer Vorlage aus wässriger Kaliumbromidlösung befindliche ^{77}Br muß in eine trockene Form gebracht werden, um in den Ofen des Isotopenseparators eingebracht werden zu können. Dazu wird die KBr-Lösung auf eine Goldfolie eingetrocknet.

Um dieses Verfahren zur Herstellung von realen PAC-Proben mit ^{77}Br als Sondenkern nutzen zu können, muß die Möglichkeit geschaffen werden, größere Aktivitäten zu verarbeiten. Dazu muß die Anlage im Hinblick auf den Strahlenschutz noch verbessert werden.

Im derzeitigen Stadium wird die Gesamtausbeute des Verfahrens durch die Implantation dominiert. Effizienzsteigerungen sollten deshalb primär an diesem Punkt durchgeführt werden. Dazu muß insbesondere die Ausbeute der neuen Ionenquelle im Rahmen weiterer Tests vergrößert werden.

Anhang A

Zerfallsschema des ^{77}Br

Auf der folgenden Seite ist das komplette Zerfallsschema des ^{77}Br dargestellt, da damit die Identifizierung der Linien in den verschiedenen aufgenommenen Spektren erfolgt.

Zu erkennen sind hier auch die beiden starken Linien des ^{77}Br . Es handelt sich dabei um die 520 keV Linie (22,4 %), an der alle Untersuchungen vorgenommen worden sind, vom 520,58 keV Niveau auf den Grundzustand des ^{77}Se sowie die 239 keV (23 %) Linie vom 238,95 keV Niveau ebenfalls auf den Grundzustand des ^{77}Se .

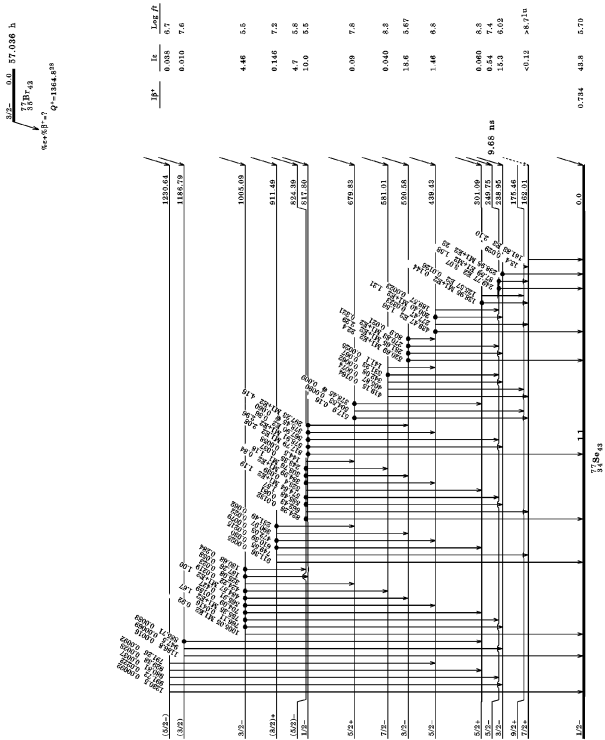


Abbildung A.1: Komplettes Zerfallschema des Übergangs ^{77}Br nach ^{77}Se [Nucl89]. Es dient zur Identifizierung der verschiedenen Linien, die bei den Messungen mit einem Germaniumdetektor in den dabei aufgenommenen γ -Energiespektren beobachtet werden.

Anhang B

Fehlerabschätzung

B.1 Fehlerabschätzung bei Flüssigkeitsmessungen

Um die durchgeführten Messungen der flüssigen Proben mit denen anderer Proben vergleichen zu können, muß der dabei gemachte Fehler in den Zählraten abgeschätzt werden.

Der Fehler bei den Messungen der Flüssigkeiten resultiert aus der Selbstabsorption der Strahlung. Daher wird bei den Messungen eine zu geringe Zählrate bestimmt. Der Effekt ist dabei natürlich von der Dichte der Flüssigkeit abhängig. Das bedeutet, die unterschiedlichen Substanzen (Chromschwefelsäure und Wasser) müssen separat betrachtet werden. Da in der wässrigen KBr-Lösung nur ein sehr geringer Anteil an KBr enthalten ist, unterscheidet sich die Dichte nicht von der des Wassers. Dies gilt auch für die KOH-Lösung. Daher sind nur Chromschwefelsäure und Wasser betrachtet worden.

Es sind bei den Messungen zwei verschiedene Flaschengrößen verwandt worden, einmal $\varnothing = 3,5$ cm und einmal $\varnothing = 4,5$ cm. Für beide Größen erfolgt eine Abschätzung des Fehlers.

Die Abschätzung für die Wassermessungen erfolgt zum einen mit Hilfe eines Nachschlagewerkes [Philips], in dem die Transmission von Photonen in verschiedenen Materialien, unter anderem eben auch in Wasser, enthalten ist. Dort kann die Transmission T_x für eine bestimmte Dicke x an Wasser entnommen werden. Im hier vorliegenden Fall ist die Quelle jedoch in der gesamten Flüssigkeit gleichmäßig verteilt. Die jetzt geltende Transmission (T_{gl}) wird durch den Mittelwert abgeschätzt. Es gilt:

$$T_{gl} = 1 - \frac{T_0 - T_x}{2} = \frac{1 + T_x}{2}$$

Dabei bezeichnet T_0 die Transmission in der Dicke $x = 0$, also ohne Absorption, so daß dafür $T_0 = 1$ gilt. Die so erhaltenen Werte sind in der Tabelle B.1 zusammengefaßt. Zum anderen sind die Werte für Wasser und Chromschwefelsäure experimentell ermittelt worden.

| Flaschendicke | Transmission (T_x) | | |
|---------------|---|--------------|-----------------------------------|
| | $H_2O_{[Philips]}$ | H_2O_{exp} | Chromschwefelsäure _{exp} |
| 3,5 cm | 0,70 | 0,71 | 0,57 |
| 4,5 cm | 0,62 | 0,65 | 0,49 |
| | Transmission für gleichmäßig verteilten Strahler (T_{gl}) | | |
| 3,5 cm | 0,85 | 0,855 | 0,785 |
| 4,5 cm | 0,81 | 0,823 | 0,745 |

Tabelle B.1: Bestimmung des Transmissionskoeffizienten für gleichmäßig in einer Flüssigkeit (Wasser oder Chromschwefelsäure) verteilte Strahler. Dabei sind die Werte $H_2O_{[Philips]}$ aus dem Nachschlagewerk entnommen, die anderen Werte sind aus dem geschilderten Experiment mit der ^{22}Na Quelle gewonnen.

Die in der Tabelle B.1 angegebenen experimentellen Daten sind durch die im Folgenden geschilderte Messung gewonnen. Eine Natriumquelle (^{22}Na) wird einmal direkt vermessen und einmal hinter einem Fläschchen mit Flüssigkeit stehend. Es wird der β^+ -Strahler ^{22}Na verwendet, da seine Strahlung mit 511 keV nahe bei der Energie der betrachteten 520 keV Linie des ^{77}Br liegt und somit für die Abschätzung geeignet ist, denn unterschiedliche Energien werden unterschiedlich absorbiert und auch vom Detektor registriert. Die Meßgeometrie ist in Abbildung B.1 gezeigt.

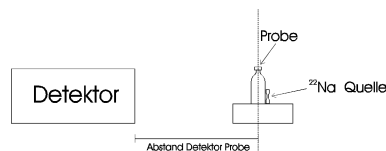


Abbildung B.1: Meßgeometrie für die Messungen zur Fehlerabschätzung bei den Flüssigkeitsmessungen

Ein Vergleich der aus [Philips] und dem Experiment gewonnenen Werte für Wasser zeigt eine sehr gute Übereinstimmung der bestimmten Transmissionswerte. Die in den Messungen erhaltenen Zählraten müssen also immer noch mit einem Korrekturfaktor (k_{sa}) für die Selbstabsorption multipliziert werden.

Die Korrekturfaktoren sind in Tabelle B.2 zusammengestellt.

| Medium | Flaschendicke x | Korrekturfaktor k_{sa} |
|--------------------|-----------------|--------------------------|
| Wasser | 3,5 cm | 1,18 |
| Wasser | 4,5 cm | 1,22 |
| Chromschwefelsäure | 3,5 cm | 1,27 |
| Chromschwefelsäure | 4,5 cm | 1,34 |

Tabelle B.2: Zusammenstellung der Korrekturfaktoren für die Selbstabsorption in Flüssigkeiten

Diese Korrekturfaktoren sind natürlich mit einem Fehler behaftet, denn der Fehler durch die Mittelwertabschätzung ist nicht bekannt. Er kann nur grob nach oben abgeschätzt werden durch die Betrachtung der maximalen Korrekturfaktoren k_{sa}^{max} . Diese sind durch die Transmissionskoeffizienten T_x gegeben. In Tabelle B.3 sind diese Werte zusammengestellt.

| Medium | Flaschendicke x | maximaler Korrekturfaktor k_{sa}^{max} | Fehler bezogen auf k_{sa} |
|--------------------|-----------------|--|-----------------------------|
| Wasser | 3,5 cm | 1,42 | 20 % |
| Wasser | 4,5 cm | 1,57 | 29 % |
| Chromschwefelsäure | 3,5 cm | 1,75 | 38 % |
| Chromschwefelsäure | 4,5 cm | 2,04 | 52 % |

Tabelle B.3: Maximaler Fehler des Korrekturfaktors

B.2 Fehlerabschätzung für ausgedehnte Körper

Die Größe des Fehlers, der durch die Messung der ausgedehnten Körper (vor allem des Eindampfzubehörs) gemacht wird, wird im Folgenden am Beispiel des großen Teflontiegels (Abb. 2.9) abgeschätzt. Der Fehler wird durch die Unsicherheit im Abstand zwischen dem Detektor und der Aktivität bestimmt.

Der Tiegel befindet sich zur Messung mit der Öffnung auf den Detektor hin ausgerichtet. Der Abstand ist dann nur ungefähr durch die gedachte Position der

maximalen Aktivität bestimmt. Diese Position kann am Boden des Tiegels sein, aber auch am Rand darüber befindlich. Durch die Größe des Tiegels ist so ein Fehler in der Messung des Abstandes von einigen Zentimetern möglich.

Um eine Größenordnung des Fehlers zu gewinnen, sind in der Tabelle B.4 die Zählraten aus Tabelle 3.1 auf andere Abstände umgerechnet worden.

| Abstand | Zählrate | Unterschied zur Messung |
|---------|----------|-------------------------|
| 12 cm | 1348 | 0 % |
| 12,5 cm | 1242 | 8 % |
| 13 cm | 1149 | 15 % |
| 14 cm | 990 | 27 % |
| 15 cm | 863 | 36 % |
| 11,5 cm | 1468 | 9 % |
| 11 cm | 1604 | 19 % |
| 10 cm | 1941 | 44 % |
| 9 cm | 2396 | 78 % |

Tabelle B.4: Abschätzung des Fehler bei der Messung ausgedehnter Gegenstände.

In der Tabelle ist zu erkennen, daß schon bei einem um 2 cm zu klein bemessenen Abstand der Fehler in der Zählrate bei fast 30 % liegt. Gerade bei dem großen Tiegel ist ein Fehler in dieser Größe nicht unrealistisch.

Auch bei den anderen Messungen ist ein falsch angenommener Abstand in dieser Größenordnung realistisch. Bei der Teflonunterlage und der Pipettorspitze ist ebenfalls nicht klar, wo sich die Aktivität genau befindet.

Bei der Messung der Goldfolie ergibt sich trotz der Konzentration auf einen recht kleinen Bereich ebenfalls eine - wenn auch kleinere - Unsicherheit im Abstand zum Detektor. Denn die Folie befand sich zum Transport und dann auch während der Messung in einem kleinen Plastikdöschen, das mit einem Papiertuch ausgelegt war. Durch diese Rutschsicherung mittels Tuch ist die genaue Position der Folie nicht zu erkennen.

Tabellenverzeichnis

| | | |
|-----|---|----|
| 1.1 | Eigenschaften des Sondenkerns $^{77}\text{Br}(^{77}\text{Se})$ | 10 |
| 2.1 | Reaktionen zur Erzeugung von ^{77}Br | 17 |
| 2.2 | Leistungsbereich des Bonner Zyklotron | 17 |
| 2.3 | Ausbeutevergleich der ^{77}Br Produktion theoretisch-experimentell . | 19 |
| 2.4 | Bestrahlungsprodukte | 23 |
| 2.5 | Meßprotokoll | 28 |
| 3.1 | Ausbeute des Eindampfprozesses | 40 |
| 3.2 | Ausbeute des Gesamtprozesses | 43 |
| B.1 | Transmissionskoeffizienten für Flüssigkeitsmessungen | 49 |
| B.2 | Korrekturfaktoren für Flüssigkeitsmessungen | 50 |
| B.3 | Maximaler Korrekturfaktorfehler für Flüssigkeitsmessungen | 50 |
| B.4 | Fehlerabschätzung für ausgedehnte Gegenstände | 51 |

Abbildungsverzeichnis

| | | |
|------|--|----|
| 1.1 | Ausschnitt aus dem Periodensystem der Elemente | 6 |
| 1.2 | Ausschnitt aus dem Zerfallsschema des ^{77}Br (^{77}Se) | 10 |
| 1.3 | Tiefenprofil ^{77}Br -Ionen bei einer 33 MeV Bestrahlung | 12 |
| 1.4 | Leerstellenprofil bei einer 33 MeV Bestrahlung | 12 |
| 1.5 | Tiefenprofil ^{77}Br -Ionen bei einer 60 keV Implantation | 14 |
| 1.6 | Leerstellenprofil bei einer 60 keV ^{77}Br Implantation | 14 |
| 2.1 | Schematische Darstellung des Hochstromplatzes | 19 |
| 2.2 | Targethalterkopf | 20 |
| 2.3 | Target | 20 |
| 2.4 | Einpreßvorrichtung | 21 |
| 2.5 | Anregungskurven der Reaktionen $^{75}\text{As}(\alpha,2n)^{77}\text{Br}$, $^{75}\text{As}(\alpha,3n)^{76}\text{Br}$ | 23 |
| 2.6 | Energiespektrum des bestrahlten As_2O_3 Targets | 24 |
| 2.7 | Destillationsaufbau | 26 |
| 2.8 | Destillations Protokoll | 29 |
| 2.9 | Großer Teflontiegel | 32 |
| 2.10 | Goldfolie mit Teflonunterlage | 33 |
| 2.11 | Schematischer Aufbau des Bonner Isotopenseparators | 34 |
| 2.12 | Massenauflösung des Isotopenseparators | 35 |
| 2.13 | Tiefenprofil ^{77}Br -Ionen bei einer 160 keV Implantation | 36 |
| 2.14 | Leerstellenprofil bei einer 160 keV ^{77}Br Implantation | 36 |
| 3.1 | Wirkungsweise der Destillation | 39 |

| | | |
|-----|--|----|
| 3.2 | Energiespektrum der implantierten Folie | 42 |
| A.1 | Komplettes Zerfallsschema $^{77}\text{Br}(^{77}\text{Se})$ | 47 |
| B.1 | Meßgeometrie | 49 |

Literaturverzeichnis

- [Bier80] J.P. Biersack, L.G. Haggmark, A Monte Carlo Computer Program for the transport of energetics ion in amorphous targets, Nuclear Instr. Meth. 174, pp 257, 1980
- [Bles82] G. Blessing, R. Weinreich, S.M. Qaim, G. Stöcklin, Jülich, Production of ^{75}Br and ^{77}Br via the $^{75}\text{As} (^3\text{He},3\text{n})^{75}\text{Br}$ and $^{75}\text{As} (\alpha,2\text{n})^{77}\text{Br}$ Reactions using Cu_3As - alloy as a High - Current Target Material, Int. J. of App. Physics, Vol 33, pp 333, 1982
- [Chad88] D.J. Chadi, K.J. Chang, Phys. Rev. Lett. Vol. 60, pp 2187, und Phys. Rev. Lett. Vol. 61, pp 873, 1988
- [Dabr92] J. Dabrowski, M. Scheffler, Mat. Sci. For 83-87, pp 735, 1992
- [Fire96] R.B. Firestone, V.S. Shirly, Table of Isotopes, eight edition, Vol 1, 1996
- [Frau65] H. Frauenfelder, R.M. Steffen, in Alpha- Beta- and Gamma-Ray Spectroskopoy, Vol 2, pp 997, Siegbahn, Uppsala, 1965
- [Frei77] K. Freitag, Dissertation Bonn, 1977
- [Frei96] K. Freitag, Private Mitteilung, 1996
- [Frie94] P. Friedsam, Diplomarbeit Bonn, 1994
- [Helu70] F. Helus, London, Preparation of carrier - free Bromine -77 for medical use, Radiochem. Radioanal. Letters 3/1/, pp 45, 1970
- [Holl85] A.F. Holleman, E. Wiberg, Lehrbuch der Anorganischen Chemie, 91. - 100. Auflage, 1985
- [Home96] Homepage ISOLDE, www.cern.ch/ISOLDE, 1996
- [ISKP69] K. Freitag, C. Heising, F.J. Kappes, W. Schaub, Jahresbericht Institut für Strahlen- und Kernphysik, Universität Bonn, pp.62, 1969/70

- [ISKP93] Research Report, Institut für Strahlen- und Kernphysik/ Institut für Theoretische Kernphysik, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn, 1993
- [Jans79] A.G.M. Janssen, R.L.P. van den Bosch, J.J.M. De Goeij, H.M.J. Theelen, Eindhoven, The Reactions ^{77}Se (p,n) and ^{78}Se (p,2n) as Production Routes for ^{77}Br , Int. J. of App. Radiation and Isotopes, 1979
- [Kinc55] G.H. Kinchin, R.S. Pease, Rept. Progr. Phys 18, 1, 1955
- [Klei60] J. Kleinberg, G.A. Cowan, Los Alamos, The Radiochemistry of Fluorine, Chlorine, Bromine and Iodine, 1960
- [Lind95] M. Lindroos et al, Tilted foil polarization of radioactive ions, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Vol. 361, pp 53, 1995
- [Marq96] J. Marques, Private Mitteilung, 1996
- [Mohs88] M. Mohsen, F. Pleiter, Hyperfine Interactions Vol 39, pp 123, 1988
- [Noza78] T. Nozaki, M. Iwamoto, Y. Itoh, Japan, Production of ^{77}Br by various Nuclear Reactions, Int. J. of Applied Radiation and Isotopes, Vol. 30, pp 79 - 83, 1978
- [Nucl89] Nuclear Data Sheets, Volume 57, Number 3, p 235, 1989
- [Nunn75] A.D. Nunn, S.L. Waters, London, Target Materials for the Cyclotron Production of Carrier-free ^{77}Br , Int. J. of Applied Radiation and Isotopes, Vol 26, pp 731, 1975
- [Philips] Philips Datenblätter, Transmission of high-energy photons through various materials, Eindhoven
- [Rohr96] G. Rohrlack, Dissertation Bonn, 1996
- [Scha92] G. Schatz, A. Weidinger, Nukleare Festkörperphysik, Teubner-Verlag, Stuttgart, 1992
- [Wehn93] M. Wehner, Diplomarbeit Bonn, 1993
- [Wehn95] M. Wehner, P. Friedsam, R. Vianden, S. Jahn, D. Forkel-Wirth, PAC-investigations of the donor-defect interaction in III-V compound semiconductors with the probe ^{77}Br (^{77}Se), Materials Science Forum, Vol 196-201, pp 1419, 1995
- [Wehn96] M. Wehner, R. Vianden, D. Forkel-Wirth, S.G. Jahn, Application of the PAC probe ^{77}Br (^{77}Se) for the study of donor-defect complexes in III-V compound semiconductors, Hyperfine Interactions (C), Vol 1, pp 215, 1996

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen danken, die an der Entstehung der Arbeit beteiligt waren und mich auf ihre Art unterstützt haben.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Priv. Doz. Dr. R. Vianden für die gute Betreuung und ständige Ansprechbarkeit im Laufe des vergangenen Jahres.

Herrn Prof. Dr. M. Forker danke ich für die Übernahme des Korreferats.

Bei den Mitgliedern der Arbeitsgruppe bedanke ich mich für die gute Atmosphäre, die tatkräftige Unterstützung auch in den schwierigen Momenten der Arbeit und ihre ständige Bereitschaft, meine Fragen zu beantworten. Besonders danke ich Maria Wehner und Jörn Bartels sowie Peter Friedsam und Christoph von Nathusius.

Der Mannschaft des Bonner Isotopenseparators, Frau S. Engelhard, Herrn Dr. K. Freitag, Herrn S. Hinderlich, Herrn W. Schaub, gilt mein besonderer Dank, denn ohne ihren Einsatz wäre die Arbeit in der vorliegenden Form nicht möglich gewesen. Alle haben auf ihre Weise einen besonderen Anteil daran gehabt.

Für ihren Einsatz während der Strahlzeiten danke ich den Operateuren des Bonner Zyklotrons.

Den Mitarbeitern der Feinmechanikwerkstatt danke ich für die Anfertigung einiger Teile. Stellvertretend sei hier Herr Kotz genannt, der immer ein offenes Ohr für mich hatte.

Cornelia Noll danke ich für ihre Hilfsbereitschaft in der Anfangsphase der Arbeit.

Christoph Deckers danke ich für die Durchsicht der Manuskripte zu dieser Arbeit und die konstruktive Kritik sowie für die moralische Unterstützung während dieser Zeit.

Alle anderen, die mir während dieser Zeit auf die eine oder andere Weise behilflich gewesen sind, habe ich nicht vergessen und bedanke mich auch bei ihnen.

Zuletzt danke ich allen, die mich im Laufe des Studiums freundschaftlich begleitet haben.