

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

LSO Szintillationskristalle für PAC Applikationen

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

von
Riccardo Valentini

Bonn, März 2005

Als ich überlegte, wieviel verschiedene Ansichten über die gleiche Sache es geben kann, deren jede einzelne ihren Verteidiger unter den Gelehrten findet, und wie doch nur eine einzige davon wahr sein kann, da stand es für mich fest:
Alles, was lediglich wahrscheinlich ist, ist wahrscheinlich falsch.
(René Descartes)

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

Referent: Privatdozent Dr. Reiner Vianden

Koreferent: Prof Dr. Karl Maier

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

Bonn, den 18. März 2005

Inhaltsverzeichnis

1. Szintillationsdetektoren	3
1.1 Eigenschaften	3
1.1.1 Szintillationsmechanismus	6
1.1.2 Wichtigste Eigenschaften eines Szintillators	7
1.2 Klassische anorganische Szintillatoren	9
1.2.1 Natriumiodid (NaI)	9
1.2.2 Bariumfluorid (BaF ₂)	10
1.3 Neue anorganische Szintillatoren	12
1.3.1 Lutetium-Oxyorthosilikat (LSO)	12
1.3.2 Lutetium-Yttrium-Oxyorthosilikat (LYSO)	18
2. Realisierung der Szintillationskristalle	23
2.1 Wahl des Materials	23
2.2 Sägevorrichtung	26
3. Erste Messungen	31
3.1 Energie	31
3.2 Zeit	36
Basic-Programm für die Steuerung des Schrittmotors	42
Literaturverzeichnis	45

Einleitung

In der nuklearen Festkörperphysik werden – wie der Name schon sagt – kernphysikalische Messmethoden benutzt, um Eigenschaften von Festkörpern zu untersuchen. Eine bewährte Methode neben beispielsweise dem Mößbauer-Effekt, der Magnetischen Kernresonanz (*Nuclear Magnetic Resonance*, **NMR**), der Rutherford-Rückstreuung (*Rutherford Backscattering*, **RBS**) oder der Positronenvernichtung ist die gestörte γ - γ -Winkelkorrelation (*Perturbed Angular Correlation*, **PAC**), bei der man radioaktive Sonden in einem Festkörper einbringt, um dann, anhand ihrer Gamma-Ausstrahlcharakteristik, Kristallfelder zu untersuchen. Es werden Sonden benutzt, bei deren Zerfall im Tochterkern eine γ - γ -Kaskade bevölkert wird. Der Zwischenzustand der Kaskade (isomeres Niveau) darf keine zu lange Lebensdauer besitzen, weil dann der Untergrund durch zufällige Koinzidenzen in den aufgenommenen Spektren dominiert. Andererseits ist die Lebensdauer nach unten hin durch die Zeitauflösung der Apparatur begrenzt.

Die Zeitauflösung einer γ - γ -Winkelkorrelationsapparatur hängt von vielen Parametern ab, primär aber wird sie von den Eigenschaften der eingesetzten Szintillationsdetektoren bestimmt. Es ist also wichtig, möglichst schnelle Szintillatoren einzusetzen. So wurden im Laufe der Zeit viele PAC-Apparaturen von den früher üblichen NaI(Tl)-Szintillationskristallen auf BaF₂ umgerüstet. Bariumfluorid ist deutlich schneller als Natriumiodid und hat zudem eine etwas höhere Ansprechwahrscheinlichkeit durch seine höhere Dichte und größere effektive Kernladungszahl. Die Ansprechwahrscheinlichkeit, aber vor allem die absolute Photopeak-Effizienz, sind wichtig. Eine hohe Effizienz bedeutet, dass auch kleinere Szintillatoren gewählt werden können. Ferner erzeugen so auch schwächere Quell-Aktivitäten noch eine ausreichende Detektorzählrate.

Bei einer γ - γ -Winkelkorrelationsapparatur gewinnt die Energieauflösung erst an Bedeutung, wenn die Gamma-Energien der nachzuweisenden Kaskade klein (< 100 keV) sind oder wenn sie dicht neben störenden Linien liegen. Eine gute Energieauflösung muss auch dann gewährleistet sein, wenn das Zerfallsschema des Sondenkerns sehr viele Linien enthält, insbesondere wenn sie energetisch höher liegen als die der zu messenden γ - γ -Kaskade. Da aber BaF₂, im Gegensatz zu NaI(Tl), eine schlechtere Energieauflösung besitzt, sind PAC-Apparaturen,

die solche Kristalle verwenden, besser für Sonden geeignet, die relativ einfache Spektren haben.

Zur Optimierung einer Apparatur für gestörte γ - γ -Winkelkorrelation durch neue Szintillatoren sollte die Wahl auf einen Szintillator fallen, dessen Energieauflösung der von NaI(Tl) und dessen Zeitauflösung der von BaF₂ möglichst nahe kommt. In der Nuklearmedizin wird für bildgebende Verfahren (z.B. **PET**) stets nach schnelleren und effizienteren Szintillatoren gesucht, damit Patienten weniger Zeit in der Apparatur verbringen und mit kleineren Mengen radioaktiven Materials belastet werden müssen. Hier haben anorganische Szintillationskristalle wie BGO oder GSO Einsatz gefunden. Relativ neu auf diesem Gebiet ist LSO. Es scheint auch für die hier bearbeitete Fragestellung ein vielversprechender Kristall zu sein. Seine Energieauflösung ist deutlich besser als die von BaF₂ und seine Zeitauflösung besser als die von NaI(Tl). Zudem ist die Ansprechwahrscheinlichkeit durch die hohe Dichte und die große effektive Kernladungszahl deutlich größer als bei den meisten heutzutage für PAC-Messungen eingesetzten Szintillationskristallen.

Wir haben uns daher entschlossen, LSO im Rahmen dieser Arbeit auf seine Eigenschaften und seine Tauglichkeit für den Einsatz in einer PAC Vier-Detektor-Anlage zu testen.

Kapitel 1

Szintillationsdetektoren

Zum Nachweis von Gammastrahlung haben sich Szintillationsdetektoren seit einigen Jahrzehnten bewährt. Der erste Strahlungszähler ist wahrscheinlich das Spinthariskop (von *σπιθάρηρας*, griechisch Funken) gewesen, entdeckt 1903 von Sir Williams Crookes, als ihm zufällig etwas Radiumbromid-Pulver auf einen Zinksulfid-Schirm fiel. Um das teure Radiumbromid sorgfältig aufsammeln zu können, nahm er ein Mikroskop zur Hilfe und fand heraus, dass es sich bei der Fluoreszenz des Zinksulfids nicht um ein einheitliches Leuchten handelte; er beobachtete stattdessen diskrete Blitze, jeder einzelne produziert von *einem* Alphateilchen.

Für wissenschaftliche Untersuchungen waren Spinthariskope nicht sehr praktisch in der Bedienung, da das menschliche Auge im Dunkeln die schwachen Funken zählen musste. Doch 1944 erfanden Curran und Baker den Sekundärelektronenvervielfacher (*Photomultiplier Tube*, **PMT**) und so übernahm Elektronik die Registrierung der Lichtblitze. Somit bestehen Szintillationsdetektoren im wesentlichen aus einem Szintillator, der aus der nachzuweisenden Strahlung Lumineszenzlicht erzeugt und einem Sekundärelektronenvervielfacher, der diese Lichtblitze in elektrische Impulse umwandelt.

1.1 Eigenschaften

Als Szintillatormaterial können Edelgase, organische Verbindungen in flüssiger Lösung (z.B. 3 g 2,5-Diphenyloxazol in 1 l Toluol), organische Verbindungen in einem Kunststoff gelöst (z.B. 4 g p-Terphenyl und 0,1 g p-Dephenylstilben in 100 g Polyvinyltoluol), organische Kristalle (z.B. Anthrazen $C_{14}H_{10}$) oder anorganische Kristalle (z.B. ZnS, NaI, BaF₂) verwendet werden. Die Wahl richtet sich nach der Art der Strahlung, die man untersuchen möchte. Handelt es sich um geladene Teilchen, wie Elektronen (e^-), Protonen (p^+) oder Alphateilchen (${}^4_2\text{He}^{2+}$), so wer-

den diese stets über Coulomb-Wechselwirkung registriert; der Szintillator muss nur so dick sein, dass die Teilchen vollständig in ihm abgebremst werden. Beim Nachweis von Neutronen muss die neutrale Strahlung einen definierten Teil oder die ganze Energie im Szintillator an ein ionisierendes Teilchen abgeben. Schnelle und noch energiereichere Neutronen werden hauptsächlich durch Rückstoßprotonen in n-p-Streuung detektiert. Es liegt nahe, dass dafür organische Szintillatoren wegen ihres hohen Wasserstoffgehalts bevorzugt werden. Für den Nachweis thermischer Neutronen sind Kernreaktionen wie (n, γ) oder (n, α) wirksam. Geeignet sind Szintillatoren mit Elementen, die einen hohen Wirkungsquerschnitt für solche Reaktionen haben, z.B. Lithiumiodid mit Europium dotiert (LiI(Eu)). Handelt es sich um Gammastrahlung, so werden im Szintillator – durch Photoeffekt, Comptoneffekt oder Paarbildung – Sekundärelektronen erzeugt, die ebenfalls zu Lumineszenz führen. Demnach werden Szintillatoren mit möglichst hoher Dichte bevorzugt.

Der Sekundärelektronenvervielfacher, der im Allgemeinen in direkter Berührung mit dem Szintillator steht, besteht aus einer Photokathode und einer Reihe von Vervielfachungselektroden, die Dynoden genannt werden. Die jeweils nachfolgende Dynode liegt auf einem etwas höheren Potential als die vorangehende. An der Anode wird dann ein messbarer, zur Energie der einkommenden Strahlung proportionaler Strompuls gemessen. Es ist also für Szintillatoren notwendig, dass sie im Frequenzbereich ihrer Lumineszenz durchsichtig sind, damit auf der Photokathode möglichst viele Elektronen ausgelöst werden können.

Ein homogenes, durchsichtiges Medium hat jedoch die Eigenschaft, das erzeugte Licht umgehend wieder zu absorbieren. Deshalb werden den Szintillatormaterialien in geringen Konzentrationen (ca. 1%) sogenannte Wellenlängenschieber, auch Aktivatoren genannt, beigemischt. Diese haben die Aufgabe, die Fluoreszenz in einen anderen Frequenzbereich zu verschieben, so dass Resorption keine Rolle spielt. Bei anorganischen Kristallen sind das Ionen, wie z.B. Tl^+ , Eu^{2+} oder Ce^{3+} .

Diese Arbeit wird sich auf anorganische Kristalle beschränken, da sie für die Gamm-spektroskopie hauptsächlich in Frage kommen. Flüssige, Plastik- oder auch Gasszintillatoren sind zwar schnell, haben aber ein sehr geringes Ansprechvermögen wegen ihrer geringen effektiven Kernladungszahl (siehe Gleichung 1.1). Um Gammastrahlung nachzuweisen, bräuchte man so große Szintillatoren, dass das wenige in ihnen produzierte Licht kaum aus diesen entweichen könnte.

Bei anorganischen Verbindungen, wie sie in Szintillationskristallen vorkommen, ist es üblich, eine effektive Kernladungszahl Z_{eff} anzugeben. Diese soll die Kernladungszahl der Verbindung wiedergeben als bestünde dieses Molekül aus nur einem Element. Es ist leicht einzusehen, dass eine Verbindung mit höherem Z_{eff} eine höhere Elektronenkonzentration besitzt. Dadurch ist die Wahrschein-

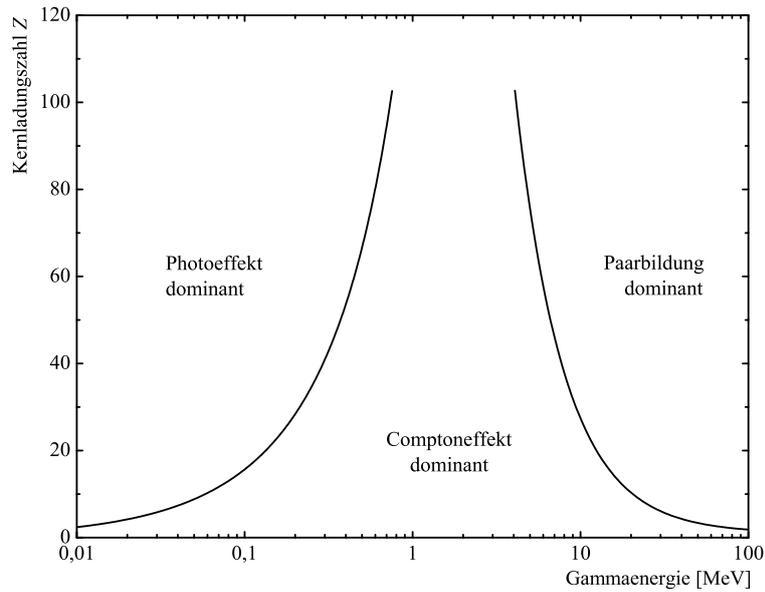


Abbildung 1.1: Die dominanten Bereiche für Photoeffekt, Comptoneffekt und Paarbildung als Funktion der Ordnungszahl Z des Absorbers und der Energie der Gammaquanten

lichkeit des Eintretens des photoelektrischen Effekts schon bei niedrigen Energien größer (siehe Abbildung 1.1). Zur Berechnung der effektiven Kernladungszahl wurde folgende Formel benutzt

$$Z_{\text{eff}}^{3,5} = \sum_i n_i \frac{A_i}{A} \cdot Z_i^{3,5} \quad (1.1)$$

wobei n_i die Anzahl der Atome pro Molekül (stöchiometrische Häufigkeit) des i -ten Elements, A_i die Massenzahl des i -ten Elements und A die Masse des gesamten Moleküls ist [Podgo 03]. Will man die effektive Kernladungszahl von Lu_2SiO_5 berechnen, so geht man folgendermaßen vor: LSO besteht aus zwei $^{174,97}_{71}\text{Lu}$ -Atomen, einem $^{28,09}_{14}\text{Si}$ -Atom und fünf $^{16,00}_8\text{O}$ -Atomen und sein Gesamtgewicht beträgt 458,03 u. Hieraus ergibt sich

$$Z_{\text{eff}} = \left(2 \cdot \frac{174,97}{458,03} \cdot 71^{3,5} + 1 \cdot \frac{28,09}{458,03} \cdot 14^{3,5} + 5 \cdot \frac{16,00}{458,03} \cdot 8^{3,5} \right)^{\frac{1}{3,5}}$$

$$Z_{\text{eff}} = 65,8$$

Also ist die effektive Kernladungszahl von LSO ca. 66 (vergleiche Tabelle 1.1).

1.1.1 Szintillationsmechanismus

Bei anorganischen Kristallen kann man den Szintillationsmechanismus mit Hilfe des Bändermodells erklären. Schaut man sich den Kristall als ganzes an, so werden die sonst diskreten Energieniveaus zu Bändern einer bestimmten Breite. Jedes Band ist mit einer bestimmten Anzahl von Elektronen nach dem Pauliprinzip besetzt. Das höchste noch besetzte Band heißt Valenzband, darüber liegt, getrennt durch eine verbotene Zone, das sogenannte Leitungsband. Fällt nun ionisierende Strahlung auf den Kristall, so können Elektronen vom Valenzband in das Leitungsband gehoben werden; hier sind die Elektronen frei beweglich und können durch den Kristall wandern. Das im Valenzband zurückgebliebene Loch kann ebenfalls durch den Kristall wandern. Durch diese Elektron-Loch-Wanderung ist der Kristall elektrisch leitfähig geworden. Das Elektron kann mit einem Loch rekombinieren und die freiwerdende Energie in Form von Strahlung abgeben.

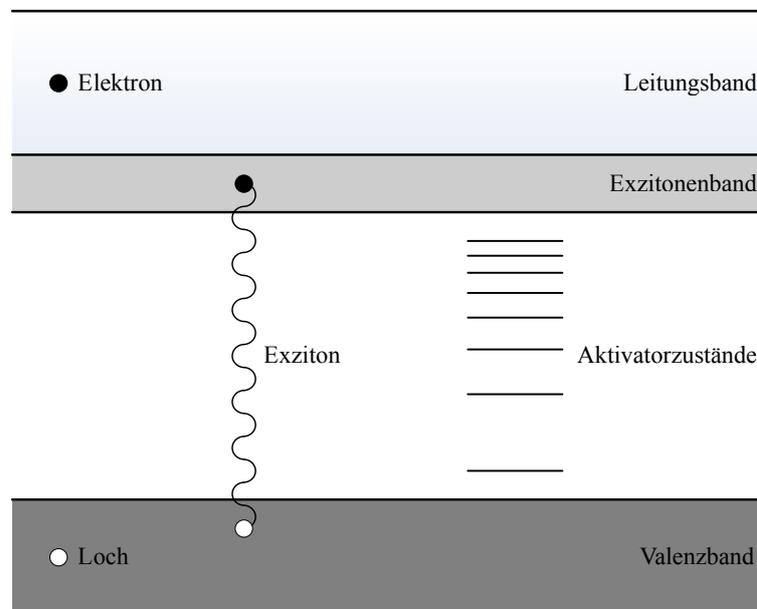


Abbildung 1.2: Im Bändermodell können Elektronen vom Valenzband in das Leitungsband angeregt werden, wo sie frei beweglich sind, oder sie können ein Exziton bilden, das durch den Kristall wandern kann. Durch Aktivatoren werden zusätzlich lokalisierte Energieniveaus erzeugt, in denen sich die Elektron-Loch-Paare oder die Exzitonen abregen können und zwar mit einer anderen Lumineszenzfrequenz, für die der Kristall transparent ist.

Bei manchen Anregungsprozessen erreicht das Elektron aus dem Valenzband nicht das Leitungsband, so dass es elektrostatisch an das Loch gebunden bleibt. Elektron und Loch können also nur gekoppelt durch den Kristall wandern, so als

seien sie ein Wasserstoffatom. Man nennt das Gebilde ein Exziton. Wie ein Wasserstoffatom hat das Exziton verschiedene Anregungszustände. Diese kann man sich als direkt unterhalb des Leitungsbandes, in einem sogenannten Exzitonband, angesiedelt vorstellen. Auch dieser Zustand hat eine gewisse Lebensdauer, bis er dann durch Abgabe der Energie in Form von Strahlung wieder in den Grundzustand übergeht. Die abgestrahlte Energie kann leicht vom Kristallgitter wieder absorbiert werden. Man möchte aber, dass ein möglichst großer Anteil dieser Energie die Photokathode erreicht ohne reabsorbiert zu werden. Dies könnte man durch Änderung der Wellenlänge der abgestrahlten Energie erreichen.

In einem Kristallgitter können Atome an Gitterstellen fehlen, durch Fremdatome ersetzt worden sein oder es können Zwischengitteratome – auch Verunreinigungen – eingebaut sein. Diese Gitterfehler erzeugen zusätzliche Energieniveaus im Bändermodell. Szintillationskristalle werden gezielt mit Fremdatomen dotiert, die als Aktivatoren im Gitter dienen. Diese Aktivatoren erzeugen lokalisierte Energieniveaus zwischen Valenz- und Leitungsband. Wenn nun Elektronen, Löcher und Exziton durch den Kristall diffundieren, können sie auf ein Aktivatorzentrum stoßen und hier ihre Energie abgeben. Das Aktivatorzentrum kann dann seine Energie entweder in Form von Phononen an das Gitter oder durch direkte Emission von Licht abgeben. Die Photonen werden natürlich eine andere Wellenlänge haben als die, die vom Kristall selbst emittiert werden. Deshalb nennt man Aktivatoren auch Wellenlängenschieber.

1.1.2 Wichtigste Eigenschaften eines Szintillators

Lichtausbeute

Die Lichtausbeute ist der Bruchteil der Energie der Primärstrahlung, der in Fluoreszenzlicht umgewandelt wird. Je höher die Lichtausbeute, desto kleiner sind die statistischen Fluktuationen bei der Produktion von Photonen im Kristall und bei der Produktion von Photoelektronen im Sekundärelektronenvervielfacher. Das bedeutet, dass eine höhere Lichtausbeute im Allgemeinen eine bessere Energieauflösung zur Folge hat.

Spektralverteilung des Emissionslichts

Das Fluoreszenzlicht des Szintillators muss im empfindlichen Spektralbereich der Photokathode liegen. Die Schwerpunktwellenlänge seines Spektralbereichs darf nicht zu groß sein, weil sonst bereits bei Zimmertemperatur durch thermische Anregung zu viele Elektronen ausgelöst würden (Dunkelstrom).

Zeitliches Auflösungsvermögen

Für das zeitliche Auflösungsvermögen eines Szintillators sind Anstiegszeit und Zerfallszeit des Szintillationsprozesses ausschlaggebend: Je schneller die maximale Intensität der Szintillation erreicht wird und je schneller die Intensität wieder abgeklungen ist, desto besser ist die zeitliche Auflösung des Szintillators. Die Zerfallskonstante beschreibt die für das Material charakteristische mittlere Lebensdauer τ der angeregten Zustände des Kristallgitters. Beim Übergang in den Grundzustand wird die Energie teilweise in Form von Fluoreszenz abgegeben. Dieses erzeugte Licht klingt typischerweise exponentiell ab. Die Intensität I zur Zeit t ist dann gegeben durch

$$I = I_0 \cdot e^{-\frac{t}{\tau}} \quad (1.2)$$

wobei I_0 die Anfangsintensität ist. Vor allem wenn man gestörte γ - γ -Winkelkorrelationsmessungen (*Perturbed Angular Correlation*, **PAC**) betreiben möchte, ist das zeitliche Auflösungsvermögen eine wichtige Eigenschaft. Dieses limitiert einerseits zu kurzen Zeiten hin die Lebensdauer des Zwischenzustands der γ - γ -Kaskade und andererseits die Frequenz der Präzession des Spins des Sondenkerns. Würde die Zeitauflösung der Apparatur nicht ausreichend sein, so würde die Frequenz im aufgenommenen Spektrum verschwinden und nur noch ein Plateau auftreten.

Ansprechwahrscheinlichkeit

Fallen N_0 Gammaquanten einer bestimmten Energie auf einen Szintillator der Dicke x , dann finden wir hinter dem Kristall nur noch

$$N = N_0 \cdot e^{-\mu x} \quad (1.3)$$

Quanten. Der Abschwächungskoeffizient μ ist also ein Maß dafür, wie lang der mittlere freie Weg eines einfallenden Gammaquants der Energie $E = h\nu$ in dem Szintillatormaterial ist und damit auch ein Maß für die Ansprechwahrscheinlichkeit. Der mittlere freie Weg ist die Dicke x des Materials, bei der die Anzahl der Gammaquanten auf $\frac{1}{e}$ zurückgefallen ist. Der Abschwächungskoeffizient μ ist von vielen Faktoren abhängig; wichtig sind die Energie der einfallenden Strahlung, die Kernladungszahl der Elemente, die Dichte, die Form und die Dicke des Kristalls. Je größer μ ist, desto kleiner ist der mittlere freie Weg und desto größer ist die Ansprechwahrscheinlichkeit des Szintillatormaterials. Ein großes Ansprechvermögen hat verschiedene Vorteile: Einerseits kann man kleinere Kristalle wählen, andererseits wird weniger Compton-Untergrund im Spektrum erzeugt, da die Wahrscheinlichkeit für das Entweichen des Gammaquants nach dem Comptoneffekt kleiner ist. Desweiteren ist der Rückstreupeak kleiner, da hierfür der Comptoneffekt hinter dem Szintillator stattfinden muss.

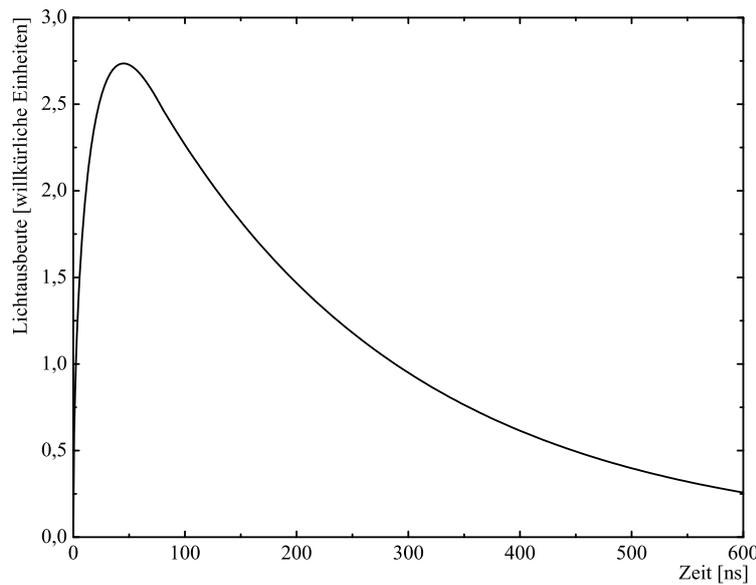


Abbildung 1.3: Zeitlicher Verlauf der Intensität der Lichtausbeute von NaI nach CTI Inc, Tennessee, USA, www.ctimi.com. Die maximale Intensität wird nach ca. 50 ns erreicht, die Zerfallskonstante beträgt 230 ns.

1.2 Klassische anorganische Szintillatoren

1.2.1 Natriumiodid (NaI)

Heutzutage sind die meist benutzten anorganischen Szintillationskristalle Natriumiodid (NaI) und Bariumfluorid (BaF_2). Der Natriumiodid-Einkristall wird bei der Herstellung meistens mit Thallium (Tl) zu ca. 0,2% dotiert. Das Thallium dient, wie bereits erwähnt, als Wellenlängenschieber, um Reabsorption zu vermeiden. Mit $38 \frac{\text{Photonen}}{\text{keV}}$ hat Natriumiodid eine besonders große Lichtausbeute und ist damit ein geeigneter Kristall für die Aufnahme von Gamma-Energiespektren. Ist der Bruchteil der Energie der Primärstrahlung, die in Fluoreszenzlicht umgewandelt wird, relativ groß, so ist auch die Elektronenausbeute an der Photokathode des Sekundärelektronenvervielfachers groß und Fluktuationen, die eine Verschlechterung der Energieauflösung bewirken, spielen eine kleinere Rolle. Bei gut eingestellter Apparatur lassen sich Energieauflösungen von bis zu 8% auf der 662 keV-Linie von ^{137}Cs erreichen.

Ein Nachteil von Natriumiodid ist einerseits die Zeit, die es braucht die angeregten Zustände zu bevölkern, andererseits die relativ große Lebensdauer dieser Zustände. Am zeitlichen Verlauf der Intensität der Lichtemission (siehe Abbildung 1.3) erkennt man, dass das Maximum nach ca. 50 ns erreicht wird. Von da an nimmt die Intensität exponentiell wieder ab. Die Abklingkonstante beträgt

230 ns; in Tabelle 1.1 erkennt man, dass diese relativ groß ist im Vergleich zu anderen Szintillationskristallen. Dieses langsame Auf- und wieder Absteigen der Intensität der Lichtemission limitiert das zeitliche Auflösungsvermögen. Desweiteren ist Natriumiodid hygroskopisch und muss luftdicht verpackt werden. Es lässt sich trotzdem nicht vermeiden, dass mit den Jahren Feuchtigkeit eindringt und den Kristall zersetzt.

1.2.2 Bariumfluorid (BaF_2)

Die spektrale Verteilung des Emissionslichts zeigt (siehe Abbildung 1.4), dass Bariumfluorid zwei Zerfallskomponenten besitzt. Die kurze Komponente hat ihr Emissionsmaximum bei einer Wellenlänge von 220 nm und eine Abklingkonstante von 0,8 ns. Die lange Komponente besitzt eine mittlere Lebensdauer $\tau = 600$ ns, ein Emissionsmaximum bei 310 nm und eine deutlich höhere Intensität, d.h. der Großteil der entstehenden Lumineszenz – in etwa 80% – besitzt eine Wellenlänge von 310 nm.

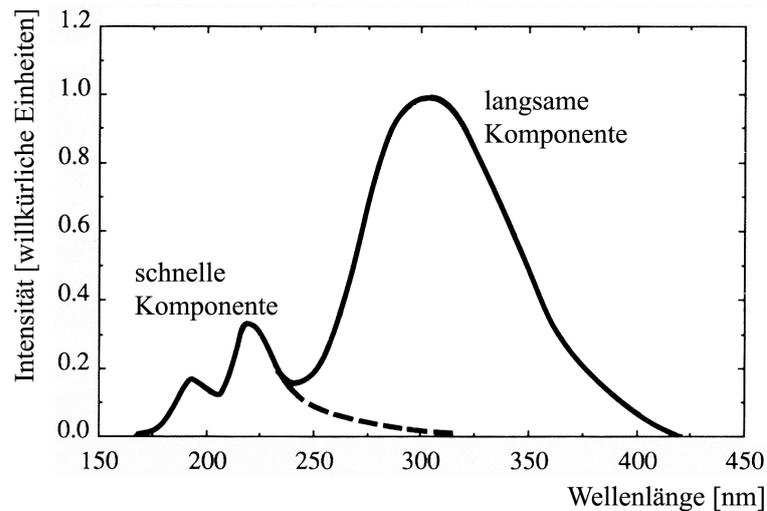


Abbildung 1.4: Spektralverteilung des Emissionslichts von BaF_2 [Saint 92]. Die schnelle Komponente wird als Zeitsignal verwendet, die langsame Komponente als Energiesignal.

Bariumfluorid ist der schnellste bis heute bekannte anorganische Szintillationskristall. Was BaF_2 so schnell macht ist seine kurze Zerfallskomponente: Mit 0,8 ns ist sie fast um einen Faktor 300 kürzer als bei $\text{NaI}(\text{Tl})$. Greift man das schnelle Signal an der neunten Dynode des Sekundärelektronenvervielfachers ab, so kann man zum Beispiel Positronenlebensdauermessungen und Flugzeitmessungen mit einer viel höheren Genauigkeit betreiben als mit anderen Szintillations-

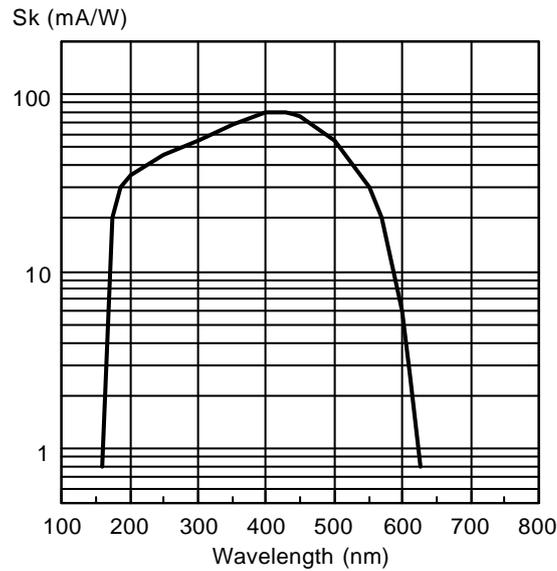


Abbildung 1.5: Spektrale Charakteristik der Photokathode eines *XP2020-Q* Sekundärelektronenvervielfachers [Photo 20Q]. Man erkennt, dass die maximale Quanteneffizienz bei ca. 420 nm liegt.

kristallen. Dadurch ist BaF_2 auch für gestörte γ - γ -Winkelkorrelationsmessungen geeignet. So können sogar Sonden implantiert und vermessen werden, deren Zwischenzustand der γ - γ -Kaskade eine Lebensdauer im Nanosekunden-Bereich besitzt. Deswegen benutzen heutzutage die meisten PAC-Apparaturen solche Kristalle. Für das Energiesignal, welches meist an der Anode des Sekundärelektronenvervielfachers abgegriffen wird, werden kurze und lange Komponente aufintegriert. Hier ist die zeitliche Auflösung nicht von großer Bedeutung.

Beide Zerfallskomponenten von BaF_2 liegen im ultravioletten Bereich. Man muss daher spezielle Sekundärelektronenvervielfacher mit einem Quarzfenster verwenden, da gewöhnliches Glas UV-Strahlung fast vollständig absorbiert. Wenn man sich nun die spektrale Ansprechwahrscheinlichkeit der Photokathode eines Sekundärelektronenvervielfachers vom Typ *XP2020-Q* anschaut (Abbildung 1.5), dann erkennt man das Maximum der Empfindlichkeit bei ca. 420 nm. Bei 220 nm ist die Empfindlichkeit nur noch halb so groß. Bariumfluorid mag also ein sehr schneller Szintillationskristall sein, aber die Lichtblitze werden nicht optimal von der Photokathode in Elektronen umgewandelt.

Ein weiterer Nachteil von BaF_2 liegt in seiner niedrigen Lichtausbeute. Die Anzahl der vom Kristall bei einfallender Gammastrahlung produzierten Photoelektronen liegt bei ca. $4 \frac{\text{Photonen}}{\text{keV}}$, bei NaI(Tl) waren es $38 \frac{\text{Photonen}}{\text{keV}}$. Man erhält also viel weniger Photoelektronen an der Photokathode des Sekundärelektronenvervielfachers, dadurch treten die statistischen Fluktuationen stärker hervor und

eine schlechtere Energieauflösung ist die Folge. Erreicht wurde eine Auflösung von ca. 20% auf der 662 keV-Linie von ^{137}Cs , wobei für den Sekundärelektronen-vervielfacher eine für Zeitauflösung optimierte Basis benutzt wurde.

1.3 Neue anorganische Szintillatoren

Im Vergleich zu anderen anorganischen Szintillationskristallen besitzt NaI(Tl) eine sehr gute Energieauflösung dank seiner hohen Lichtausbeute. Desweiteren hat dieser Szintillator für die Lumineszenz nur eine Zerfallskomponente, die aber eine lange Zerfallszeit besitzt und damit auch eine relativ lange Anstiegszeit. Dadurch wird die erreichbare Zeitauflösung limitiert. Bei BaF_2 ist dies nicht der Fall, obwohl es eine Zerfallskomponente besitzt, die länger ist als die von NaI(Tl). Für Koinzidenzmessungen braucht man eine schnelle Anstiegszeit und dafür ist die schnelle Komponente von BaF_2 gut geeignet. Das Auftreten einer zweiten langen Lumineszenzkomponente ist für die Zeitmessung unerheblich. Ein Nachteil ist die Lichtausbeute, die ca. 10% der NaI-Lichtausbeute beträgt. Somit hat BaF_2 eine mäßige Energieauflösung. Da aber die etablierten PAC-Proben relativ einfache Energiespektren haben, ist die Energieauflösung von sekundärer Bedeutung. Die Zeitauflösung ist hingegen sehr wichtig. Deswegen arbeiten heute die meisten PAC-Apparaturen mit BaF_2 -Kristallen.

Schon seit Beginn der achtziger Jahre wird die Forschung an neuen Szintillationsmaterialien vorangetrieben, da im medizinischem Bereich, vor allem in der Positronen-Emissions-Tomographie (PET), immer höhere Anforderungen an die Leistungsfähigkeit solcher Detektionssysteme gestellt werden. So wurden Materialien wie BGO (Wismuth-Germanat $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$), GSO (Gadolinium-Orthosilikat Gd_2SiO_5), LSO oder LYSO untersucht, die heute vor allem in diesem Gebiet stark eingesetzt werden. Der erste Tomograph für den Einsatz am Menschen, der mit LSO betrieben wurde, wurde Februar 1999 am Max Plank Institut in Köln in Betrieb genommen.

1.3.1 Lutetium-Oxyorthosilikat (LSO)

Lutetium-Oxyorthosilikat (Lu_2SiO_5) ist ein sehr harter, nicht hygroskopischer Kristall. Er wurde Ende der achtziger Jahre von einer Gruppe vom Schlumberger-Doll Research, geleitet von Charles Melcher, entdeckt [Nutt 99]. Die Gruppe war auf der Suche nach einem idealen Szintillator für Öl-Exploration im Bohrloch. Nach näheren Untersuchungen stellte sich jedoch heraus, dass der Kristall für solche Hochtemperatur-Umgebungen nicht so geeignet war wie für nuklearmedizinische Applikationen. Was LSO so attraktiv macht ist seine hohe Dich-

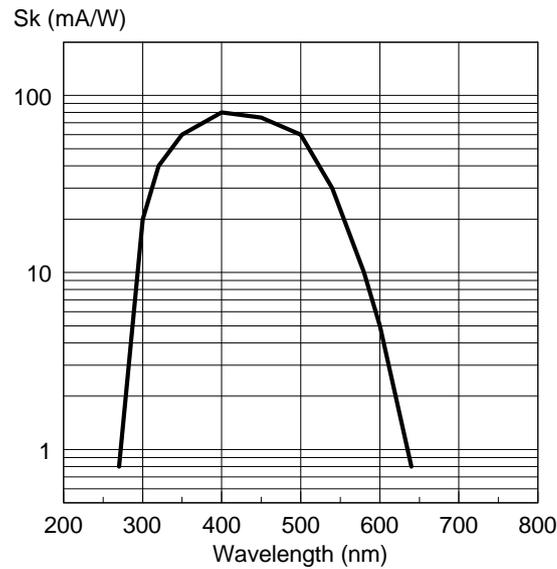


Abbildung 1.6: Spektraler Charakter der Photokathode eines XP2020 Sekundärelektronenvervielfachers [Photo 20]

te, die mit $7,4 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$ mehr als doppelt so groß ist wie die von NaI(Tl) ($3,67 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$), denn sie hat eine hohe Ansprechwahrscheinlichkeit zur Folge. Bestrahlt man einen 2 cm dicken NaI-Kristall mit Gammaquanten der Energie 511 keV, so wird 50,3% der Strahlung absorbiert; benutzt man einen gleich dicken Kristall aus LSO, so bleiben 83,8% der Intensität der Strahlung im Kristall. Das bedeutet, dass ein wesentlich größerer Anteil der Strahlung detektiert wird. Als Wellenlängenschieber wird dem LSO etwas Cer (Ce) in der Schmelze beigemischt, d.h. man erhält $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}^{3+}$, oder LSO:Ce, oder – wie in dieser Arbeit – einfach LSO. Die Cer-Ionen können entweder Gitteratome ersetzen oder auf Zwischengitterplätzen sitzen. Diese führen zu zwei verschiedenen Leuchtzentren, die man jeweils mit Ce1 und Ce2 bezeichnet.

LSO bietet eine viel größere Lichtausbeute als BaF_2 , $26 \frac{\text{Photonen}}{\text{keV}}$ gegenüber $4 \frac{\text{Photonen}}{\text{keV}}$, was eine bessere Energieauflösung zufolge hat. Die Auflösung ist ein großer Fortschritt gegenüber Bariumfluorid, aber immer noch nicht so gut wie die von Natriumiodid. Dies ist dadurch zu erklären, dass die energetische Auflösung nicht nur von der Anzahl der im Kristall produzierten Photonen und somit von der Anzahl der auf der Photokathode des Sekundärelektronenvervielfachers produzierten Photoelektronen abhängt, sondern auch von intrinsischen Beiträgen wie der Nichtlinearität in der Lichtausbeute in Abhängigkeit von der Energie. Bei LSO wird eine beträchtlich größere Nichtlinearität beobachtet als bei Natriumiodid [Doren 94] [Balce 00]. Die Energieauflösung hängt natürlich auch von extrinsischen Beiträgen ab, wie z.B. Inhomogenitäten im Kristall oder Gradienten in der Aktivatorkonzentration. Der Schwerpunkt der Emissionswellenlänge

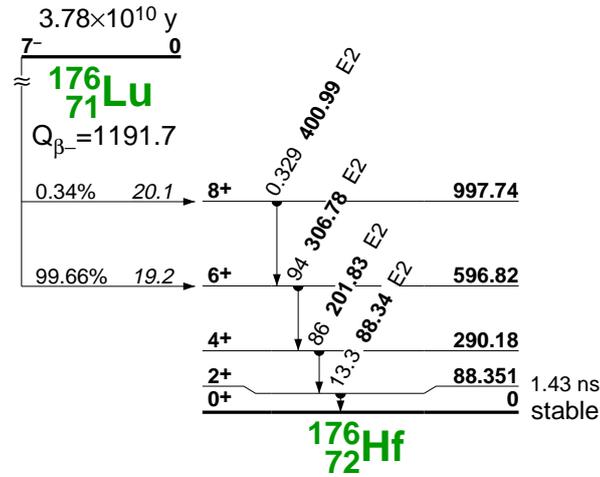


Abbildung 1.7: Zerfallsschema von $^{176}_{71}\text{Lu}$ [TOI 96]

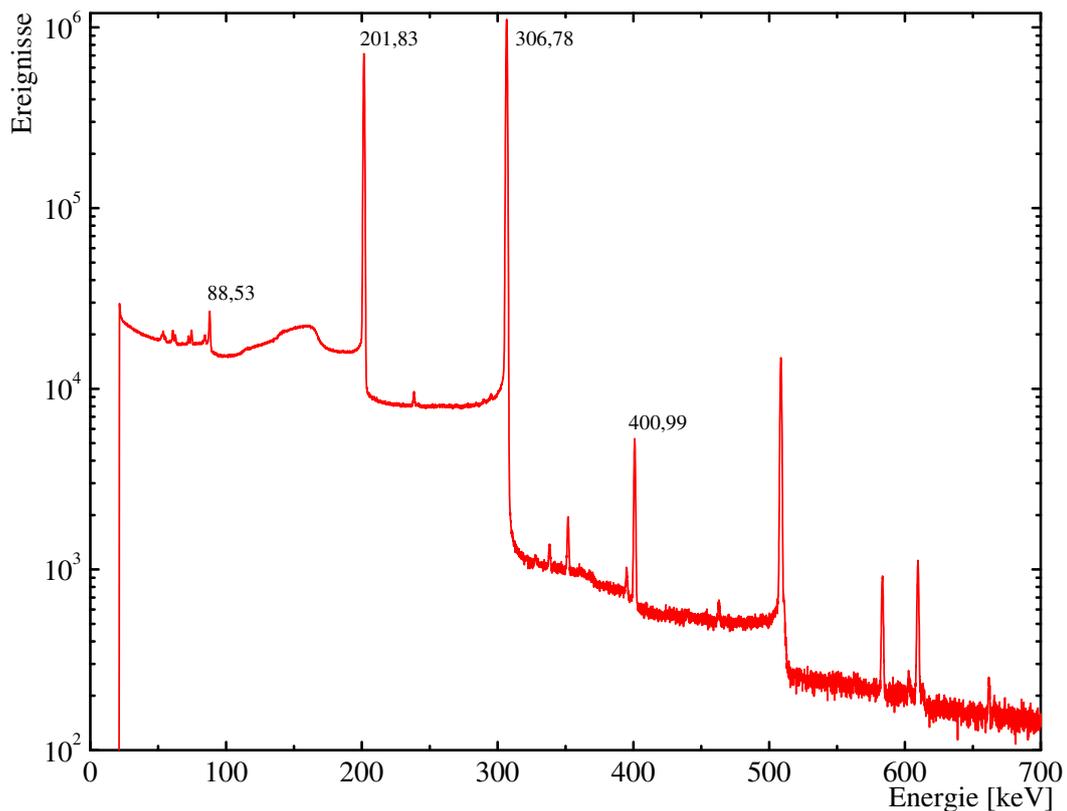


Abbildung 1.8: Halblogarithmische Darstellung des Energiespektrums von $^{176}_{71}\text{Lu}$. Das Energiespektrum des Isotops $^{176}_{71}\text{Lu}$ mit einem Germaniumdetektor aufgenommen. Der LSO-Kristall wurde direkt vor den Detektor gestellt. Die nicht gekennzeichneten Linien stammen vom Untergrund.

der Lumineszenz liegt bei 420 nm. Das ist ideal für die Photokathodenansprechwahrscheinlichkeit von schnellen Sekundärelektronenvervielfachern, wie z.B. dem XP2020. Desweiteren ist ein teures Quarzfenster, wie für BaF₂, nicht notwendig.

LSO besitzt wegen seines Lutetium-Anteils ein zu 2,59% natürlich vorkommendes instabiles Isotop. ¹⁷⁶₇₁Lu zerfällt mit einer Halbwertszeit von $3,78 \cdot 10^{10}$ Jahren unter Aussendung von β^- -Strahlung nach ¹⁷⁶₇₂Hf. Beim Übergang in den Grundzustand sendet das Tochteratom Gammaquanten aus, wie man sowohl an dem Zerfallsdiagramm (siehe Abbildung 1.7), als auch an dem Energiespektrum in Abbildung 1.8 erkennen kann. Für die Aufnahme des Gammaspektrums wurde eine Scheibe LSO vor einen Germaniumdetektor gehalten. Zu erkennen sind die vier typischen Linien von ¹⁷⁶₇₁Lu, wobei die 88 keV- und die 401 keV-Linie derart schwach sind, dass sie fast im Untergrund verschwinden und nur in halb-logarithmischer Darstellung zu sehen sind. Daher enthalten sämtliche mit LSO aufgezeichneten Energiespektren einen detektoreigenen Anteil (siehe Abbildung 1.9). Eine grobe Abschätzung der spezifischen Aktivität des LSO-Materials ergab $10 \frac{\text{Bq}}{\text{g}}$.

Testmessungen mit einem Probekristall

Wir haben erste Messungen mit einem kleinen Quader¹ ($6 \times 6 \times 10 \text{ mm}^3$) bestehend aus 9 kleinen Stäbchen ($2 \times 2 \times 10 \text{ mm}^3$) durchgeführt. Die Stäbchen wurden durch Teflon-Band, etwas Aluminiumfolie und ein Stück Pappe zusammengehalten. Nur zwischen dem Quader und der Photokathode wurde ein Tropfen Silikonöl benutzt; zwischen den Stäbchen wurde auf das optisch leitende Öl verzichtet, da das Licht möglichst nur zur Photokathode hin kanalisiert werden soll. Montiert wurde der Kristall auf einem bereits verfügbaren XP2020-Q Sekundärelektronenvervielfacher. Eine ausführliche Beschreibung des Versuchsaufbaus befindet sich in Kapitel 3.1. Als Referenzspektrum für die Energieauflösung wurde das Isotop ¹³⁷Cs gewählt, da es eine einzige, starke Linie bei 662 keV besitzt. Weiterhin wird ¹³⁷Cs oft für solche Zwecke eingesetzt. Es wurde eine Energieauflösung $\frac{\Delta E}{E}$ von $(15,32 \pm 0,03)\%$ erreicht (siehe Abbildung 1.9). Der Fehler ist dem Gauß-Fit mit linearem Untergrund und der zugehörigen Fehlerfortpflanzung entnommen worden. Eine Auflösung von 11%, wie in der Literatur angegeben, wurde nicht erwartet, da durch die Teilung des Quaders in neun Stäbchen viel Licht durch Streuung verloren geht. Im Spektrum ist neben der ¹³⁷Cs-Linie noch die starke 307 keV-Linie vom ¹⁷⁶₇₁Lu zu erkennen; die 202 keV-Linie wird durch den Rückstreupeak verdeckt.

¹ Ein besonderer Dank geht an **Karl Ziemons** (*Forschungszentrum Jülich GmbH*), der uns die kleinen LSO-Kristalle zur Verfügung stellte.

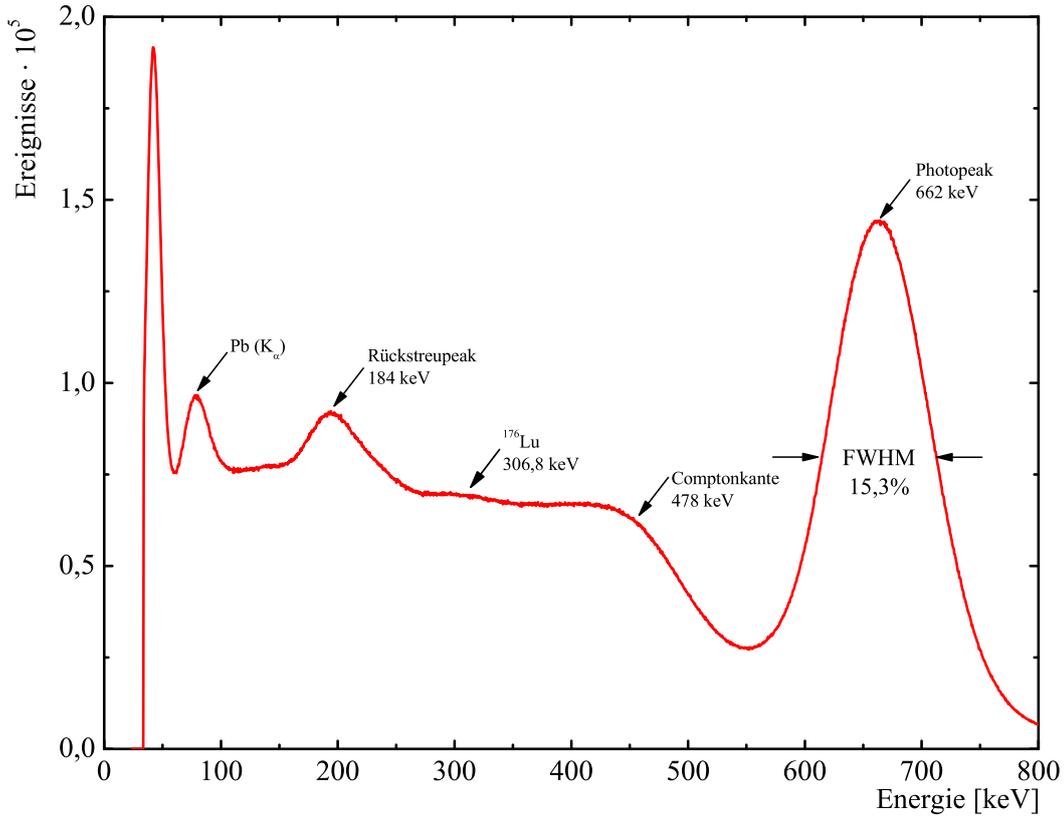


Abbildung 1.9: Das Energiespektrum von ^{137}Cs aufgenommen mit dem LSO-Probekristall. Mit dem kleinen zusammengesetzten Quader konnte eine Energieauflösung von $(15,32 \pm 0,03)\%$ erreicht werden.

Mit einer Abklingkonstanten von 40 ns (siehe Abbildung 1.10) ist LSO nicht so schnell wie BaF_2 , dafür hat es aber keine zweite, langsame Komponente. Ein Verlust in der Zeitauflösung scheint also nicht vermeidbar zu sein; gegenüber $\text{NaI}(\text{Tl})$ haben wir immerhin auch viel gewonnen. Zur Messung der Zeitauflösung wurde der kleine LSO-Quader zusammen mit einem bestehenden BaF_2 -Detektor verwendet und eine Lebensdauermessung durchgeführt. BaF_2 wurde als Start-Detektor verwendet und das Fenster des Einkanalanalysators (*Single Channel Analyser, SCA*) auf die 171 keV-Linie von ^{111}In eingestellt. Als Stopp-Detektor wurde dann LSO genommen; sein SCA-Fenster wurde auf die 245 keV-Linie von ^{111}In eingestellt. Die Promptkurve wurde dann mit ^{60}Co aufgrund seines starken Compton-Untergrunds aufgenommen. Die Halbwertsbreite² lag bei (711 ± 7) ps, wie man dem Diagramm in Abbildung 1.11 entnehmen kann. Mit zwei BaF_2 -Detektoren erreichte derselbe Versuchsaufbau eine Halbwertsbreite von (605 ± 6) ps, wobei wieder die ^{111}In -Fenster eingestellt wurden.

² Für die Fehlerrechnung siehe Kapitel 3.2

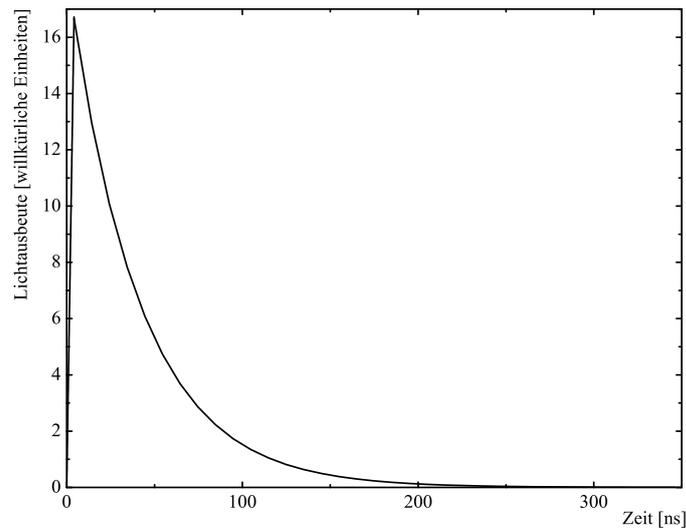


Abbildung 1.10: Zeitlicher Verlauf der Intensität der Lichtausbeute von LSO nach **CTI Inc**, Tennessee, USA, www.ctimi.com. Die maximale Intensität wird nach wenigen Nanosekunden erreicht, die Zerfallskonstante beträgt 40 ns.

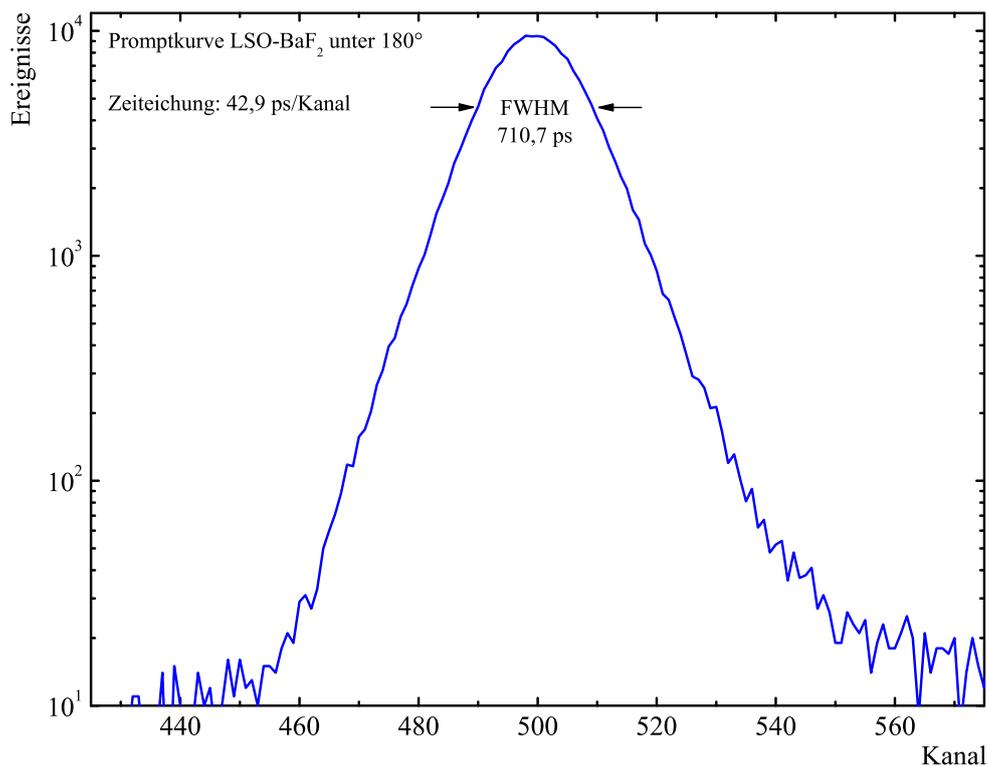
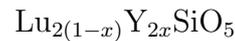


Abbildung 1.11: Promptkurve aufgenommen mit einem BaF_2 -Start-Detektor (SCA-Fenster: 171 keV) und einem LSO-Stopp-Detektor (SCA-Fenster: 245 keV). Die beiden Detektoren stehen sich unter 180° gegenüber. Bei einer Zeiteichung von $(42,9 \pm 0,4) \frac{\text{ps}}{\text{Kanal}}$ ergibt sich eine FWHM von $(711 \pm 7) \text{ ps}$.

1.3.2 Lutetium-Yttrium-Oxyorthosilikat (LYSO)

Das Szintillationsmaterial LYSO ist dem LSO sehr ähnlich. In ihm werden lediglich einige Lutetiumatome $^{175}_{71}\text{Lu}$ durch Yttriumatome $^{89}_{39}\text{Y}$ ausgetauscht. Die chemische Formel sieht wie folgt aus



wobei $x \in [0; 1]$ ist. Als Wellenlängenschieber wird weiterhin Cer benutzt. Das Resultat ist, im Vergleich zu LSO, eine höhere Lichtausbeute, $32 \frac{\text{Photonen}}{\text{keV}}$ gegen $26 \frac{\text{Photonen}}{\text{keV}}$ und eine weitgehend unveränderte Wellenlänge des Emissionsmaximums. Die Dichte von LYSO ist vom Verhältnis Lutetium zu Yttrium abhängig, ein typischer Wert ist $7,1 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$. Auf jeden Fall ist sie kleiner als die Dichte von LSO, da die Yttriumatome leichter als Lutetium sind; kleiner ist somit auch die effektive Kernladungszahl. LSO, das eine effektive Kernladungszahl von 66 besitzt, hat eine höhere Wahrscheinlichkeit für das Auftreten des photoelektrischen Effekts. Das bedeutet aber auch eine höhere Ansprechwahrscheinlichkeit. Nimmt man einen 2 cm dicken LYSO-Kristall, dann verbleiben ca. 81% der Strahlung (511 keV) im Kristall; ein LSO-Kristall der gleichen Dicke absorbiert 83,8% der einfallenden Strahlung.

Testmessungen mit einem Probekristall

Als Leihgabe hatten wir einen kleinen Quader³ mit den Dimensionen $10 \times 10 \times 10 \text{ mm}^3$ zur Verfügung. Das Verhältnis von Lutetium zu Yttrium im Material ist uns unbekannt. Zur Messung der Energieauflösung haben wir denselben Versuchsaufbau und denselben Sekundärelektronenvervielfacher wie für LSO benutzt. Aus dem gemessenen ^{137}Cs -Spektrum ergibt sich auf der 662 keV-Linie eine Energieauflösung von $(11,72 \pm 0,02)\%$ (Abbildung 1.12).

Die Abklingkonstante von LYSO liegt, wie für LSO, bei 40 ns, also erwarten wir eine ähnliche Zeitauflösung. Um dies zu überprüfen haben wir wieder einen BaF_2 -Detektor dem LYSO gegenübergestellt und die beiden SCA-Fenster auf die ^{111}In -Linien (171 keV und 245 keV) eingestellt; der Start-Detektor arbeitete wieder mit BaF_2 und der Stopp-Detektor diesmal mit LYSO. Für die Aufnahme der prompten Kurve wurde wieder das Isotop ^{60}Co genommen. Wie man in Abbildung 1.13 erkennen kann, liegt die Halbwertsbreite nun bei $(771 \pm 8) \text{ ps}$, somit resultiert eine kleine Verschlechterung gegenüber LSO.

³ Ein besonderer Dank geht an **Mike Meehan** (*Photonic Materials, Bellshill, Scotland, UK*), der uns den kleinen LYSO-Kristall für erste Messungen ausgeliehen hat.

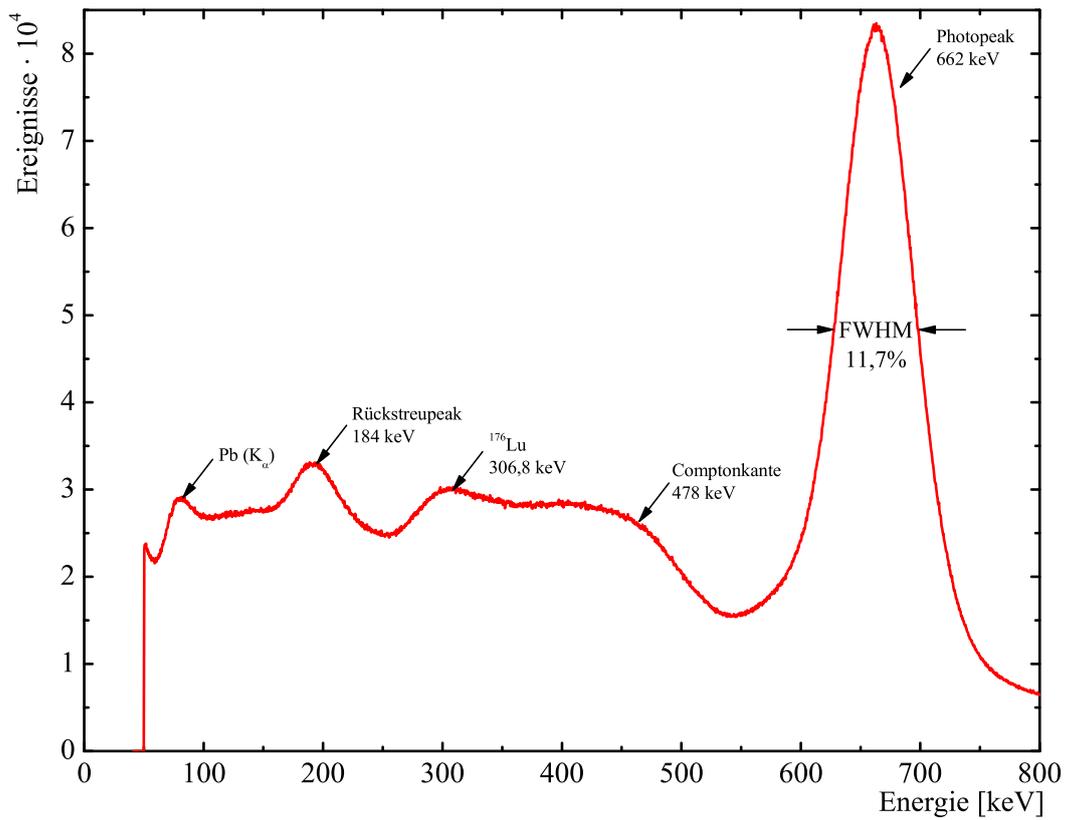


Abbildung 1.12: Das Spektrum von ^{137}Cs aufgenommen mit dem LYSO-Probekristall. Mit dem kleinen $10 \times 10 \times 10 \text{ mm}^3$ Quader konnte eine Energieauflösung von $(11,72 \pm 0,02)\%$ erreicht werden.

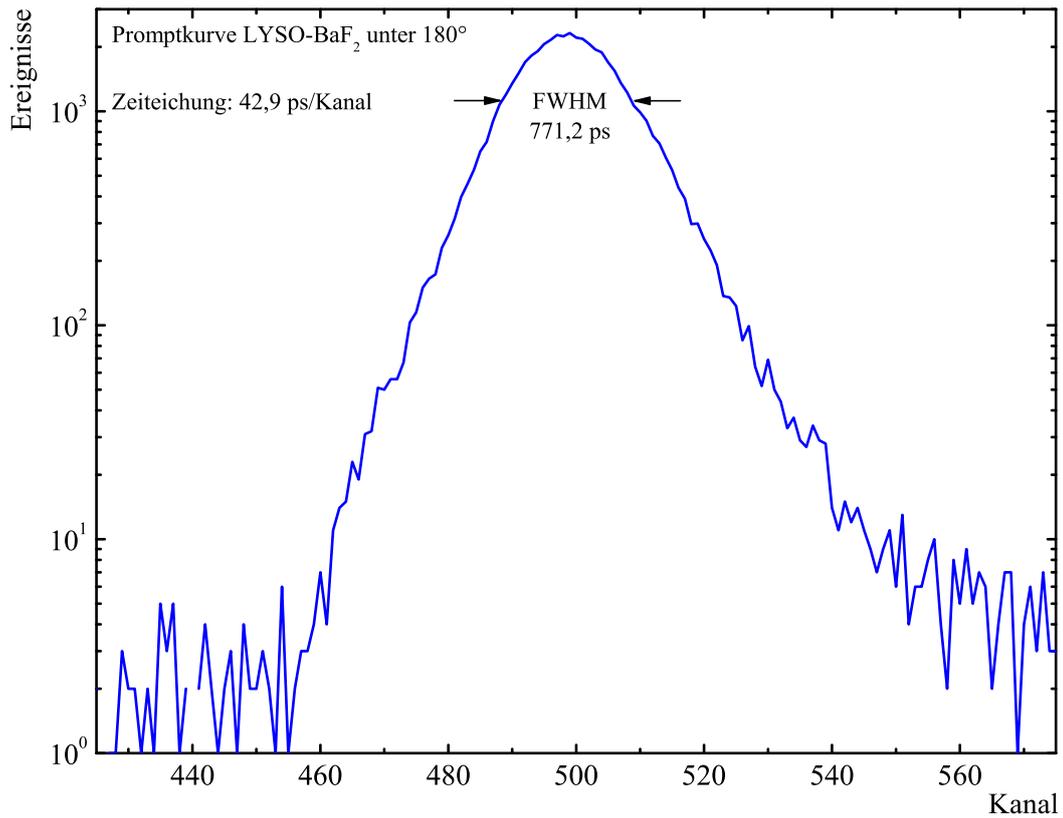


Abbildung 1.13: Promptkurve aufgenommen mit einem BaF₂-Start-Detektor (SCA-Fenster: 171 keV) und einem LYSO-Stopp-Detektor (SCA-Fenster: 245 keV). Die beiden Detektoren sind sich gegenübergestellt. Bei einer Zeiteichung von $(42,9 \pm 0,4) \frac{\text{ps}}{\text{Kanal}}$ ergibt sich eine FWHM von $(771 \pm 8) \text{ ps}$.

	Natriumiodid	Bariumfluorid	LSO:Ce	LYSO	BGO
Chemische Zusammensetzung	NaI(Tl)	BaF ₂	Lu ₂ SiO ₅ :Ce ³⁺	Lu ₂ (1-x)Y _{2x} SiO ₅	Bi ₄ Ge ₃ O ₁₂
Effektive Kernladungszahl Z _{eff}	50,5 (11/53)	52,2 (56/9)	65,8 (71/14/8)	(71/39/14/8)	74,3 (83/32/8)
Dichte [$\frac{g}{cm^3}$]	3,67	4,89	7,4	7,1	7,13
Schmelzpunkt [°C]	651	1350	2054	2140	1050
Hygroskopisch	Ja	Nein	Nein	Nein	Nein
Robust	Nein	Mäßig	Ja	Ja	Ja
Brechungsindex beim Emissionsmax	1,85	1,49 - 1,51	1,81	1,81	2,15
Abklingkonstante [ns]	230	0,8 - 600	40	40	300
Nachleuchten nach 6 ms in %	0,3	0,05 nach 3ms	<0,1	<0,1	0,005 nach 3ms
Lichtausbeute* [$\frac{\text{Photonen}}{\text{keV}}$]	38	1,5 - 6	26	32	8,2
Lichtausbeute relativ zu NaI(Tl)	100%	4% - 16%	75%	84%	15%
Wellenlänge der max Emission [nm]	415	220 - 310	420	430	480
Abschwächungskoeffizient* [cm^{-1}]	0,35	0,49	0,91	0,83	0,95
Mittlerer freier Weg* [cm]	2,88	2,03	1,10	1,20	1,05
Energieauflösung (bei 662 keV)	7,8%	20%	11%	10%	12%
Zeitauflösung für ¹¹¹ In** [ps]	1000 für ⁶⁰ Co	605	711	771	1000

Tabelle 1.1: Wichtige Eigenschaften von einigen anorganischen Szintillationskristallen

* bei 511 keV

** Start-Detektor: SCA-Fenster auf 171 keV Stopp-Detektor: SCA-Fenster auf 245 keV von ¹¹¹In

Kapitel 2

Realisierung der Szintillationskristalle

2.1 Wahl des Materials

Für Apparaturen zur Messung gestörter γ - γ -Winkelkorrelation wird heute i.d.R. BaF_2 benutzt, da seine schnelle Zerfallskomponente für Koinzidenzmessungen sehr praktisch ist. Für solche Apparaturen ist die Zeitauflösung extrem wichtig. Man benutzt Sonden wie ^{111}In oder ^{181}Hf , die relativ einfache Energiespektren besitzen, so dass eine gute Energieauflösung weniger wichtig ist. Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Testmessungen an den neuen anorganischen Szintillationsmaterialien haben gezeigt, dass sowohl LYSO als auch LSO zwar die sehr gute Zeitauflösung von BaF_2 nicht ganz erreichen, dafür aber eine viel bessere Energieauflösung ermöglichen. Vergleicht man die beiden Szintillationskristalle untereinander, so stellt sich heraus, dass LYSO eine geringfügig bessere Energieauflösung hat, LSO aber schneller ist.

Wir haben Angebote sowohl für LSO als auch für LYSO angefragt. Das Cer dotierte LSO ist durch ein Patent rechtlich geschützt, so dass wir nur ein Angebot von der Firma CTI¹ in den Vereinigten Staaten bekommen konnten. Bei LYSO kann das Verhältnis von Lutetium und Yttrium beliebig geändert werden, infolgedessen bieten mehrere Firmen dieses Material an. Wir konnten also sowohl die Firma Saint Gobain², als auch Photonic Materials³ anschreiben.

Saint Gobain liefert die fertigen LYSO Kristalle in der Form, die man möchte, für $70,15 \frac{\text{€}}{\text{cm}^3}$. Die Firma Photonic Materials verkauft LYSO, fertig geschnitten und poliert, für $29,47 \frac{\text{£}}{\text{cm}^3}$. Bei einem Kurs⁴ von $0,665 \frac{\text{£}}{\text{€}}$ und einer Mehrwertsteuer von 16% kostet das Material $51,41 \frac{\text{€}}{\text{cm}^3}$. Das LSO wird von CTI für $50 \frac{\text{£}}{\text{cm}^3}$ verkauft.

¹ **CTI Inc**, Tennessee, USA, www.ctimi.com

² **Saint Gobain**, Nemours, France, www.detectors.saint-gobain.com

³ **Photonic Materials**, Bellshill, Scotland, UK, www.photonicmaterials.com

⁴ Alle Wechselkurse sind vom Juni 2004

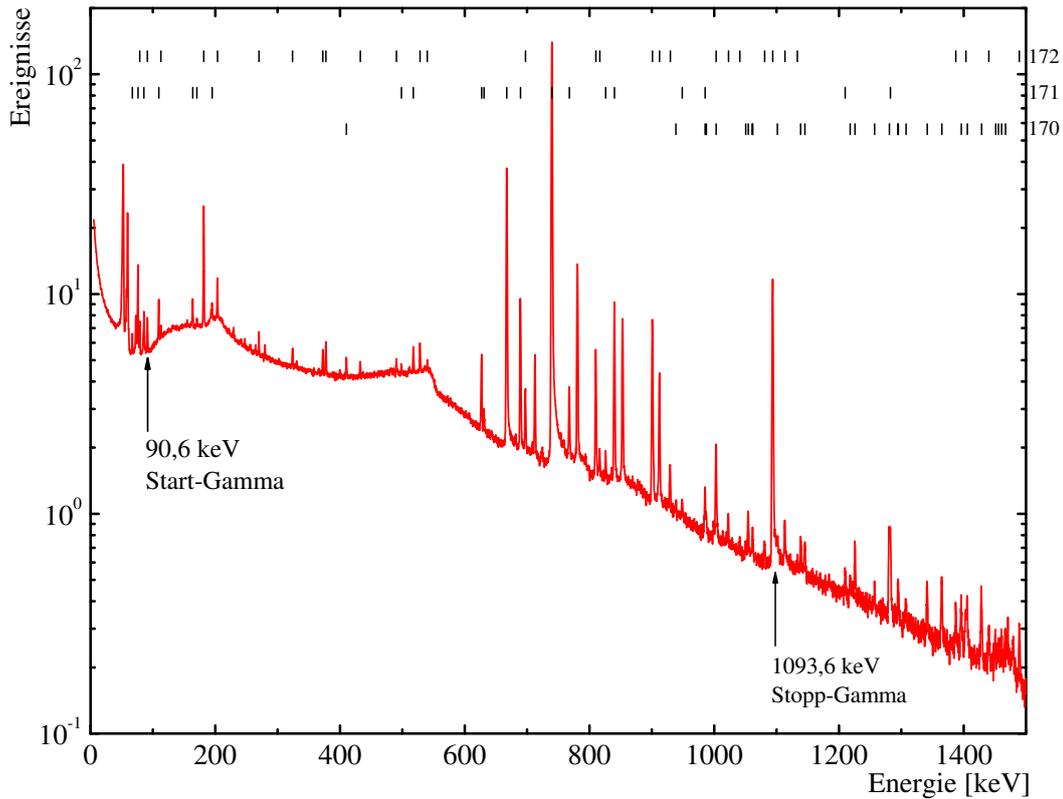


Abbildung 2.1: Das Spektrum von ^{172}Lu aufgenommen mit einem Germaniumdetektor⁵. Markiert sind die Gammalinien der Kaskade, die als Start- und Stopp-Signal für PAC-Messungen benutzt werden. Da die Probe auch die Isotope ^{171}Lu und ^{170}Lu enthält, gibt es im oberen Bereich des Graphen eine Markierung, die der Zuordnung der Linien zu den jeweiligen Isotopen vereinfachen soll.

Der Dollarkurs betrug zum Zeitpunkt der Anfrage $1,232 \frac{\$}{\text{€}}$, mit den üblichen 16% MwSt. ergeben sich die Materialkosten zu $47 \frac{\text{€}}{\text{cm}^3}$. Das Problem dabei ist, dass CTI die Kristalle nach der Züchtung nicht verarbeitet, man bekommt also nur eine Scheibe mit einem Radius von $r = 4 \text{ cm}$ und in 5 mm-Schritten variabler Höhe, die noch geschnitten und poliert werden muss.

Die BaF_2 -Kristalle einer 4-Detektor-Anlage für gestörte γ - γ -Winkelkorrelation sollen durch das neue Material ausgetauscht werden. Die bestehenden Kristalle haben die Form eines Kegelstumpfes mit einem Radius von $r = 2,2 \text{ cm}$ und einer Höhe von $h = 2 \text{ cm}$. Es wurde diese spezielle Form gewählt, weil sie bei herangefahrenen Detektoren einen viel größeren Öffnungswinkel abdecken und bei

⁵ Ein besonderer Dank geht an **Ronan Nédélec** (*Helmholtz - Institut für Strahlen- und Kernphysik der Universität Bonn – Gruppe Vianden*), der mir das mit einem Germaniumdetektor aufgenommene Energiespektrum von ^{172}Lu zur Verfügung stellte.

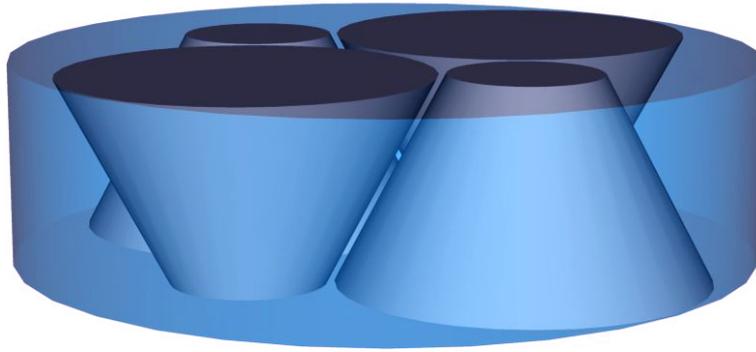


Abbildung 2.2: Dreidimensionales Computer-Modell der LSO-Kristallscheibe ($r = 4$ cm und $h = 2$ cm) mit der Anordnung der daraus zu schneidenden Kegelstümpfe

der Dicke der Kristalle eine Ansprechwahrscheinlichkeit von 62,5% bei 511 keV haben (siehe auch [Schae 92]). Desweiteren kommt man mit einer solchen Form näher an schwache Proben heran, als wenn man die übliche zylindrische Form benutzt. Wir suchen also kegelstumpfförmige Kristalle, die den Maßen der schon bestehenden Bariumfluorid-Kristalle möglichst nahe kommen.

Gekauft wurde eine Scheibe Lutetium-Oxyorthosilikat mit 8 cm Durchmesser und 2 cm Höhe. Die Entscheidung fiel auf das LSO, weil es auf der einen Seite die bessere Zeitauflösung bietet, die ja für PAC-Messungen von vorrangiger Bedeutung ist, auf der anderen Seite ist die in der Literatur versprochene Energieauflösung von 10% ausreichend, um die Energiepeaks von Proben wie ^{77}Br , ^{172}Lu oder ^{187}W gut auseinanderzuhalten. Das entscheidende Argument stellten aber die Materialkosten dar. Mit 5000 € war das LSO bei CTI viel günstiger als die vier schon fertig geschnittenen LYSO-Kristalle für 20000 € bei Saint Gobain.

Durch den Ankauf einer LSO-Scheibe konnte also das Szintillationsmaterial günstig erworben werden. Auf der anderen Seite musste aber ein Gerät konstruiert werden, um daraus die vier gewünschten Kegelstümpfe mit möglichst wenig Verschnitt zu schneiden. Mit einem dreidimensionalen Computer-Modell (siehe Abbildung 2.2) haben wir uns vergewissert, dass es geometrisch möglich ist, aus einer solchen Scheibe vier Kegelstümpfe herauszuschneiden, die einen Durchmesser von mindestens 3,8 cm und eine Höhe von 2 cm haben (siehe Abbildung 2.3).

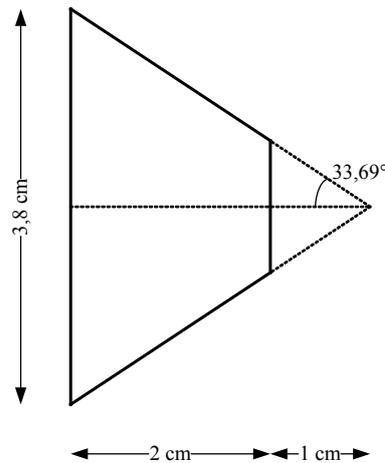


Abbildung 2.3: Zweidimensionale Skizze der Kegelstümpfe, die aus der LSO-Kristallscheibe herausgeschnitten werden sollen

2.2 Sägevorrichtung

Als Säge wurde eine Diamantdrahtsäge vom Typ *Well, Modell 3032-4, Serie 6217* benutzt, die durch einen Gleichstrommotor einen 10 m langen Diamantdraht auf- und wieder abrollt. Der Diamantdraht, der schon vorhanden war, hat einen Durchmesser von 0,17 mm und eine Diamantstärke von 30μ ; dazu muss erwähnt werden, dass dies der dünnste und feinste Draht ist, der auf diese Säge gespannt werden kann. Für die Kristallscheibe musste eine drehbare Halterung gebaut werden (siehe Abbildung 2.4), die den Kristall selbst nicht beschädigt. So wurde die Scheibe durch eine Art Saugnapf mit Vakuum angesaugt, dieser besteht aus einem langen hohlen Metallstab, welcher in einer Halterung drehbar gelagert ist. Das Ganze wurde mit dem zum Draht gewünschten Winkel an der Säge befestigt, natürlich sollen Metallstab und Halterung mit hoher Präzision in der Höhe und in dem Abstand zum Draht verstellbar sein. Dies wird mit Hilfe von zwei Mikrometerschrauben erreicht. Es ist erforderlich, dass der Abstand zum Draht einstellbar ist, da als erstes radial bis zum gewünschten Kegelmantel gesägt werden muss, d.h. bis man mit dem Draht an der vorher auf dem Kristall eingezeichneten Basis des zu schneidenden Kegelstumpfes angelangt ist.

Der Kristall hat eine Dichte von $7,4 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$ und ein Volumen von $100,53 \text{ cm}^3$, so ergibt sich eine Masse von 744 g. Obwohl er so schwer ist, reicht eine Vorpumpe (hier: Zweistufige Drehschieber-Vakuumpumpe der Firma *Leybold-Heraeus Modell Trivac D 16 B*) völlig aus, um das nötige Vakuum herzustellen, damit der Kristall mit einer ausreichenden Kraft festgehalten wird. Eine Vorpumpe erreicht problemlos einen Unterdruck von 10^{-2} hPa , der Kristall wird mit einem O-Ring ($r = 1,6 \text{ cm}$) festgehalten, d.h. auf einer Fläche von $8,0 \text{ cm}^2$. Subtrahiert man

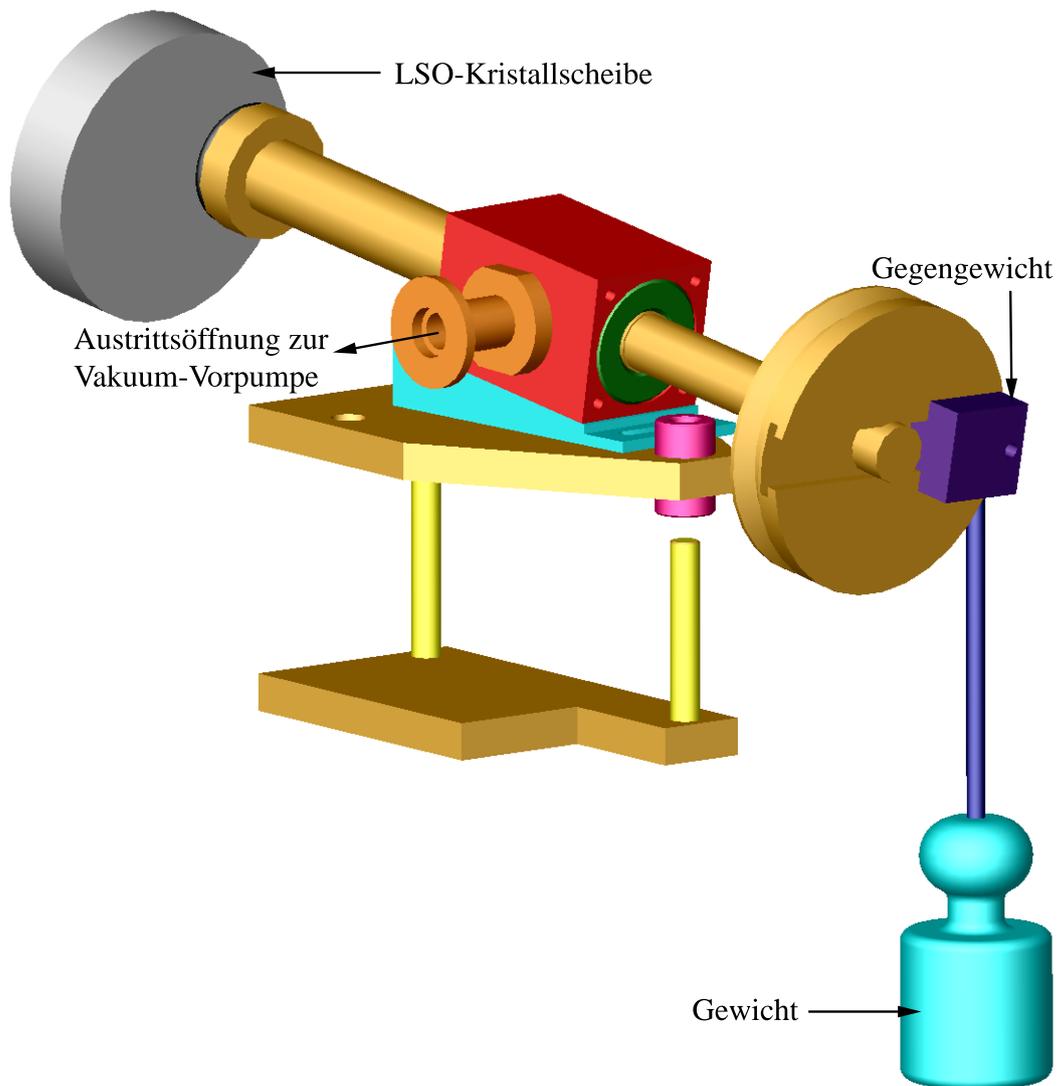


Abbildung 2.4: Dreidimensionale Skizze der Sägevorrichtung für die Diamantdrahtsäge mit dem LSO-Szintillationskristall. Da der Kristall mit einer Vorpumpe exzentrisch angesaugt wird, ist ein Gegengewicht notwendig, damit kein Netto-Drehmoment auf die Achse ausgeübt wird. Erst durch das zusätzliche Gewicht (unten) soll sich der Kristall drehen.

von dem normalen Luftdruck (1013 hPa) den von der Vorpumpe produzierten Unterdruck, so ist der resultierende Druck sehr nahe dem normalen Luftdruck. Folglich wird auf der Fläche eine Kraft von ca. 80 N ausgeübt, entsprechend einer Masse von ca. 8 kg.

Die Kristallscheibe wurde an der Basis des zu sägenden Kristalls exzentrisch angesaugt, so dass dieser ein vom Winkel abhängiges Drehmoment auf die Achse ausübt. Um dieses Drehmoment auszugleichen, wurde an dem anderen Ende des Metallstabs ein Rad montiert, auf dem senkrecht zur Drehachse ein Gegengewicht befestigt werden konnte. Bei richtiger Einstellung des Gegengewichts sollte kein Drehmoment auf die Achse ausgeübt werden. Es stellte sich heraus, dass die drehbare, vakuumdichte Lagerung der Achse eine große Haftreibung zur Folge hatte. Daher ließ sich die Achse nur mit einem größeren Drehmoment in Bewegung setzen und die Einstellung des Gegengewichts war schwierig. Die Drehung des Kristalls erfolgte dann durch Gewichte, die mit einem Faden an dem Rad befestigt waren. Für den ersten Schnitt wurden Bleistücke als Gegengewichte verwendet. Diese erwiesen sich aber als ungeeignet, da das Drehmoment sich nur schwer kalibrieren ließ. Manchmal erwies sich der Druck auf den Draht als zu klein, so dass die Säge von alleine nicht weiterschnitt. Manchmal war der Druck zu groß und der Draht hat sich derart weit gebogen, dass die Reibungskraft zwischen Draht und Kristall zu groß wurde und der Motor der Säge blockierte. Als geeigneter erwies sich ein mit Wasser gefülltes Behältnis, welches in seinem Gewicht beliebig einstellbar ist. Für eine Weile schien das richtige Gewicht eingestellt worden zu sein und die Säge schnitt für ca. 10° sauber, dann aber änderten sich einerseits die Gewichtsverhältnisse durch das nicht präzise einstellbare Gegengewicht, andererseits änderte sich auch die Haftreibung zwischen Metallstab und Halterung. Dies erklärt, wieso der Mantel des ersten geschnittenen Kegelstumpfes sehr unregelmäßig geworden ist.

Der zweite Schnitt sollte mit einer möglichst konstanten Schnittgeschwindigkeit erfolgen. Durch bloße Gewichte wäre das möglich, wenn man die Reibung zwischen Drehachse und Halterung vernachlässigen kann. Nur in einem solchen Fall ist das Gegengewicht zum Kristall so einstellbar, dass kein Drehmoment auf die Achse ausgeübt wird. Dann kann man mit einem Gewicht, wie dem mit Wasser befüllbaren Behältnis, ein kontrolliertes und vor allem konstantes Drehmoment erzeugen. Die Vortriebsmethode mit dem Gegengewicht musste also verworfen werden. Alternativ wurde ein Zweiphasen-Schrittmotor samt Steuereinheit von *Isel* (Art. Nr. 3455) eingesetzt (siehe Abbildung 2.5), die mit einem Rechner seriell angesteuert wurde. Solch ein Schrittmotor dreht im normalen Modus pro Schritt um 1,8°, man kann ihn aber im Halbschritt-Modus betreiben, also nur 0,9° pro Schritt. Die Entscheidung fiel auf diesen letzten Modus, da zu erwarten ist, dass bei größeren Schritten längere Pausen zwischengeschaltet werden müssen. Diese hätten wiederum zu einem unregelmäßigen Druck auf den Draht

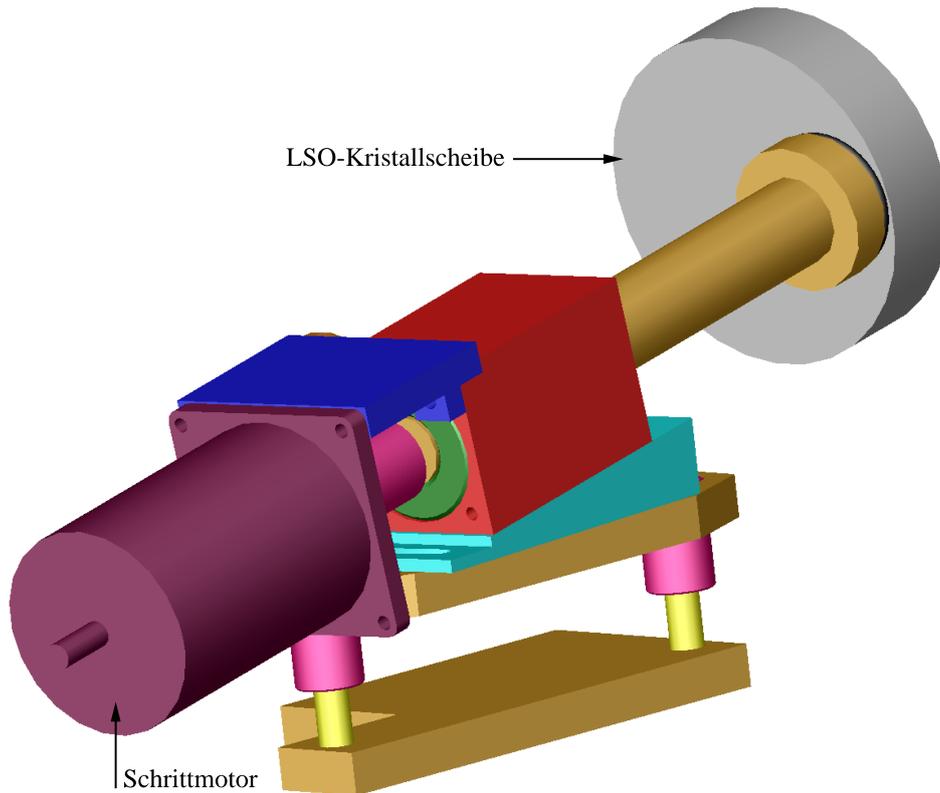


Abbildung 2.5: Dreidimensionale Skizze der verbesserten Sägevorrichtung für die Diamantdrahtsäge mit dem LSO-Szintillationskristall. Die Konstruktion mit den Gegengewichten wurde durch einem rechnergesteuerten Schrittmotor ersetzt.

geführt. Die Zeit, die zwischen einem Schritt und dem nächsten vergeht, ist durch ein einfaches Basic-Programm (für den Quellcode siehe Anhang) frei einstellbar. Das Programm soll den Schrittmotor über den normalen seriellen Ausgang eines Rechners ansteuern. Dieser wurde so programmiert, dass 1800 s zwischen den Schritten verstreichen, das bedeutet für 360° oder 400 Schritte eine reine Sägezeit von 200 h. Bemerkt wurde, dass bei der Einstellung dieser Schrittgeschwindigkeit nicht allzuviel Druck auf den Draht ausgeübt wird. Also wurde sie auf $0,9^\circ$ pro 1500 s erhöht. Als endlich der Kristall die volle Umdrehung erreicht hatte, stellte sich heraus, dass der Schnitt nicht genau da aufhörte, wo er angefangen hatte. Eine plausible Erklärung könnte sein, dass durch die Erhöhung der Schnittgeschwindigkeit der Druck auf den Draht größer geworden ist und dadurch der Schnitt näher an die Symmetrie- und Drehachse des Kegelstumpfes geraten ist. Übt man einen höheren Druck auf den Draht aus, so biegt sich dieser elastisch in die Richtung in die der Kristall sich dreht. Mit der Zeit und unter nachlassendem Druck schneidet der Draht dann wieder linear nach außen in die ursprüngliche Position.

Dieser zweite Kristall gelang bereits viel regelmäßiger, der Schnitt ist sehr sauber, man erkennt allerdings facettenhaft jeden einzelnen Schritt des Motors. Die Form des Schnitts hat zwar keine großen Auswirkungen auf die Szintillations- und Übertragungseigenschaften des Kristalls, aber es wurde trotzdem versucht, einen noch besseren Schnitt zu erreichen.

Ein weiterer Nachteil bei dem Schnitt der ersten beiden Kristalle schien uns die feine Körnung des benutzten Drahtes zu sein. Die $30\ \mu$ Diamantstärke ist so fein, dass der Draht zu lange braucht um den Kristall zu schneiden. Also wurde für den dritten Schnitt ein Draht gewählt mit einer Diamantstärke von $60\ \mu$; diesen gibt es aber nur mit einem Durchmesser von $0,22\ \text{mm}$. Vorsichtigerweise wurde eine Schnittgeschwindigkeit von $0,9^\circ$ pro $1500\ \text{s}$ eingestellt, so dass der Druck auf den Draht sehr gering gehalten werden konnte. Trotzdem ist der Draht öfters gerissen und musste neu gespannt werden. Es ist bekannt, dass Wolframdrähte mit zunehmender Dicke immer spröder werden. Der Draht kann sich also beim Schneiden verkanten und reißen. Eine Erhöhung der Geschwindigkeit auf $0,9^\circ$ pro $1300\ \text{s}$ führte nur zu einem etwas unrunderen Schnitt, so wurde wieder die alte Geschwindigkeit von $0,9^\circ$ pro $1500\ \text{s}$ eingestellt.

Kapitel 3

Erste Messungen

Wie schon in Kapitel 2.1 erwähnt, sollen die Bariumfluorid Szintillationskristalle einer Vier-Detektor-Anlage durch Lutetium-Oxyorthosilikat ersetzt werden. Die Anlage ist so aufgebaut, dass man mit ihr gestörte γ - γ -Winkelkorrelationsmessungen durchführen kann, wobei die Detektoren rechtwinklig zueinander angeordnet sind. Für die LSO-Szintillationskristalle wurden neue Sekundärelektronenvervielfacher vom Typ *XP2020* der Firma *Photonis* benutzt. Die polierte Basis der Kristalle und das Glasfenster der Photokathode des Sekundärelektronenvervielfachers wurden mit einem dünnen Film Silikonöl kontaktiert, der als optischer Leiter dient. Die restliche Oberfläche des Kristalls bleibt matt und wird mit weißem Teflon-Band umhüllt, damit die im Kristall produzierte Lumineszenz an der gesamten Kristalloberfläche, mit Ausnahme der Basis, diffus reflektiert und verlustfrei zur Photokathode transmittiert werden kann. Es ist üblich den Kristall mit dem Mantel des Sekundärelektronenvervielfachers mit Aluminiumfolie zu kontaktieren. Das Ganze wird zusätzlich mit schwarzem, lichtundurchlässigen PVC-Klebeband umschlossen.

3.1 Energie

Um einen direkten Vergleich mit dem kleinen LSO-Probekristall anstellen zu können, wurde der erste geschnittene Kristall zunächst auf denselben *XP2020-Q* Sekundärelektronenvervielfacher montiert; die übliche Versuchsanordnung wurde ansonsten unverändert gelassen. Das Slow-Signal, welches an der Anode des Sekundärelektronenvervielfachers abgegriffen wird, wurde durch einen Vorverstärker (*Ortec 113*) auf einen Verstärker (*Tennelec TC 205A*) geschickt. Das ca. 8 V hohe bipolare Ausgangssignal hat eine Dauer von ca. 400 ns und muss auf mindestens 500 ns verlängert werden, so dass der Analog-Digital-Wandler (*Analog to Digital Converter, ADC*) *Fast ComTec GmbH 7070* es sauber interpretieren kann. Dazu wurde ein *Linear Gate and Stretcher* (*Ortec 542*) benutzt. Das Signal wird an-

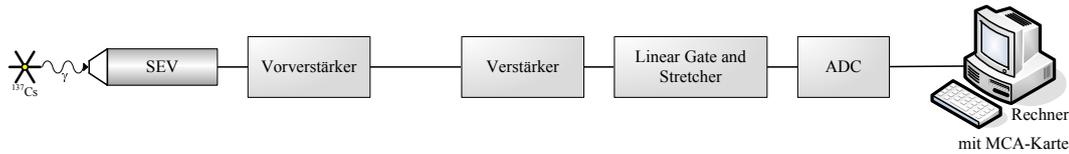
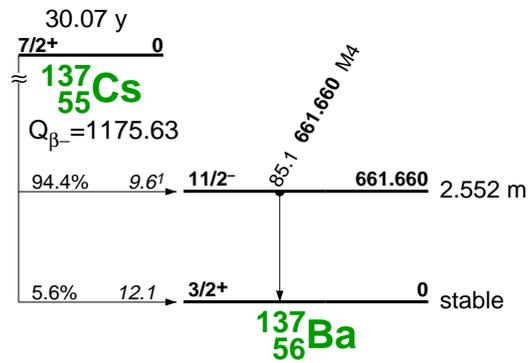
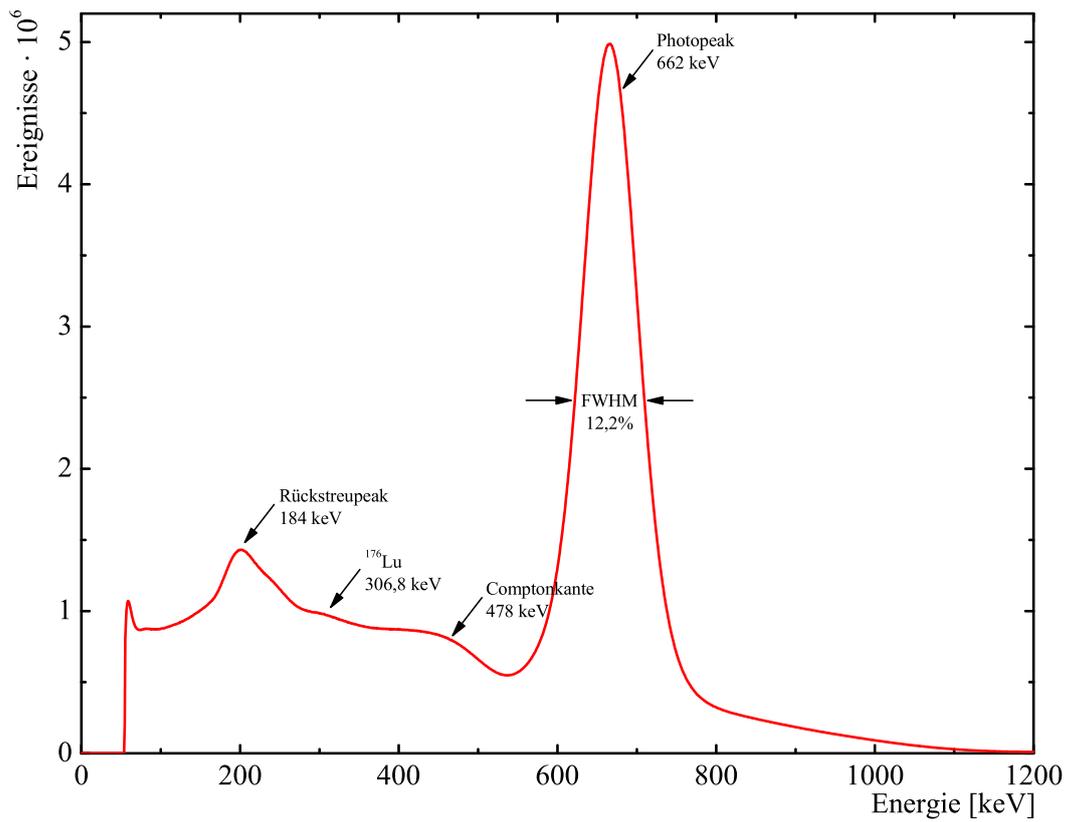


Abbildung 3.1: Schematischer Versuchsaufbau für die Aufnahme eines Energiespektrums

schließend vom ADC zum Vielkanalanalysator (*Multi Channel Analyser*, **MCA**) *MCD-2E* der Firma *Fast ComTec GmbH* geschickt, der als Karte in einen Rechner eingebaut ist und mit dem Programm *MCDWin Version 2.86* aufgenommen.

Die Energieauflösung wurde für die 662 keV-Linie von der ^{137}Cs -Quelle bestimmt. Die Aktivität dieser Quelle beträgt $(2,3 \pm 0,2) \cdot 10^6$ Bq. Erreicht wurde eine Energieauflösung $\frac{\Delta E}{E}$ von $(12,23 \pm 0,02)\%$ (siehe Abbildung 3.3). Eigentlich wurde hier eine etwas bessere Energieauflösung erwartet. Eine mögliche Ursache könnte das nicht sparsam genug benutzte Silikonöl sein, das das Teflon-Band benetzt hat. Dieses wird dadurch durchsichtig und verliert teilweise seine reflektive Eigenschaft. Eine andere Ursache könnte in den Sekundärelektronenvervielfachern liegen. Der *XP2020-Q* ist ca. 10 Jahre alt und es ist bekannt, dass die Effizienz solcher Sekundärelektronenvervielfacher mit der Zeit abnimmt.

Weiterhin wurden die Energiespektren der radioaktiven Präparate ^{133}Ba und ^{60}Co aufgenommen. Die Barium-Quelle besitzt eine Aktivität von $(2,1 \pm 0,2) \cdot 10^4$ Bq, sie ist also eine relativ schwache Quelle. Das Energiespektrum ist aber mit den charakteristischen Linien dieser Quelle noch gut zu erkennen (siehe Abbildung 3.4). Obwohl die Aktivität der Cobalt-Quelle $(2,6 \pm 0,2) \cdot 10^4$ Bq beträgt und damit ähnlich schwach wie die von ^{133}Ba ist, wirkt bei diesem Gammapektrum der Untergrund vom ^{176}Lu störend (siehe Abbildung 3.5). Die Nachweiswahrscheinlichkeit nimmt zu hohen Energien stets ab, so werden die beiden ^{60}Co -Linien mit ihrer deutlich höheren Energie mit geringerer Zählrate nachgewiesen als die von ^{133}Ba . Ferner wurden auch das Energiespektrum einer schwachen ^{111}In -Quelle (siehe Abbildung 3.6) und das einer schwachen ^{181}Hf -Quelle (siehe Abbildung 3.7) aufgenommen, um sicherzustellen, dass das Verhältnis des vom Lutetium verursachten Untergrundes im Vergleich zur Aktivität der Proben akzeptabel ist.

Abbildung 3.2: Zerfallsschema von ^{137}Cs [TOI 96]Abbildung 3.3: Energiespektrum von ^{137}Cs aufgenommen mit dem ersten geschnittenen LSO-Kristall

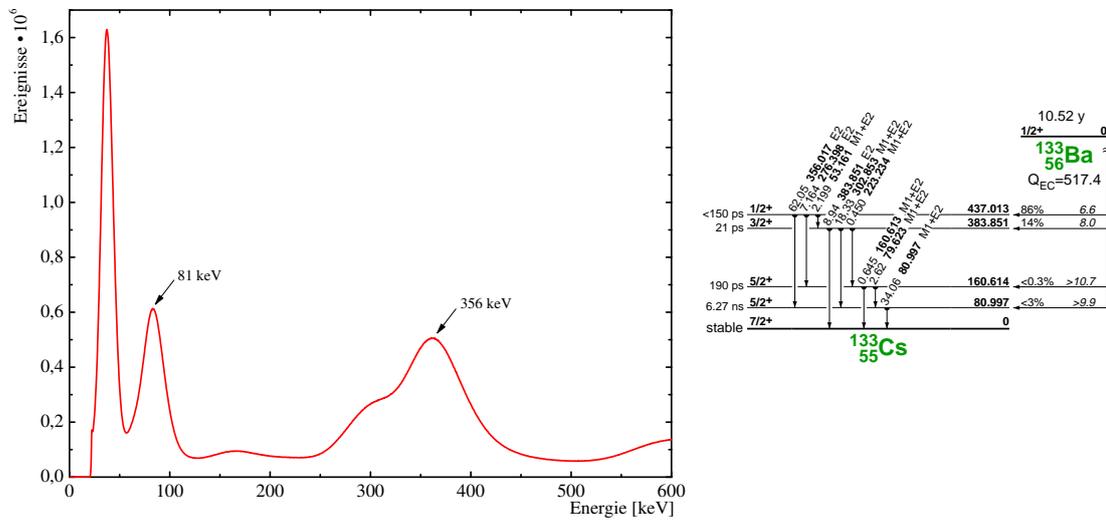


Abbildung 3.4: Energiespektrum und Zerfallsschema von ^{133}Ba [TOI 96]. Das Energiespektrum wurde mit dem ersten geschnittenen LSO-Kristall aufgenommen.

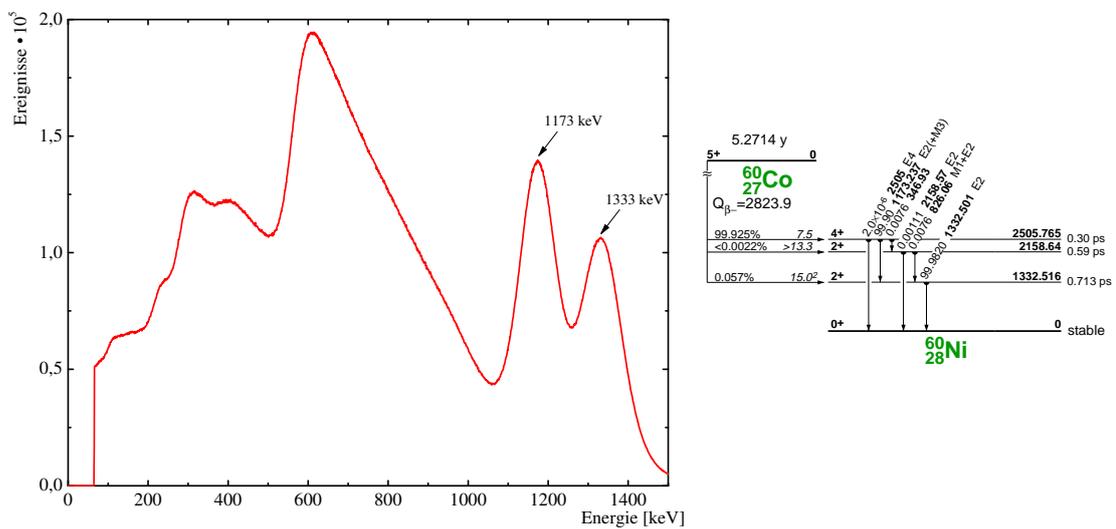


Abbildung 3.5: Energiespektrum und Zerfallsschema von ^{60}Co [TOI 96]. Das Energiespektrum wurde mit dem ersten geschnittenen LSO-Kristall aufgenommen.

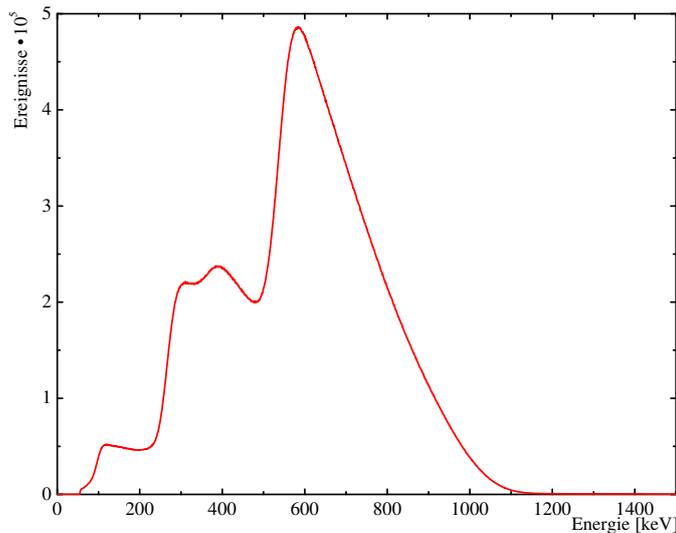


Abbildung 3.8: Untergrund-Messung durchgeführt mit dem ersten geschnittenen LSO-Kristall. Das Energiespektrum zeigt den radioaktiven LSO-Untergrund und die natürliche Radioaktivität der Umgebung.

3.2 Zeit

Um die Zeitauflösung des Versuchsaufbaus mit zwei LSO-Szintillationskristallen messen zu können, muss eine Promptkurve aufgenommen werden. Dazu wurde ein gewöhnlicher Fast-Slow-Koinzidenzkreis aufgebaut (siehe Abbildung 3.9). Die zeitliche Auflösung ist dann durch die volle Halbwertsbreite (*Full Width at Half Maximum*, **FWHM**) der prompten Kurve gegeben. Im Gegensatz zur ersten Testmessung (siehe Kapitel 1.3.1) bei der als Start-Detektor ein Bariumfluorid-Kristall benutzt werden musste, konnte dieses Mal für Start- und Stopp-Detektor LSO eingesetzt werden. Die kegelstumpfförmigen LSO-Kristalle sind nun auf die neuen Sekundärelektronenvervielfacher *XP2020* montiert. Die beiden Detektoren wurden im rechten Winkel zueinander aufgestellt und von einer Blei-Scheibe getrennt. Hiermit soll die Streuung von Quanten zwischen den Detektoren minimiert werden. Erforderlich wäre eine komplette Blei-Umhüllung der Detektoren, um die Streuung an der restlichen Apparatur klein zu halten, diese war aber nicht verfügbar.

Für den Fast-Slow-Koinzidenzkreis wurde ein Teil der schon bestehenden Vier-Detektor-Anlage verwendet. Der Slow-Kreis sieht folgendermaßen aus: Das Energiesignal wird an der Anode des Sekundärelektronenvervielfachers abgegriffen und verstärkt auf den Einkanalanalysator (*Single Channel Analyser*, **SCA**) gegeben. Vom Einkanalanalysator gelangt das Signal in die *Routing-Einheit*, die wie eine Koinzidenzeinheit wirkt und die Signale nach Start-Stopp-Paaren sortiert. Übli-

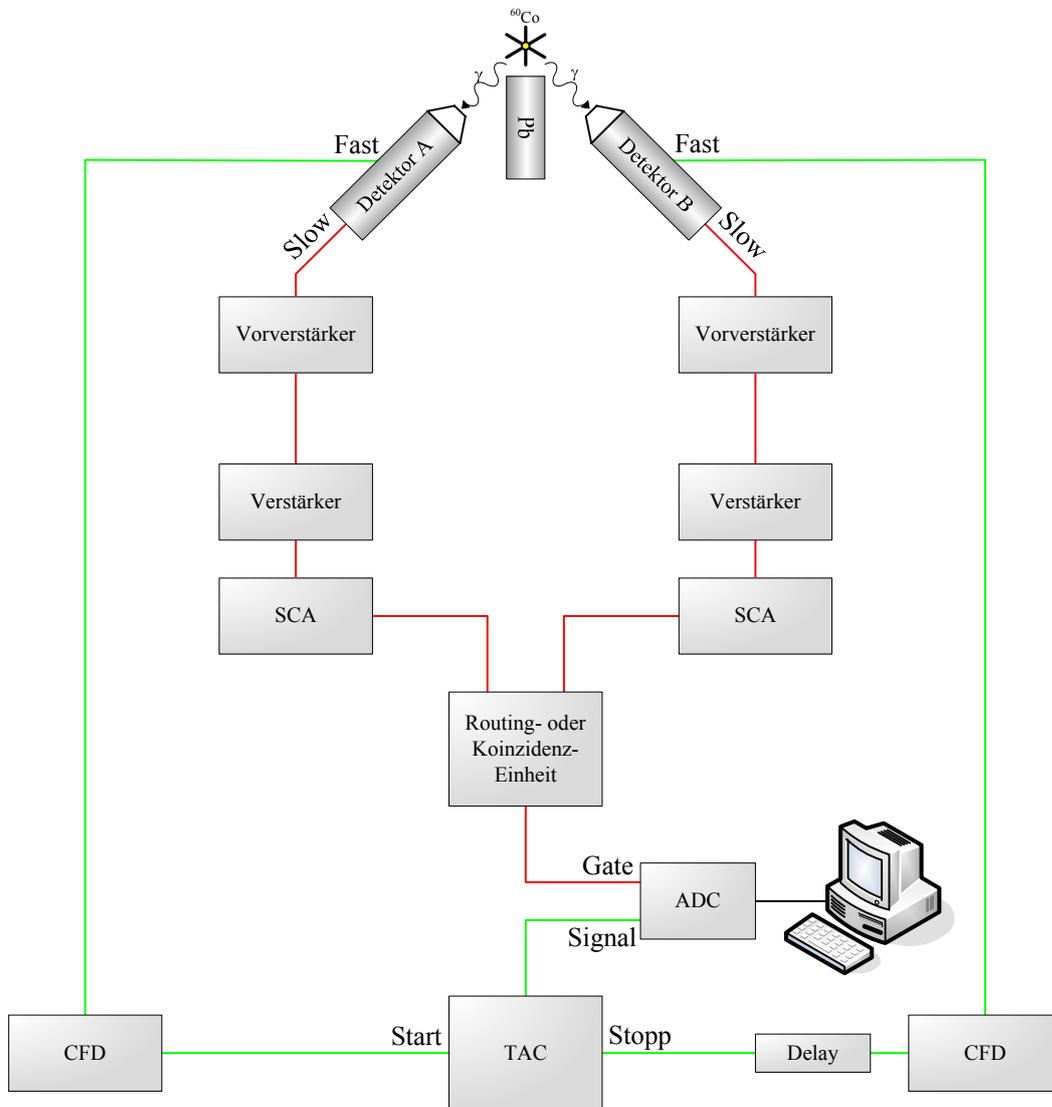


Abbildung 3.9: Blockschaltbild eines gewöhnlichen Fast-Slow-Koinzidenzkreises für die Aufnahme einer prompten Kurve

cherweise werden alle vier Detektoren benutzt, von denen jeder sowohl starten als auch stoppen kann; die *Routing-Einheit* sortiert dann die einzelnen Spektren der jeweiligen Start-Stopp-Kombinationen in Kanalbereiche des Vielkanalanalysators. Das Ausgangssignal der *Routing-Einheit* wird als *Gate* für den ADC benutzt.

Das Fast-Signal wird meist an der neunten Dynode der Sekundärelektronenvervielfacher abgegriffen und direkt in den schnellen Diskriminator (*Constant Fraction Discriminator*, **CFD**) geschickt. Hier wird ein von der Amplitude unabhängiges, normiertes logisches Signal erzeugt (negatives NIM-Signal¹), welches den Zeit-zu-Amplituden-Wandler (*Time to Amplitude Converter*, **TAC**) steuert. Im TAC wird die Zeit, die zwischen dem Start- und dem Stopp-Signal verstreicht, in ein Ausgangssignal umgewandelt, dessen Amplitude proportional zur Zeitdifferenz zwischen den beiden Signalen ist. Hierbei ist zu beachten, dass das Stopp-Signal verzögert werden muss. Der TPHC-Ausgang (*Time to Pulse-Height Converter*) vom TAC wird dann in den *Signal-Eingang* des ADCs geschickt.

Zuerst wurde mit einem Flugzeit-Eichgenerator *PG43 HMI* die Zeiteichung der Apparatur gemessen, diese ergab $(21,5 \pm 0,2) \frac{\text{ps}}{\text{Kanal}}$. Bei diesem Gerät wird der Fehler mit 1% angenommen. Dieser bestimmt somit auch den Fehler der vollen Halbwertsbreiten. Dann wurden die *Walks* der schnellen Diskriminatoren neu eingestellt. Die Schwelle von beiden CFDs wird knapp über das Rauschen gesetzt. Nun wird das Energiesignal mit dem SCA-Signal getriggert und die Energiefenster auf die gewünschten Linien eingestellt. Das Energiefenster vom Start-Signal wurde auf die 1173 keV-Linie von ⁶⁰Co eingestellt, das vom Stopp-Signal auf die 1333 keV-Linie. Die aufgenommene Promptkurve hat eine FWHM von (206 ± 2) ps (siehe Abbildung 3.10). Eine zweite Promptkurve wurde bei unveränderten Energiefenstern aufgenommen. Die Schwelle der beiden CFDs wurde auf ca. 2 V erhöht, so wird das Rauschen der Detektoren weitgehend unterdrückt. Die Zeitauflösung beträgt mit dieser Einstellung (205 ± 2) ps, d.h. im Rahmen des Fehlers besteht zwischen den beiden Einstellungen kein Unterschied.

Zum Vergleich wurden die LSO gegen die alten Bariumfluorid Szintillationsdetektoren ausgetauscht. Die Energiefenster der Einkanalanalysatoren wurden wieder auf die ⁶⁰Co-Linien eingestellt und es wurde eine Promptkurve aufgenommen, bei der die CFD-Schwellen auf 0 V standen (siehe Abbildung 3.11). Die erreichte zeitliche Auflösung beträgt (154 ± 2) ps. Das ist wie erwartet besser als bei LSO. Die Diskrepanz zwischen den Zeitauflösungen der beiden Szintillationskristalle ist wegen der starken Verbesserung der Energieauflösung und dadurch, dass mit dem neuen Material Proben benutzt werden können, die eine schwächere Aktivität haben als bisher verschmerzbar.

¹ *Nuclear Instrument Module*, ein Standard für Kern- und Hochenergiephysik

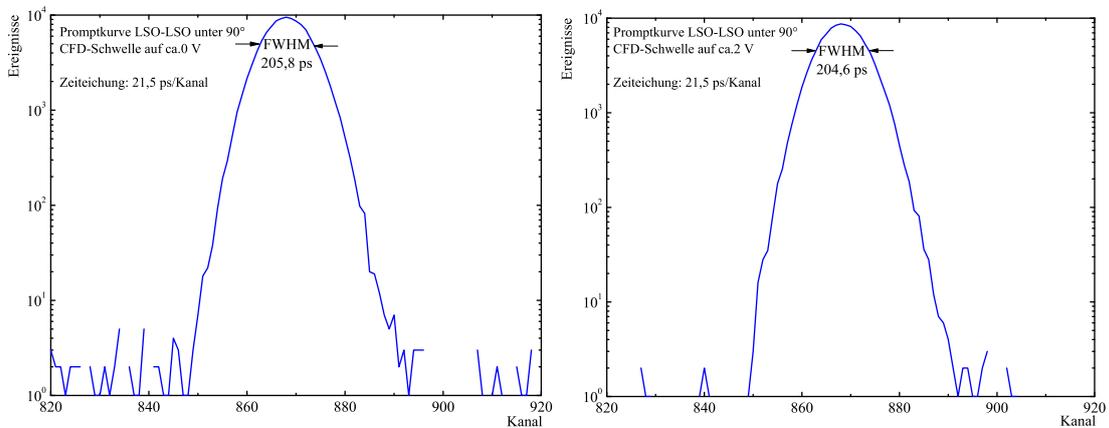


Abbildung 3.10: Promptkurve einer Messung der zeitlichen Auflösung von zwei LSO-Detektoren (SCA-Fenster des Start-Detektors: 1173 keV und des Stopp-Detektors: 1333 keV). Die beiden Detektoren sind im rechten Winkel zueinander aufgestellt, die Zeiteichung beträgt $(21,5 \pm 0,2) \frac{\text{ps}}{\text{Kanal}}$. Sind die CFD-Schwellen auf 0 V eingestellt, so ergibt sich eine FWHM von (206 ± 2) ps, erhöht man sie auf 2 V, so ergibt sich eine FWHM von (205 ± 2) ps.

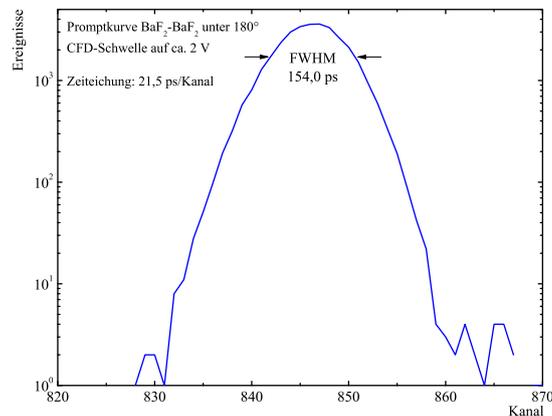


Abbildung 3.11: Promptkurve einer Messung der zeitlichen Auflösung von zwei BaF₂-Detektoren (SCA-Fenster des Start-Detektors: 1173 keV und des Stopp-Detektors: 1333 keV). Die beiden Detektoren sind unter 180° zueinander aufgestellt, die Zeiteichung beträgt $(21,5 \pm 0,2) \frac{\text{ps}}{\text{Kanal}}$. Es ergibt sich eine FWHM von (154 ± 2) ps.

Zusammenfassung und Ausblick

Die Messmethode der gestörten γ - γ -Winkelkorrelation hat sich zur Untersuchung lokaler, innerer Felder in Festkörpern bewährt, da die Wechselwirkung der implantierten Sonde sich auf ihre unmittelbare Umgebung beschränkt. Die meisten PAC-Apparaturen benutzen für ihre Detektoren Bariumfluorid-Szintillationskristalle, da diese für Koinzidenzmessungen eine sehr gute Zeitauflösung bieten. So können sogar Sonden vermessen werden, deren Zwischenzustand der γ - γ -Kaskade eine Lebensdauer im Nanosekunden-Bereich besitzt. Nachteilig bei Bariumfluorid sind seine mäßige Energieauflösung und seine kleinere Ansprechwahrscheinlichkeit. Aus diesem Grund treten häufig Schwierigkeiten auf, wenn Sonden mit komplizierteren Energiespektren verwendet werden. Für anwendungsnahe Forschung sind Sonden, wie z.B. ^{172}Lu , eine Seltene Erde, die ein solches Energiespektrum besitzen, von großem Interesse. So wird nach Szintillationskristallen gesucht, die diesen Anforderungen nachkommen. Ein solcher Szintillationskristall scheint Lutetium-Oxyorthosilikat (LSO) zu sein. Er wurde hier hinsichtlich seiner Eigenschaften und PAC-Tauglichkeit überprüft.

Im ersten Teil dieser Arbeit wurden die Szintillationsmaterialien LSO und LYSO hinsichtlich ihrer Eigenschaften in Verbindung mit den bereits vorhandenen Gerätschaften getestet und vermessen. Die Ergebnisse wurden mit denen der bisher verwendeten NaI und BaF_2 Kristalle verglichen. LSO, wie auch LYSO, zeigen eine deutlich höhere Lichtausbeute als BaF_2 , erreichen aber nicht die von NaI(Tl). Die Wellenlänge der maximalen Emission von NaI(Tl), LSO und LYSO liegt im Maximum der Quanteneffizienz der Photokathode eines Sekundärelektronenvervielfachers vom Typ XP2020, während BaF_2 nur die Hälfte der Effizienz der Photokathode ausnutzt. Die Zeitauflösung dieser neuen Szintillationskristalle ist zwar nicht so gut wie die von BaF_2 , das mit seiner schnellen Komponente (0,8 ns) praktisch unerreichbar ist, aber deutlich besser als bei NaI(Tl). Der wahre Vorteil von LSO, wie auch von LYSO, liegt in deren hoher Ansprechwahrscheinlichkeit. Diese ist von der Dichte und der effektiven Kernladungszahl des Materials abhängig. Hier scheint LSO durch seine deutlich schwereren Elemente der geeignetere Szintillationskristall zu sein.

Durch einen kleinen Testkristall konnten zunächst die Eigenschaften von LSO überprüft und dann auch mit denen von LYSO verglichen werden. Wie sich herausstellte, besitzt LYSO eine etwas bessere Energieauflösung, 10% im Vergleich zu 11%. Dafür hat LSO eine bessere Zeitauflösung. Da für PAC-Messungen die Zeitauflösung die größere Rolle spielt, fiel die Wahl des Materials letztendlich auf LSO.

Im zweiten Teil dieser Arbeit wurde beschrieben, wie aus einer LSO-Scheibe vier Kegelstümpfe mit möglichst wenig Verschnitt geschnitten werden können. Zum Schneiden wurde eine Diamantdrahtsäge benutzt. Die LSO-Scheibe wurde mit Vakuum an einem drehbaren Rohr festgehalten und mittels einer dafür konstruierten geeigneten Halterung an den Draht in der richtigen Position herangeführt. Nach einem ersten Versuch für die Drehung des Kristalls Gewichte zu verwenden, wurde ein Schrittmotor eingesetzt, um einen möglichst gleichmäßigen Schnitt zu erhalten. Es ist nämlich wichtig, dass beim Schneiden die Geschwindigkeit konstant gehalten wird.

Im dritten Teil dieser Arbeit konnte gezeigt werden, dass auch für die beiden geschnittenen Kristalle, die deutlich größer waren als die Testkristalle, die zeitliche Auflösung von LSO nach wie vor sehr zufriedenstellend ist. Bei der Messung der Energieauflösung ergab sich zwar ein etwas schlechterer Wert als erwartet, dies wurde aber einerseits auf das Alter des verwendeten Sekundärelektronenvervielfachers, andererseits auch auf den vorläufigen nicht optimierten Versuchsaufbau zurückgeführt.

Die vier aus der Scheibe geschnittenen LSO-Kegelstümpfe sollen in einem weiteren Schritt nun als Szintillationskristalle für eine schon bestehende Vier-Detektor-Anlage für PAC dienen. An dieser Anlage sollen dann erste Messungen durchgeführt werden, um die Ergebnisse aus dieser Arbeit zu überprüfen. Weiterhin sollen PAC-Spektren mit den bisher üblichen PAC-Sonden aufgenommen werden, so dass man einen direkten Vergleich zu den bisher benutzten BaF₂-Kristallen herstellen kann.

Anhang

Basic-Programm für die Steuerung des Schrittmotors

Das Programm für die Steuerung des Schrittmotors wurde mit *Q-Basic* geschrieben. Diese Programmiersprache wird mit dem Betriebssystem *MS-DOS* ab der Version 5 mitgeliefert. Die Fehler-Routine wurde aus der Programmieranleitung *CNC-Betriebssystem* von *Isel-Automation* (Februar 1994) übernommen.

```
100  ON TIMER(1800) GOSUB 200
110  SCHRITT = 0
120  OPEN "COM2:9600,N,8,1,DS,CD" FOR RANDOM AS #1
130  PRINT #1, "@01": GOSUB 300
140  TIMER ON
150  GOTO 140
160  STOP
200  PRINT #1, "@0A -1,50": GOSUB 300
210  SCHRITT = SCHRITT + 1
220  CLS
230  PRINT "Aktuelle Position: "; SCHRITT; "Schritte "; "("; SCHRITT * .9; " Grad)"
240  RETURN
250  STOP
300  IF LOC(1) < 1 THEN GOTO 300
310  a$ = INPUT$(1, 1)
320  IF a$ = "0" THEN RETURN
330  PRINT "Karte meldet Fehler: "; a$
340  STOP
```


Literaturverzeichnis

- [Allko 71] **Allkofer, Otto Claus**; „*Teilchen-Detektoren*“; Verlag Karl Thiemig KG – München (1971)
- [Balce 00] **Balcerzyk M., Moszyński M., Kapusta M. Wolski D., Pawelke J., Melcher C.L.**; „*YSO, LSO, GSO and LGSO. A Study of Energy Resolution and Nonproportionality.*“; IEEE Transactions on Nuclear Science, Volume 47, No. 4, August 2000, page 1319–23
- [Deren 03] **Derenzo S.E., Weber M.J., Bourret-Courchesne E., Klintonberg M.K.**; „*The Quest for the Ideal Inorganic Scintillator*“; Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, Volume 505, Issues 1-2, June 2003, page 111–117
- [Doren 94] **Dorenbos P., De Haas J.T.M., van Eijk C.W.E., Melcher C.L., Schweitzer J.S.**; „*Non-linear response in the scintillation yield of $Lu_2SiO_5:Ce^{3+}$* “; IEEE Transactions on Nuclear Science, Volume 41, No. 4, August 1994, page 735–737
- [Leo 94] **Leo, William R.**; „*Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments*“; 2nd Edition; Springer-Verlag – New York, Berlin, Heidelberg (1994)
- [Nutt 99] **Nutt R., Melcher C.L.**; „*Current and Future Developments with LSO, a Scintillator with Excellent Characteristics for PET*“; Revue de l'Acomen, Volume 5, No. 2, 1999, page 152–155
- [Pepin 04] **Pepin C.M., Bérard P., Perrot A.-L., Houde D., Lecomte R., Melcher C. L., Dauet H.**; „*Properties of LYSO and Recent LSO Scintillators for Phoswich PET Detectors*“; IEEE Transactions on Nuclear Science, Volume 51, No. 3, June 2004, page 789–793
- [Photo 20] **Photonis**; „*Photomultiplier Tubes – Product Specifications – XP2020*“; Photonis – Imaging Sensors; www.photonis.com (1998)
- [Photo 20Q] **Photonis**; „*Photomultiplier Tubes – Product Specifications – XP2020-Q*“; Photonis – Imaging Sensors; www.photonis.com (1998)

- [Podgo 03] **Podgorsak Ervin B.**; „*Review of Radiation Oncology Physics: A Handbook for Teachers and Students*“; International Atomic Energy Agency (IAEA), Vienna, Austria, May 2003, chapter 9, pages 256–257
- [Saint 92] **Schotanus P., Stam G., Gerritse E., Utts B., Briaux B.**; „*Scintillation Detectors*“; Harshaw QS – Scintillation Detector Catalog; Saint Gobain – Ceramiques Industrielles (March 1992)
- [Schae 92] **Schaefer Thomas**; „*Donator-Defektkomplexe in GaAs untersucht mit der γ - γ -Winkelkorrelation unter Einsatz der Sonden ^{73}Se und ^{77}Br* “; Dissertation – Helmholtz - Institut für Strahlen- und Kernphysik der Universität Bonn (1992)
- [TOI 96] **Firestone Richard B., Shirley Virginia S., Baglin Coral M., Zipkin Jean, Chu S.Y. Frank**; „*Table of Isotopes*“; Wiley-Interscience; CD-ROM Edition; Version 1 (March 1996)

Abbildungsverzeichnis

1.1	Gammaabsorption und -streuung in Materie	5
1.2	Bändermodell	6
1.3	Intensität der Lichtausbeute von NaI	9
1.4	Spektralverteilung des Emissionslichts von BaF ₂	10
1.5	Quanteneffizienz eines XP2020-Q Sekundärelektronenvervielfachers	11
1.6	Quanteneffizienz eines XP2020 Sekundärelektronenvervielfachers .	13
1.7	Zerfallsschema von ¹⁷⁶ Lu	14
1.8	Energiespektrum von ¹⁷⁶ Lu	14
1.9	Energiespektrum von ¹³⁷ Cs – LSO-Probe-Detektor	16
1.10	Intensität der Lichtausbeute von LSO	17
1.11	Promptkurve vom LSO-Probekristall	17
1.12	Energiespektrum von ¹³⁷ Cs – LYSO-Probe-Detektor	19
1.13	Promptkurve vom LYSO-Probekristall	20
2.1	Energiespektrum von ¹⁷² Lu – Germaniumdetektor	24
2.2	Dreidimensionale Darstellung der LSO-Kristallscheibe	25
2.3	Zweidimensionale Skizze der Kegelstümpfe	26
2.4	Skizze der Sägevorrichtung mit dem Gegengewicht	27
2.5	Skizze der Sägevorrichtung mit dem Schrittmotor	29
3.1	Versuchsaufbau für die Aufnahme eines Energiespektrums	32
3.2	Zerfallsschema von ¹³⁷ Cs	33
3.3	Energiespektrum von ¹³⁷ Cs – LSO	33
3.4	Energiespektrum und Zerfallsschema von ¹³³ Ba	34
3.5	Energiespektrum und Zerfallsschema von ⁶⁰ Co	34
3.6	Energiespektrum und Zerfallsschema von ¹¹¹ In	35
3.7	Energiespektrum und Zerfallsschema von ¹⁸¹ Hf	35
3.8	Untergrund-Messung mit LSO	36
3.9	Blockschaltbild eines Fast-Slow-Koinzidenzkreis	37
3.10	Promptkurven zweier LSO-Detektoren	39
3.11	Promptkurve zweier BaF ₂ -Detektoren	39

